



THÈSE

Pour l'obtention du grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE STRASBOURG

ÉCOLE DOCTORALE MATHÉMATIQUES, SCIENCES DE L'INFORMATION ET DE
L'INGÉNIEUR

DOMAINE DE RECHERCHE : MÉCANIQUE, MÉCANIQUE DES MATÉRIAUX

Présentée par

Chrystelle Bernard

**Intégration dans un code Éléments Finis d'un modèle de
comportement en grandes déformations pour les polymères
amorphes : applications à une large gamme de vitesses de
déformation et à la mise en forme**

Soutenue publiquement le 16 Juin 2015
Devant la Commission d'Examen

Composition du jury

Pr. Nadia Bahlouli	ICube, Université de Strasbourg, CNRS	Directrice de thèse
Pr. Saïd Ahzi	ICube, Université de Strasbourg, CNRS	Co-Directeur de thèse
Pr. Loïc Daridon	LMGC, Université Montpellier 2, CNRS	Président, Rapporteur
Dr. Laurent Gornet	GeM, École Centrale de Nantes, CNRS	Rapporteur
Pr. Noëlle Billon	CEMEF, Mines ParisTech	Examinatrice
Dr. João Pedro de Magalhães Correia	ICube, Université de Strasbourg, CNRS	Examineur

*à ma famille,
à mes amis,
et à tous ceux qui m'ont soutenue*

Remerciements

Je tiens ici à remercier nombre de personnes qui m’ont aidée, soutenue, conseillée au cours de cette thèse et qui, sans leur présence, ce travail n’aurait pu être accompli dans les meilleures conditions.

Je tiens tout d’abord à exprimer mes plus sincères remerciements à ma directrice de thèse, le Professeur Nadia Bahlouli, pour m’avoir accueillie au sein de l’équipe, pour son aide précieuse, pour m’avoir encouragée et guidée au cours de ces quatre années et pour avoir été présente dans les moments difficiles. Je tiens également à la remercier pour avoir financé mes différentes participations à des conférences nationales et internationales.

Je tiens également à remercier le Professeur Saïd Ahzi pour ses conseils avisés qui ont largement contribué à une meilleure compréhension des différents modèles de comportement présentés dans ce mémoire dont certains ont été développés au sein de l’équipe MMB.

J’aimerais également exprimer mes plus sincères remerciements au Docteur João Pedro de Magalhães Correia pour avoir suivi mon travail au cours de ces quatre années, pour m’avoir prodigué conseils et aide durant toute cette thèse.

Je tiens à remercier le Professeur Noëlle Billon, du CEMEF–Mines ParisTech, pour avoir examiné mon travail et pour toutes les discussions que l’on a pu avoir au cours de nos différentes rencontres.

Je tiens à remercier le Professeur Loïc Daridon, de l’Université de Montpellier 2, pour avoir présidé mon jury de thèse. Je lui exprime ma reconnaissance ainsi qu’au Docteur Laurent Gornet, de l’École Centrale de Nantes, pour m’avoir fait l’immense honneur de rapporter ma thèse, de juger et d’évaluer mon travail, ainsi que pour la discussion enrichissante qui a eu lieu à la suite de ma soutenance.

J’aimerais également remercier le Professeur Christophe Fond pour m’avoir donné l’opportunité de travailler avec lui sur un nouveau modèle de comportement, pour nos discussions enflammées qui m’ont permis de prendre un certain recul sur mon travail.

Au Professeur Yves Rémond, je tiens à exprimer mes remerciements pour son regard critique et sa grande connaissance scientifique qui m’ont beaucoup apporté.

Je tiens à remercier l’entreprise Faurecia pour avoir fourni les matériaux qui ont été utilisés dans cette thèse.

Ces remerciements ne seraient pas complets si j’oubliais de remercier les différents membres du laboratoire ICube qui ont contribué de près ou de loin au bon déroulement de cette thèse : les autres encadrants (Christiane, Daniel, Sybille et Siham), ainsi que les encadrés (doctorants, post-doc et stagiaires), les anciens comme les nouveaux (Anthony, Nicolas, Mathieu, Safaa, Majid, Akbar, Kui, Wei, Rodrigue, Anne-Sophie, Camille, Mehdi, Hamdi, Hamid, Delphine, Ahmed, Salma. . .). Un grand merci également au personnel administratif et technique du laboratoire, en particulier Michael pour sa gentillesse et les déjeuners partagés ensemble.

Je tiens à terminer ces remerciements par exprimer ma gratitude à tous les membres de ma famille, en particulier mes parents, qui m’ont toujours soutenue dans mes projets et sans qui je n’aurais pu aller aussi loin.

Table des matières

Table des figures	xi
Liste des tableaux	xv
Notations	xvii
Introduction générale	1
1 Microstructure et comportement des matériaux polymères	3
1.1 De la molécule à la macromolécule : naissance des polymères	3
1.1.1 Structure des polymères	3
1.1.1.1 Isomérie de configuration	4
1.1.1.2 Isomérie de conformation	4
1.1.2 Les différentes classes de polymères	4
1.1.2.1 Les thermoplastiques	5
1.1.2.2 Les thermodurcissables	5
1.1.2.3 Les élastomères	5
1.1.3 Polymères amorphes	6
1.1.4 Polymères semi-cristallins	6
1.1.4.1 Phase cristalline	7
1.1.4.2 Paramètres influençant la cristallinité	9
1.2 Comportement et propriétés thermomécaniques des polymères	9
1.2.1 Phénomènes de relaxation chez les matériaux polymères	10
1.2.1.1 Mise en évidence des températures de relaxation : l'analyse mécanique dynamique	10
1.2.1.2 Relaxation principale α	11
1.2.1.3 Relaxations secondaires	12
1.2.2 Comportement mécanique des polymères en petites déformations	12
1.2.2.1 Principe de superposition temps-température	13
1.2.2.2 Équation WLF	13
1.2.3 Comportement mécanique des polymères en grandes déformations	15
1.2.3.1 Dépendance à l'architecture moléculaire	16
1.2.3.2 Dépendance à la température	17
1.2.3.3 Dépendance à la vitesse de déformation	17
1.2.3.4 Dépendance à la pression	18
1.3 Conclusion	19

2	Modélisation du comportement mécanique des polymères	21
2.1	Modèles de comportement unifiés	21
2.1.1	Modèle de G'Sell-Jonas	21
2.1.2	Modèle de Matsuoka	22
2.1.3	Modèle DSGZ	22
2.2	Modélisation du module d'élasticité	23
2.2.1	Expression des différents modèles	23
2.2.2	Conclusion	25
2.3	Modélisation de la contrainte seuil	26
2.3.1	Théorie des états de transition d'Eyring	26
2.3.2	Théorie des changements de configuration de Robertson	27
2.3.3	Théorie des replis moléculaires d'Argon	28
2.3.4	Modèle de dislocation Bowden et Raha	29
2.3.5	Généralisation de la théorie d'Eyring	31
2.3.6	Modèle coopératif	31
2.3.7	Conclusion	32
2.4	Comparaison entre différents modèles de contrainte seuil pour les polymères amorphes	33
2.4.1	Introduction	33
2.4.2	Analyse thermodynamique des modèles	34
2.4.2.1	Modèle d'Eyring	34
2.4.2.2	Modèle d'Eyring linéarisé	35
2.4.2.3	Modèle d'Argon	35
2.4.2.4	Modèle coopératif	37
2.4.3	Résultats et discussion	38
2.4.3.1	Matériaux étudiés	38
2.4.3.2	Contrainte seuil	38
2.4.3.3	Volume d'activation opérationnel	39
2.4.3.4	Énergie d'activation opérationnelle	41
2.4.4	Conclusion	43
2.5	Modélisation du durcissement structural	44
2.5.1	Modèle Néo-Hookéen	46
2.5.2	Modèle de Mooney-Rivlin	46
2.5.3	Modèle de Yeoh	46
2.5.4	Modèle de Gent	47
2.5.5	Modèle 3-chaînes	47
2.5.6	Modèle 4-chaînes	48
2.5.7	Modèle 8-chaînes	49
2.5.8	Modèle full-network	50
2.5.9	Modèle GD	52
2.5.10	Conclusion	53
2.6	Conclusion	54
3	Extraction du comportement mécanique des polymères en présence d'auto-échauffement par l'utilisation d'un modèle phénoménologique simplifié	55
3.1	Introduction	55
3.2	Loi de comportement	57
3.2.1	Modèle thermique	58
3.2.2	Modélisation du comportement mécanique	58
3.3	Résultats et Discussion	60
3.3.1	Matériaux étudiés	60
3.3.2	Modèle Éléments Finis	62
3.3.3	Validation du modèle	63
3.3.4	Influence du frottement	64
3.3.5	Influence de l'auto-échauffement	66
3.4	Conclusion	66

4	Modélisation du comportement élasto-viscoplastique des polymères amorphes :	
	Formulation et intégration numérique	69
4.1	Formulation du problème mécanique	69
4.1.1	Cinématique	69
4.1.2	Loi de comportement	71
4.1.2.1	Comportement élastique	72
4.1.2.2	Comportement viscoplastique	74
4.1.2.3	Modélisation de l'auto-échauffement	76
4.2	Résolution numérique du problème thermomécanique	78
4.2.1	Discretisation temporelle	78
4.2.2	Discretisation spatiale : les Éléments Finis	78
4.2.3	Intégration numérique de la loi de comportement	78
4.2.3.1	Choix du logiciel Éléments Finis	79
4.2.3.2	Problème discrétisé : intégration numérique dans ABAQUS/Explicit	79
4.3	Validation des résultats : tests préliminaires - Cas isotherme	83
4.3.1	Essais de validation - 1 élément	84
4.3.2	Essais de validation sur 10×10 ($\times 10$) éléments	85
4.3.2.1	Homogénéisation sur la géométrie	88
4.3.2.2	Homogénéisation sur le temps	89
4.3.2.3	Résultats des homogénéisations	90
4.3.2.4	Avantages-inconvénients des deux méthodes d'homogénéisation	92
4.4	Validation des résultats : tests préliminaires - Cas adiabatique	92
4.5	Conclusion	93
5	Sollicitations des matériaux polymères en grandes déformations : confrontation prévisions numériques - résultats expérimentaux	95
5.1	Propriétés du matériau étudié	95
5.2	Simulation de l'essai d'impact normal d'une plaque circulaire de polycarbonate par un projectile cylindrique à pointe sphérique	99
5.2.1	Procédure expérimentale de Ames <i>et al.</i>	99
5.2.2	Géométrie et hypothèses de la simulation	99
5.2.3	Réponse mécanique du projectile	101
5.2.4	Étude de la déformée de la plaque	102
5.2.5	Déformation plastique de la plaque	103
5.2.6	Profil de température dans l'épaisseur de la plaque	105
5.2.7	Paramètres influençant l'essai d'impact	106
5.2.7.1	Diamètre du projectile	106
5.2.7.2	Vitesse d'impact	107
5.2.7.3	Température de la plaque	108
5.2.8	Récapitulatif des paramètres des différentes simulations	109
5.2.9	Conclusion de l'essai d'impact normal	110
5.3	Simulation de la déformation d'un cylindre polycarbonate dans une matrice cruciforme	110
5.3.1	Procédure expérimentale de Srivastava suivie par <i>et al.</i>	110
5.3.2	Géométrie et hypothèses de la simulation	110
5.3.3	Réponse mécanique de la matrice cruciforme	112
5.3.4	Étude de la déformée	113
5.3.5	Distribution de la contrainte équivalente de von Mises de l'objet déformé	114
5.3.6	Déformation plastique équivalente de l'objet déformé	114
5.3.7	Distribution de température de l'objet déformé	116
5.3.8	Temps de calcul	118
5.3.9	Conclusion de l'essai de mise en forme cruciforme	118
5.4	Conclusion	119
	Conclusion générale et perspectives	121

Valorisation du travail	123
Références bibliographiques	125
A Conventions ABAQUS pour l'écriture de la <i>VUMAT</i>	137
A.1 Cas 2D	137
A.2 Cas 3D	137
A.3 Conclusion	138
B Caractérisation du comportement rhéologique et thermomécanique d'un mélange de PVC	139
B.1 Introduction	139
B.2 Matériau étudié	141
B.3 Procédure expérimentale	141
B.3.1 Caractérisation thermique : Analyse thermogravimétrique	141
B.3.2 Caractérisation physique : Analyse calorimétrique différentielle	142
B.3.3 Analyse thermomécanique	142
B.3.3.1 Essais de traction quasi-statique	142
B.3.3.2 Essais de compression dynamique	144
B.3.4 Observations microscopiques : Microscopie électronique à balayage	145
B.4 Résultats et discussion	146
B.4.1 Analyse thermogravimétrique	146
B.4.2 Analyse calorimétrique différentielle	148
B.4.3 Comportement thermomécanique : sensibilité à la température	149
B.4.3.1 Tests de traction quasi-statique	149
B.4.3.2 Tests de compression dynamique	151
B.4.4 Comportement thermomécanique : sensibilité à la vitesse de déformation	153
B.4.5 Modélisation de la contrainte seuil	155
B.4.6 Observations de la microstructure des matériaux	156
B.4.6.1 Zone non-déformée	156
B.4.6.2 Zone déformée	157
B.4.6.3 Composition chimique	158
B.5 Conclusion	159

Table des figures

1.1	Représentation schématique des différents types de macromolécules.	3
1.2	Isomérisie de structure : configurations <i>trans</i> et <i>cis</i>	4
1.3	Configurations stéréochimiques.	4
1.4	Représentation de Newmann de différentes conformations.	5
1.5	Représentation schématique du caractère amorphe des polymères.	6
1.6	Représentation schématique du caractère semi-cristallin des polymères.	6
1.7	Représentation schématique d'une lamelle cristalline.	7
1.8	Représentation schématique d'un sphérolite et de la structure des lamelles	8
1.9	Courbes représentatives d'un essai de DMA d'un polymère amorphe.	10
1.10	Représentation des différents mouvements moléculaires intervenant dans le processus de relaxation secondaire d'un polymère amorphe.	12
1.11	(a) Essais de fluage et (b) courbe maîtresse construite à 25 °C pour un polyisobutylène.	14
1.12	Représentation schématique de la théorie du volume libre pour un polymère amorphe.	14
1.13	Courbes de comportement caractéristiques des matériaux polymères.	16
1.14	Courbes contrainte effective-déformation effective de divers polymères obtenues à 25 °C et pour une vitesse de déformation de 10^{-3} s^{-1}	17
1.15	Influence de la température sur le comportement mécanique d'un PMMA testé à une vitesse de déformation constante de 10^{-2} s^{-1}	17
1.16	Influence de la vitesse de déformation sur le comportement mécanique d'un PMMA testé à une température constante de 25 °C.	18
1.17	Influence de la pression hydrostatique sur le comportement mécanique de deux polymères : (a) un polymère amorphe, le polycarbonate (PC) et (b) un polymère semi-cristallin, le polyéthylène (PE).	19
2.1	Représentation schématique du modèle simplifié de la théorie de Robertson.	27
2.2	Représentation schématique de la théorie moléculaire développée par Argon.	29
2.3	Mécanismes élémentaires permettant la déformation plastique des polymères.	30
2.4	Sensibilité à la température des différents modèles proposés et comparaison avec les résultats expérimentaux.	40
2.5	Sensibilité à la vitesse de déformation des différents modèles proposés et comparaison avec les résultats expérimentaux.	40
2.6	Comparaison entre les différents modèles du volume d'activation opérationnel	41
2.7	Influence de la température et de la vitesse de déformation sur le volume d'activation opérationnel du modèle d'Argon 2.	41
2.8	Influence de la température et de la vitesse de déformation sur le volume d'activation opérationnel du modèle coopératif.	42
2.9	Comparaison entre les différents modèles de l'énergie d'activation opérationnelle.	42
2.10	Influence de la température et de la vitesse de déformation sur l'énergie d'activation opérationnelle du modèle d'Argon 2.	43

2.11	Influence de la température et de la vitesse de déformation sur l'énergie d'activation opérationnelle du modèle coopératif.	43
2.12	Représentation schématique du modèle 3-chaînes.	47
2.13	Représentation schématique du modèle 4-chaînes.	48
2.14	Représentation schématique du modèle 8-chaînes.	49
2.15	Représentation schématique du modèle « full-network ».	50
3.1	Représentation schématique de l'intégration numérique du modèle phénoménologique au pas $(n + 1)$	60
3.2	Évolution de la contrainte seuil en fonction de la vitesse de déformation et de la température réalisée à partir de résultats expérimentaux.	61
3.3	Application de la technique de cartographie.	62
3.4	(a) Conditions aux limites du problème de compression sur barres d'Hopkinson. (b) Carte de l'augmentation de température obtenue à 20 % de déformation pour un PCTFE sollicité en compression uniaxiale à 0.01 s^{-1}	63
3.5	Comparaison entre les données expérimentales et les résultats numériques en considérant un coefficient de Taylor-Quinney β nul.	64
3.6	(a) Contrainte le long de l'interface entre les barres de compression et le polymère à la fin du test pour différents niveaux de contrainte interfaciale. (b) Influence de la contrainte interfaciale sur le comportement thermomécanique comparée aux résultats expérimentaux du PP. Évolution du (c) module élastique et de la (d) contrainte seuil en fonction de la contrainte interfaciale (σ_{ifs}).	65
3.7	Influence de l'auto-échauffement sur la réponse thermomécanique du PP.	66
3.8	Estimation du facteur β pour le PP testé à $3346 \pm 4.3\% \text{ }^{-1}\text{s}$ et $23 \text{ }^{-1}\text{s}$ et le PCTFE testé à $100 \text{ }^{-1}\text{s}$ et $23 \text{ }^{-1}\text{s}$	67
4.1	Décomposition multiplicative du gradient de déformation $\mathbb{F}$ et mise en évidence des différents états intermédiaires.	70
4.2	(a) Comparaison de l'évolution en fonction de la température du coefficient de Poisson entre les données expérimentales et le modèle proposé pour deux vitesses de déformation. (b) Évolution expérimentale du facteur de perte $\tan \delta$ en fonction de la température pour quatre fréquences pour le PBT semi-cristallin.	73
4.3	Identification des différents paramètres associés au modèle décrivant l'évolution du coefficient de Poisson.	74
4.4	Courbes expérimentales contrainte vraie-déformation vraie et augmentation de température-déformation vraie lors d'essais de compression uniaxiaux à température ambiante (a) pour du PMMA, en quasi-statique et (b) pour du PC, en dynamique.	77
4.5	Cadre général du problème mécanique non linéaire : description lagrangienne du mouvement.	78
4.6	Algorithme de la loi de comportement introduite dans ABAQUS/Explicit. Les mots en gras correspondent aux noms des différentes variables dans l'environnement ABAQUS/Explicit.	82
4.7	Géométrie et conditions imposées pour simuler un essai de compression uniaxiale, dans le cas d'un (a) essai de déformation plane homogène, (b) tridimensionnel. (c) Évolution de la vitesse de chargement imposée.	83
4.8	Validation de la loi de comportement introduit dans ABAQUS/Explicit pour 1 élément avec (a) contrainte vraie équivalente, (b) vitesse de déformation équivalente et (c) taux de déformation plastique équivalent en fonction de la déformation vraie équivalente.	84
4.9	Maillage 3D du cube et identification des trois éléments analysés.	85
4.10	Validation de la loi de comportement introduite dans ABAQUS/Explicit pour un essai de compression uniaxiale avec $10 \times 10 \times 10$ éléments avec (a) contrainte vraie équivalente, (b) vitesse de déformation équivalente et (c) taux de déformation plastique équivalent en fonction de la déformation vraie équivalente.	86

4.11	Validation de la loi de comportement introduite dans ABAQUS/Explicit pour un essai de traction uniaxiale avec $10 \times 10 \times 10$ éléments avec (a) contrainte vraie équivalente, (b) vitesse de déformation équivalente et (c) taux de déformation plastique équivalente en fonction de la déformation vraie équivalente.	87
4.12	Maillage 2D déformé du cube obtenu à $t = 8.27$ ms au cours d'un essai de compression uniaxiale et identification des trois éléments analysés.	87
4.13	Évolution de la vitesse de déformation équivalente en fonction du temps pour 3 éléments, identifiés sur la figure 4.12, lors d'un essai de compression uniaxiale sur une géométrie 2D.	88
4.14	Schéma pour l'homogénéisation sur la géométrie.	88
4.15	Schématisation de la méthode d'homogénéisation sur le temps.	89
4.16	Validation de la loi de comportement introduite dans ABAQUS/Explicit pour un essai de compression uniaxiale avec 10×10 éléments en comparant les deux techniques d'homogénéisation avec (a) contrainte vraie équivalente en fonction de la déformation vraie équivalente et (b) vitesse de déformation équivalente.	90
4.17	Validation de la loi de comportement introduite dans ABAQUS/Explicit pour un essai de traction uniaxiale avec 10×10 éléments en comparant les deux techniques d'homogénéisation avec (a) contrainte vraie équivalente en fonction de la déformation vraie équivalente et (b) vitesse de déformation équivalente.	91
4.18	Comparaison entre les deux techniques d'homogénéisation en termes de temps de calcul pour des essais (a) de traction uniaxiale et (b) de compression uniaxiale pour trois vitesses de déformation.	91
4.19	Comparaison entre les simulations isotherme et adiabatique d'un essai 2D de (a) traction uniaxiale et de (b) compression uniaxiale en homogénéisant la vitesse de déformation par rapport au temps.	93
5.1	Comparaison entre le modèle constitutif et les données expérimentales du PC testé sur une gamme de températures allant de 25°C à 130°C et une gamme de vitesses de déformation allant de 10^{-3} s^{-1} à 10^{-1} s^{-1}	97
5.2	(a) Comparaison entre le modèle constitutif et les données expérimentales du PC pour des vitesses de déformation de 0.5 s^{-1} et de 3400 s^{-1} et une température initiale de 25°C . (b) Augmentation de la température de surface correspond aux deux essais de compression.	98
5.3	Modèles Éléments Finis utilisés lors de l'analyse thermomécanique de l'essai normal d'impact d'une plaque circulaire par un projectile à géométrie sphérique.	99
5.4	Prévisions numériques de la forme finale de la plaque après impact pour chacune des trois conditions aux limites.	100
5.5	Courbes Force-Temps correspondant à la réponse mécanique du projectile.	101
5.6	Comparaison entre le profil déformé expérimental et le profil déformé prévu par les simulations numériques à la fin de l'impact du projectile.	102
5.7	Comparaison entre le profil déformé expérimental et le profil déformé prévu par les simulations numériques à la fin de la recouvrance de la plaque.	103
5.8	Carte des déformations plastiques de la plaque déformée obtenue à la fin de la recouvrance.	104
5.9	Carte de températures de la plaque déformée obtenue à la fin de la recouvrance.	105
5.10	(a) Évolution de la réponse mécanique du projectile et (b) du profil déformé en fonction du diamètre du projectile.	106
5.11	(a) Évolution de la réponse mécanique du projectile et (b) du profil déformé en fonction de la vitesse d'impact du projectile.	107
5.12	(a) Évolution de la réponse mécanique du projectile et (b) du profil déformé en fonction de la plaque polymère.	108
5.13	Modèle Éléments Finis utilisé lors de l'analyse thermomécanique de l'essai de mise en forme cruciforme d'une cylindre polymère.	111
5.14	Courbes Force-Déplacement correspondant à la réponse mécanique de la matrice cruciforme.	112

5.15	Comparaison entre la section déformée expérimentale et la section déformée prévue par les simulations numériques.	113
5.16	Répartition de la contrainte équivalente de von Mises à la fin de l'étape de mise en forme avant le retrait de la matrice cruciforme.	115
5.17	Champ de déformation plastique à la fin de l'étape de mise en forme avant le retrait de la matrice cruciforme.	116
5.18	Champ de température à la fin de l'étape de mise en forme avant le retrait de la matrice cruciforme.	117
B.1	(a) Évolution de la part des plastiques dans les véhicules automobiles. (b) Répartition des différentes matières utilisées pour l'automobile en Europe en 2003.	139
B.2	Dispositif expérimental de DSC. T_e , F_{fe} , T_r et T_{fr} représentent respectivement les températures de l'échantillon, de la paroi du four côté échantillon, de la référence et de la paroi du four côté référence.	142
B.3	Machine hydraulique de traction quasi-statique INSTRON équipé d'une chambre thermique.	143
B.4	(a) Éprouvettes de traction en PPVC. (b) Schéma et dimensions en mm des échantillons de PPVC utilisées pour les essais de traction quasi-statique sur machine hydraulique.	144
B.5	(a) Dispositif expérimental présent au laboratoire ICube, Département Mécanique. (b) Représentation schématique du système des barres d'Hopkinson.	144
B.6	Dispositifs mis en place au sein du Département Mécanique du laboratoire ICube afin d'effectuer des tests de compression dynamique sur barres d'Hopkinson pour des (a) hautes températures et (b) basses températures.	145
B.7	Courbes de thermogravimétrie réalisées pour les trois épaisseurs du PVC plastifié. .	147
B.8	(a) Courbes de calorimétrie obtenues pour les deux montée en température et pour chaque épaisseur du PPVC. (b) Agrandissement autour de la température de la transition vitreuse pour la seconde montée en température.	148
B.9	Courbes contraintes vraies-déformations vraies expérimentales obtenues lors d'essais de traction quasi-statique à 0.03 s^{-1} pour les trois épaisseurs ($\square$ TH1, $\triangle$ TH2, $\circ$ TH3).	150
B.10	Sensibilité à la température à 0.03 s^{-1} et 0.3 s^{-1} du (a) module élastique, (b) contrainte seuil et contrainte à rupture et (c) déformation seuil et élongation à rupture ($\square$ TH1, $\triangle$ TH2, $\circ$ TH3).	151
B.11	Courbes contraintes vraies-déformations vraies expérimentales obtenues lors d'essais de compression dynamique pour les trois épaisseurs ($\square$ TH1, $\triangle$ TH2, $\circ$ TH3). . . .	152
B.12	Sensibilité à la vitesse de déformation à -30°C , 23°C et 85°C du (a) module élastique, (b) de la contrainte seuil et (c) de la déformation seuil ($\square$ TH1, $\triangle$ TH2, $\circ$ TH3).	153
B.13	Courbe maîtresse du PPVC construite à -30°C en confondant les données obtenues pour les trois matériaux.	156
B.14	Observations MEB du PPVC effectuées sur la zone non-déformée d'une éprouvette de traction pour les trois épaisseurs.	157
B.15	Surface d'une bulle et agrandissement. Micrographies obtenues pour l'épaisseur TH2.	157
B.16	Présence de particules cubiques à la surface du matériau. Micrographie obtenue pour l'épaisseur TH2.	157
B.17	Observations MEB du PPVC. Les échantillons sont issus de la section utile d'une éprouvette de traction pour les trois épaisseurs.	158
B.18	Observations MEB du PPVC effectuées sur la zone déformée d'une éprouvette de traction pour l'épaisseur TH2.	158
B.19	Analyse de la composition chimique de différentes zones dans un échantillon d'épaisseur TH2.	159

Liste des tableaux

2.1	Comparaison des domaines de validité des différents modèles décrivant le module d'élasticité.	25
2.2	Comparaison des domaines de validité des différents modèles décrivant la contrainte seuil.	33
2.3	Propriétés matériaux du PC et du PMMA.	39
2.4	Comparaison des volumes d'activation opérationnels (en m ³) à 0 K.	41
2.5	Comparaison des domaines de validité des différents modèles décrivant le durcissement structural des matériaux polymères.	53
3.1	Propriétés matériau et paramètres du modèle.	62
5.1	Propriétés matériau et paramètres du modèle utilisés pour décrire le comportement thermomécanique du polycarbonate (PC) étudié par Ames <i>et al.</i>	96
5.2	Évolution de la température maximale et de la déformation plastique maximale en fonction du diamètre du projectile.	107
5.3	Évolution de la température maximale et de la déformation plastique maximale en fonction de la vitesse d'impact.	108
5.4	Évolution de l'augmentation de température maximale et de la déformation plastique maximale en fonction de la température initiale de la plaque.	109
5.5	Données initiales de chaque simulation correspondant au test d'impact normal d'une plaque circulaire par un projectile cylindrique à pointe sphérique.	109
5.6	Évolution de la contrainte minimale et maximale en fonction du coefficient de « mass-scaling » pour les cas adiabatique et isotherme.	114
5.7	Évolution de la déformation plastique maximale en fonction du coefficient de « mass-scaling » pour les cas adiabatique et isotherme.	117
5.8	Évolution de l'augmentation de température maximale en fonction du coefficient de « mass-scaling » pour le cas adiabatique.	118
5.9	Évolution du temps de calcul en fonction de la valeur du coefficient de « mass-scaling » en considérant le problème adiabatique.	118
B.1	Perte de masse associée à chaque étape de la dégradation du PVC plastifié.	146
B.2	Propriétés matériau et paramètres du modèle coopératif pour le PPVC.	156

Notations

Constantes universelles

k	Constante de Boltzmann
R	Constante des gaz parfaits
N_a	Nombre d'Avogadro

Indices

$\mathbb{X}^e$	Partie élastique du tenseur $\mathbb{X}$
$\mathbb{X}^{th}$	Partie thermique du tenseur $\mathbb{X}$
$\mathbb{X}^p$	Partie plastique du tenseur $\mathbb{X}$
$\mathbb{X}^{thp}$	Partie thermoplastique du tenseur ($=\mathbb{X}^{th}\mathbb{X}^p$)
$\mathbb{X}'$	Partie déviatorique de $\mathbb{X}$
x^{ref}	Scalaire x de référence

Tenseurs

$\mathbb{F}$	Gradient de déformation
$\mathbb{L}$	Gradient de vitesse
$\mathbb{D}$	Tenseur des taux de déformations
$\mathbb{W}$	Tenseur des taux de rotations
$\mathbb{R}$	Tenseur des rotations pures
$\mathbb{U}$	Tenseur des déformations pures droit
$\mathbb{V}$	Tenseur des déformations pures gauche
$\mathbb{T}$	Tenseur de Cauchy
$\mathbb{C}^e$	Tenseur des rigidités
$\mathbb{C}$	Tenseur de Cauchy-Green droit
$\mathbb{B}$	Tenseur des contraintes de rappel
$\mathbb{T}^*$	Tenseur des contraintes effectives
$\Delta\epsilon$	Tenseur des incréments de déformation

Scalars

β_{dil}	Coefficient de dilatation thermique
ρ	Masse volumique
β	Coefficient de Taylor-Quinney
Γ	Conductivité thermique
c_p	Chaleur spécifique
$\dot{q}$	Taux de chaleur
T	Température absolue
T_g	Température de transition vitreuse
T_f	Température d'écoulement
T_β	Température de la relaxation β
$\tan \delta$	Facteur de perte
E	Module élastique
μ	Module de cisaillement
ν	Coefficient de Poisson
C_R	Module caoutchoutique
N	Nombre de liaisons statiquement totalement étirées
λ_i	Élongation principale
σ_y	Contrainte seuil
σ_i, τ_i	Contrainte interne
τ_{iy}	Contrainte interne au seuil d'écoulement
τ	Contrainte effective équivalente
σ	Contrainte vraie équivalente
ε	Déformation vraie équivalente
$\dot{\varepsilon}$	Vitesse de déformation
m_i	Paramètre de Weibull
c_1^g, c_2^g	Paramètres de la loi WLF
ΔH_β	Énergie d'activation de la transition β
J	Déterminant du gradient de déformation élastique
s	Paramètre de sensibilité à la vitesse de déformation
Δt	Pas de temps
t	Temps
$E_i^{interne}$	Énergie interne
E_i^{def}	Énergie de déformation inélastique
V_a	Volume d'activation
n	Nombre de transitions élémentaires impliquées dans le processus de relaxation
ΔH_0	Énergie d'activation opérationnelle
V_0	Volume d'activation opérationnel
$\dot{\gamma}_0$	Constante pré-exponentielle
$\dot{\gamma}^p$	Déformation plastique équivalente
α_p	Coefficient de sensibilité à la pression
ψ	Énergie de déformation

Introduction générale

Parmi les nombreux matériaux utilisés de nos jours, les matériaux polymères présentent des propriétés mécaniques, thermiques diélectriques... , très variées et spécifiques à un polymère donné. La compréhension du comportement thermomécanique des polymères a fait l'objet de nombreuses recherches aussi bien expérimentales que théoriques, mathématiques ou numériques. Ainsi, ces dernières années, on a vu apparaître, dans la littérature, de nombreux modèles permettant de décrire le comportement thermomécanique des polymères. On peut classer ces différents modèles en deux grandes catégories : les modèles phénoménologiques et les modèles micromécaniques basés sur la physique des polymères. Les modèles phénoménologiques considèrent le comportement mécanique macroscopique du matériau. En revanche, les modèles micromécaniques sont basés sur l'étude des phénomènes physiques et thermomécaniques qui se produisent au cours de la déformation de ces matériaux.

La simulation numérique par Éléments Finis tient une place importante dans la société aussi bien pour les chercheurs que pour les ingénieurs. Elle s'est fortement développée au cours des dernières décennies grâce à l'augmentation des performances des ordinateurs, aux nombreux logiciels de simulation par Éléments Finis et par la volonté de réduire les coûts de développement (diminution du nombre d'essais et de prototypes onéreux). La simulation numérique par Éléments Finis permet de prévoir le comportement mécanique, thermique... , de systèmes, plus ou moins complexes, soumis à un état de chargement spécifique. Elle permet également d'optimiser une structure afin que cette dernière puisse répondre au cahier des charges visé. La précision des prévisions numériques dépend de la précision qui existe entre le modèle numérique et l'essai expérimental. Elle dépend également fortement de la loi de comportement utilisée pour décrire le comportement thermomécanique des polymères, ainsi que la calibration des paramètres de cette loi.

Durant ces trois années de recherche, nous nous sommes intéressés à la modélisation numérique de structures polymères. Deux modèles de comportement ont été proposés. Un premier modèle permettant de décrire le comportement des polymères en petites déformations est tout d'abord développé. Ce modèle est basé sur une approche phénoménologique. Intégré dans le logiciel de calcul CAST3M, le modèle est validé en petites déformations sur des essais de compression uniaxiale sur une large gamme de vitesses de déformation. De plus, il permet d'approximer deux paramètres thermomécaniques : la contrainte à l'interface de deux matériaux (contrainte interfaciale due au frottement) et le coefficient de Taylor-Quinney (fraction de travail plastique converti en chaleur). Un second modèle, plus riche que le précédent est également étudié. Ce modèle, développé au sein de notre équipe de recherche par Richeton *et al.* [Int. J. Solids Struct., 44(24), 7938 (2007)], est basée sur une approche micromécanique et permet de décrire le comportement des polymères amorphes en grandes déformations sur de larges gammes de vitesses de déformation et de températures. Ce second modèle a été intégré dans le logiciel de simulation par Éléments Finis ABAQUS/Explicit au travers d'un sous-programme utilisateur *VUMAT*. L'introduction du sous-programme *VUMAT* dans ABAQUS/Explicit a été validée pour des essais de traction et compression uniaxiaux pour une vitesse de déformation constante. Les capacités prévisionnelles du modèle ont été testées sur deux essais issus de la littérature et sollicitant le matériau polymère en grandes déformations. La première simulation numérique est un essai d'impact

normal d'une plaque polymère par un projectile hémisphérique. La seconde application est un essai de forgeage d'un cylindre polymère par une matrice cruciforme. Pour ces deux applications, une bonne concordance est obtenue entre les résultats expérimentaux et les prévisions numériques.

Ce mémoire est divisé en cinq chapitres. Le premier chapitre consiste en une étude bibliographique sur les matériaux polymères. Dans ce chapitre, la structure microscopique des polymères est présentée. Le comportement mécanique des polymères, en petites et grandes déformations, est analysé ainsi que la sensibilité de leur comportement à divers paramètres mécaniques, thermiques. . .

Le second chapitre constitue principalement un état de l'art des principaux modèles de comportement disponibles dans la littérature et permettant de décrire tout ou une partie (module d'élasticité, contrainte seuil, durcissement structural) du comportement mécanique des polymères. Ces différents modèles peuvent être phénoménologiques ou basés sur une approche micromécanique. Une extension du modèle d'Argon [Philos. Mag., 28(4), 839 (1973)], permettant de prévoir la contrainte seuil des polymères amorphes, est également proposée. Une analyse thermodynamique de différents modèles décrivant la contrainte seuil a été effectuée ce qui a permis de comparer l'extension du modèle d'Argon aux modèles de contrainte seuil les plus connus.

Dans le troisième chapitre, un modèle phénoménologique simplifié est proposé. Il offre une alternative aux modèles micromécaniques pour modéliser le comportement thermomécanique des polymères en petites déformations. Le modèle a été validé sur deux polymères semi-cristallins sollicités en compression uniaxiale sur une large gamme de vitesses de déformation. L'essai de compression uniaxiale a été modélisé en se basant sur le dispositif des barres d'Hopkinson. Une bonne corrélation entre prévisions numériques et données expérimentales est obtenue pour les deux polymères semi-cristallins. De plus, une estimation du coefficient de Taylor-Quinney et de la contrainte due au frottement entre le polymère et les barres de compression a pu être obtenue.

Dans le quatrième chapitre, la loi de comportement basée sur une approche micromécanique et permettant de modéliser le comportement des polymères amorphes sur de larges gammes de températures et de vitesses de déformation est présentée. Par la suite, la discrétisation temporelle et spatiale de cette loi ainsi que son introduction dans le sous-programme utilisateur *VUMAT* pour réaliser des simulations numériques sous ABAQUS/Explicit sont présentées. L'introduction numérique du modèle est validée en 2D et 3D par la simulation d'essais de traction et de compression uniaxiales, isotherme et adiabatique, à vitesse de déformation constante, avec, dans un premier temps, un élément, puis, avec plusieurs éléments. Dus à des problèmes d'instabilités et de non-convergence de la réponse mécanique pour plusieurs éléments, deux méthodes d'homogénéisation (par rapport à la géométrie du solide et par rapport au temps) ont été proposées afin de stabiliser la vitesse de déformation au cours du calcul. Les méthodes d'homogénéisation conduisant à de bons résultats, des applications ont été réalisées.

Le cinquième et dernier chapitre propose de tester les capacités prévisionnelles de la loi de comportement sur deux applications issues de la littérature. La première application consiste en un essai d'impact normal d'une plaque polymère par un projectile hémisphérique. La seconde application est un essai de forgeage d'un cylindre polymère par une matrice cruciforme. Ces deux essais permettent de tester les capacités de prévision de la loi de comportement en quasi-statique et en dynamique. Pour ces deux simulations, les prévisions numériques sont en accord avec les résultats expérimentaux. Des études de sensibilité portant sur divers paramètres ont également été réalisées. Ces différentes études ont mis en évidence la sensibilité de la réponse thermomécanique du polymère à plusieurs types de paramètres (géométriques, numériques, thermiques, mécaniques).

Le travail de modélisation et simulation numérique de cette thèse a été complété par une importante étude expérimentale mise en annexe. Cette dernière a consisté en la caractérisation expérimentale d'un poly(chlorure de vinyle) plastifié pour l'industrie automobile. Le matériau nous a été fourni sous forme de plaque avec trois épaisseurs différentes. Suite à des différences observées lors des tests thermomécaniques entre les trois épaisseurs, des observations microscopiques ont été réalisées. Les divers essais effectués nous ont permis de déterminer une épaisseur optimale pour l'application visée. Ce matériau était initialement prévu pour être utilisé pour les différentes applications simulées. Cependant, due à une température de transition vitreuse très basse, le matériau s'est révélé difficile à mettre en œuvre à température ambiante.

Chapitre 1

Microstructure et comportement des matériaux polymères

Nombreux sont les objets de la vie courante fabriqués, en partie ou totalement, à partir de matériaux polymères, tels que les emballages alimentaires, certaines pièces de véhicules automobiles ou encore les gaines électriques. Les matériaux polymères, communément appelés "plastiques", possèdent des propriétés physiques (mécaniques, thermiques, diélectriques...) qui dépendent du polymère envisagé et plus particulièrement de sa microstructure (composition chimique et arrangement moléculaire entre autres). Afin de comprendre le comportement complexe de ces matériaux, nous nous intéresserons à la structure/microstructure des polymères. Grâce à des considérations physico-chimiques, un lien sera établi entre leur comportement mécanique et leur microstructure.

1.1 De la molécule à la macromolécule : naissance des polymères

1.1.1 Structure des polymères

Le mot "polymère" trouve sa signification dans ses origines grecques. Formé de "polus" qui signifie "plusieurs" et "meros" qui signifie "parties", "polymère" se traduit littéralement par "composé de plusieurs parties". Un polymère est donc constitué d'un ensemble de macromolécules. Chaque macromolécule résulte de la répétition d'unités chimiques nommées monomères, reliées entre elles par des liens chimiques (liaisons de Van der Waals, hydrogène, ionique). Les monomères sont de longues chaînes carbonées auxquelles sont fixées des atomes (hydrogène, chlore, azote...) ou des groupements latéraux d'atomes plus ou moins complexes. Ces macromolécules peuvent être linéaires, ramifiées, réticulées ou encore enchevêtrées. Chacune de ces configurations est représentée sur la figure 1.1.

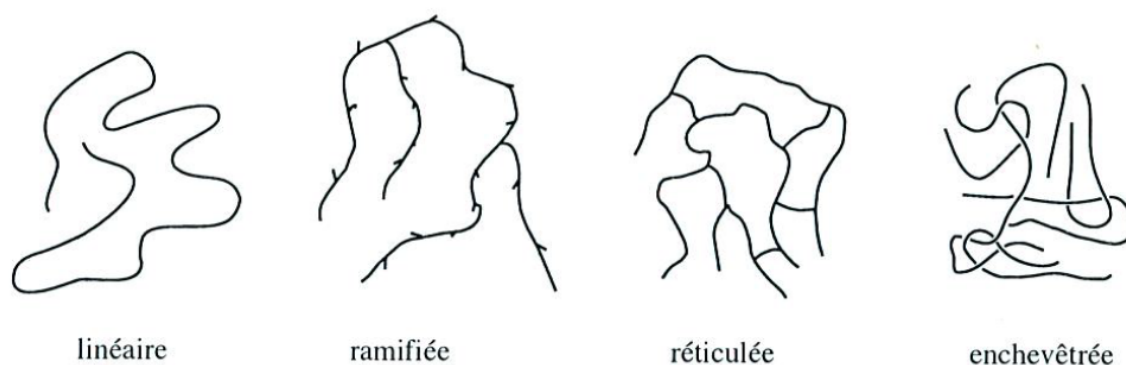


Figure 1.1 – Représentation schématique des différents types de macromolécules [1].

Des macromolécules possédant la même composition chimique peuvent présenter des comportements différents. De telles macromolécules sont appelées isomères. On distingue deux types d'isoméries : l'isométrie de configuration et l'isométrie de conformation. Les isométries de configuration (isoméries d'enchaînement, de structure, de tacticité) nécessitent la rupture de liaisons fortes. À l'inverse, l'isométrie de conformation n'affecte que les liaisons faibles.

1.1.1.1 Isomérisie de configuration

L'isomérisie de structure est principalement due à la présence de liaisons diènes. Lors de la polymérisation, les molécules vont s'enchaîner en des configurations de type *cis* ou de type *trans*, identifiées sur la figure 1.2, qui vont différer par leur degré de liberté et par leur comportement mécanique. En effet, une molécule ne comportant que des configurations *trans* va peu se déformer et donc va être plus rigide.

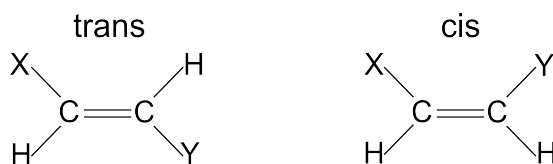


Figure 1.2 – Isomérisie de structure : configurations *trans* et *cis*.

La tacticité ou configuration stéréochimique est une autre isomérisie de configuration. Elle intervient lorsque les molécules de carbone sont réparties de façon asymétrique le long de la chaîne polymère.

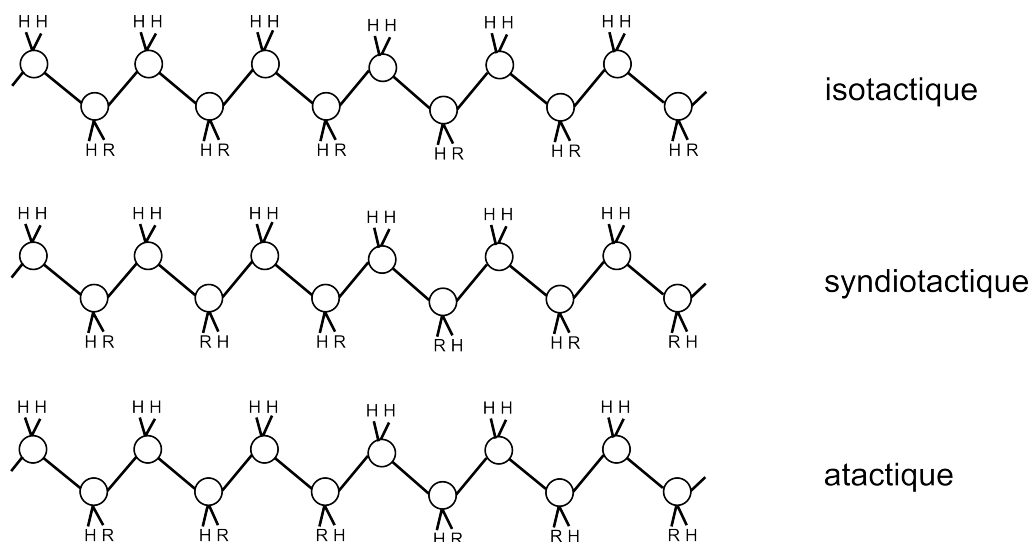


Figure 1.3 – Configurations stéréochimiques.

Les trois configurations stéréochimiques sont présentées sur la figure 1.3. Parmi elles, on distingue les configurations ordonnées, de type isotactique et syndiotactique, de la configuration aléatoire, dite atactique. La régularité de l'assemblage favorise la création de zones cristallines qui permettra au matériau d'avoir une plus grande résistance et rigidité. À l'inverse, une structure atactique rend difficile voire impossible la création d'un réseau cristallin. Dans ce cas, le matériau présentera une structure entièrement désordonnée. On dira alors que le matériau polymère présente une structure amorphe.

1.1.1.2 Isomérisie de conformation

La conformation définit l'arrangement spatial que les macromolécules adoptent en se repliant sur elles-mêmes ou par rotation libre autour des axes de liaison. À l'inverse des isomérisies de configuration, les isomérisies conformationnelles sont des phénomènes réversibles. On distingue quatre conformations, décrites sur la figure 1.4, qui diffèrent par l'énergie potentielle à fournir pour passer d'une conformation à une autre.

1.1.2 Les différentes classes de polymères

Les matériaux polymères peuvent être classés en différentes catégories selon leur structure chimique, leur mode d'élaboration ou encore leurs propriétés. On distingue trois catégories de matériaux polymères :

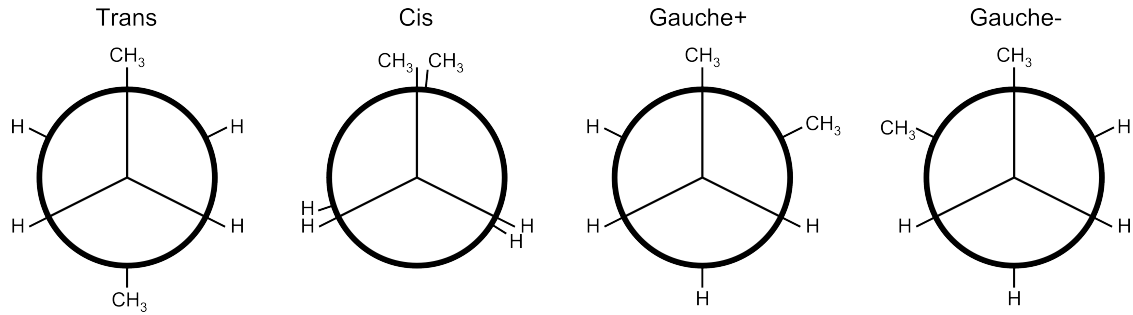


Figure 1.4 – Représentation de Newmann de différentes conformations.

- les thermoplastiques,
- les thermodurcissables,
- les élastomères.

1.1.2.1 Les thermoplastiques

Les polymères thermoplastiques se présentent sous la forme de macromolécules linéaires ou branchées. Ils présentent un comportement solide, rigide à basse température et deviennent malléables quand ils sont soumis à une élévation de température, ce qui permet de les mettre en forme aisément. Les thermoplastiques sont aisément recyclables [2–5] ce qui permet de les mettre en œuvre à plusieurs reprises. Cependant, après recyclage, les propriétés matériau du polymère changent. Ainsi, un tout nouveau matériau est obtenu.

Dues à des isoméries de configuration, certains polymères ont la particularité de pouvoir ordonner leurs macromolécules créant ainsi des zones cristallines. Les régions cristallines sont reliées entre elles par des zones amorphes où les segments de chaînes polymères se présentent de manière désordonnée et enchevêtrée. Les thermoplastiques présentant une structure cristalline et une structure amorphe sont appelés semi-cristallins, et ceux possédant seulement une structure désordonnée sont appelés amorphes.

De manière générale, les propriétés mécaniques et rhéologiques des polymères thermoplastiques sont fortement dépendantes de la vitesse de déformation et de la température. Outre ces deux paramètres et le type de molécule mis en jeu, la masse molaire et le taux de cristallinité vont également tenir un rôle important dans les propriétés mécaniques du polymère étudié.

1.1.2.2 Les thermodurcissables

Largement utilisé dans les secteurs aéronautique et spatial pour des applications dites "haute performance", les polymères thermodurcissables présentent une grande stabilité dimensionnelle et une très bonne tenue aux températures élevées contrairement aux thermoplastiques. De plus, ils possèdent d'excellentes propriétés mécaniques, thermiques et une bonne résistance aux attaques chimiques [6] qui sont dues à leur structure moléculaire fortement réticulée. Contrairement aux thermoplastiques, les polymères thermodurcissables sont mis en forme à température ambiante puis chauffés. En refroidissant, les thermodurcissables conservent leur structure moléculaire et leurs propriétés mécaniques. De ce fait, ces matériaux sont difficilement recyclables.

1.1.2.3 Les élastomères

Appelé aussi "caoutchouc", les élastomères présentent une structure 10 à 100 fois moins réticulée que les polymères thermodurcissables. Les élastomères peuvent être de nature thermodurcissable (réticulation chimique) ou thermoplastique (réticulation physique). Lorsqu'ils sont chauffés au-delà d'une température critique, appelée température de transition vitreuse, les thermoplastiques deviennent malléables et leur comportement est semblable à celui des élastomères.

1.1.3 Polymères amorphes

Les polymères amorphes, schématisés par la figure 1.5, sont caractérisés par une absence d'ordre dans l'arrangement des macromolécules. La grande flexibilité des chaînes polymères vont permettre aux macromolécules de se replier sur elles-mêmes et d'adopter différentes conformations. On parle alors de pelote statistique, car actuellement seule la statistique est capable de décrire cet état. Dans une telle conformation, les macromolécules vont s'enlacer, s'enchevêtrer créant ainsi des nœuds de réticulation ou des enchevêtrements. Lors de la solidification, les enchevêtrements vont modifier l'arrangement des chaînes. Ils vont également augmenter la viscosité de la matière fondue lors de l'écoulement.

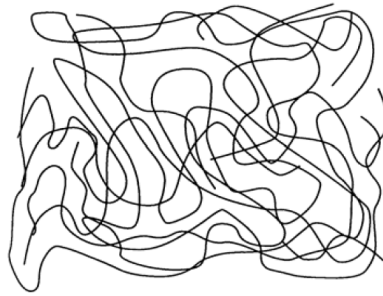


Figure 1.5 – Représentation schématique du caractère amorphe des polymères [7].

Au-delà d'une certaine température, appelée température de transition vitreuse, les segments de chaînes polymères vont pouvoir se mouvoir relativement facilement. Ils pourront bouger entre les points d'enchevêtrement qui joueront alors le rôle de nœuds de réticulation. Sous l'effet d'un chargement, l'entropie diminue, les chaînes polymères s'étendent et s'orientent pour adopter une conformation moins probable. Lorsque la charge est supprimée, l'entropie augmente et les macromolécules tendent à retrouver la conformation de type pelote statistique.

1.1.4 Polymères semi-cristallins

La cristallinité des polymères est abordée au travers des polymères semi-cristallins. Ceux-ci sont constitués de zones cristallines, possédant une grande régularité structurale, dispersées dans une matrice moléculaire amorphe comme représentés sur la figure 1.6.

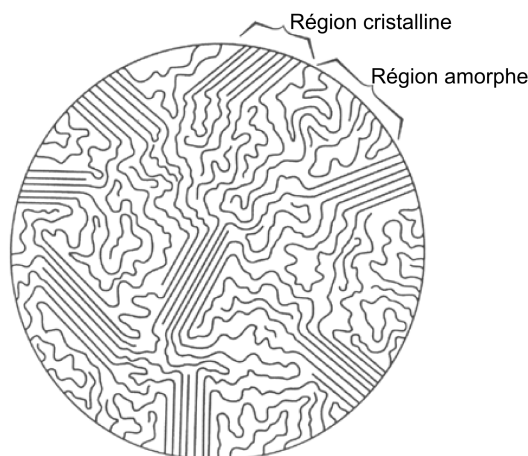


Figure 1.6 – Représentation schématique du caractère semi-cristallin des polymères.

En règle générale, un polymère ne cristallise jamais à 100 % pour des raisons d'encombrement stérique lors du repliement des chaînes. La proportion de phase cristalline ou taux de cristallinité se situe généralement entre 20 % et 80 % pour les polymères semi-cristallins les plus courants [8, 9].

1.1.4.1 Phase cristalline

La cristallisation des polymères est un phénomène complexe qui nécessite la mobilité des chaînes macromoléculaires. L'étude de la phase cristalline des polymères doit être menée à trois échelles de taille différente :

- la conformation des chaînes dans le cristal et leur assemblage,
- la lamelle cristalline (~ 10 à 30 nm d'épaisseur),
- le sphérolite (~ 1 mm de diamètre).

En l'absence d'interactions intermoléculaires fortes, chaque chaîne adopte la configuration la plus stable, c'est à dire celle de plus basse énergie. L'empaquetage des chaînes pour constituer la maille élémentaire se fait de manière à obtenir la compacité maximale en adoptant l'un des sept types possibles de réseaux cristallins : cubique, tétragonal, orthorhombique, hexagonal, trigonal, monoclinique et triclinique.

La cristallisation des polymères peut se produire à partir d'une solution diluée, d'un liquide au repos ou en mouvement. Dans le cas d'une solution diluée, suite à l'évaporation des solvants, on voit apparaître des monocristaux. Ils se présentent sous la forme de lamelles cristallines, de quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur. Étant donné que la longueur des chaînes macromoléculaires est généralement de l'ordre du micromètre, il a été admis que ces chaînes étaient plusieurs fois repliées sur elles-mêmes à l'intérieur des monocristaux comme montré sur la figure 1.7. Lorsqu'un polymère cristallise à partir de l'état fondu, la situation est plus complexe du fait de la coexistence des phases amorphe et cristalline. On admet généralement qu'un polymère semi-cristallin est composé d'un arrangement périodique de lamelles cristallines séparées par de la phase amorphe [10].

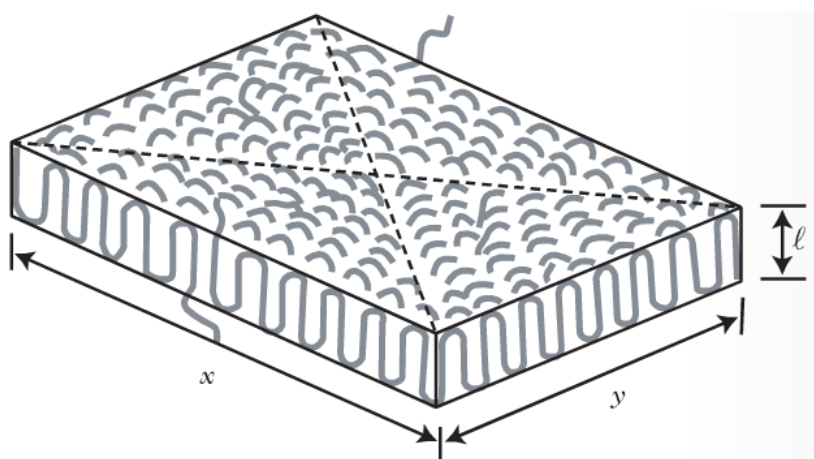


Figure 1.7 – Représentation schématisée d'une lamelle cristalline [10].

Dans les polymères synthétiques cristallisés à partir de l'état fondu ou de solution concentrée, la formation de monocristaux n'est jamais rencontrée. La structure cristalline la plus commune est le sphérolite dont la taille peut varier de quelques micromètres à plusieurs millimètres. Le sphérolite est un arrangement polycristallin dont les lamelles, distribuées radialement, croissent à partir du centre de sorte à occuper tout l'espace disponible. En trois dimensions, le sphérolite présente une symétrie sphérique. Elle est cylindrique en deux dimensions. L'aspect sphérique ou cylindrique se maintient jusqu'à la rencontre avec d'autres sphérolites. La direction radiale, qui est la direction de croissance, correspond toujours à une direction cristallographique particulière.

La cristallisation des polymères est le résultat de la combinaison de deux phénomènes : la germination et la croissance cristalline. La germination va être favorisée par une faible température de cristallisation car les germes seront nombreux et la viscosité élevée du milieu freinera la croissance cristalline. Les zones cristallines seront nombreuses mais de petites tailles. Dans le cas d'une température de cristallisation élevée, les germes dont la taille est inférieure à la taille critique sont détruits par l'agitation thermique. La croissance cristalline sera favorisée par la faible viscosité du milieu. Les

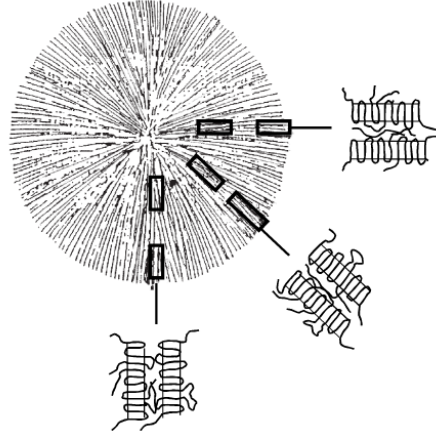


Figure 1.8 – Représentation schématique d'un sphérolite et de la structure des lamelles [10].

zones cristallines seront moins nombreuses mais plus grandes.

En raison d'une forte différence de densité entre les zones amorphes et cristallines, il est d'usage de définir le taux de cristallinité qui représente le pourcentage de matière cristalline dans un polymère semi-cristallin. Celui-ci peut s'exprimer en termes de fraction massique ϕ_m ou de fraction volumique ϕ_v :

$$\phi_v = \frac{\text{volume des domaines cristallins}}{\text{volume total}} \quad (1.1)$$

$$\phi_m = \frac{\text{masse des domaines cristallins}}{\text{masse totale}}. \quad (1.2)$$

Due à la relation qui lie la masse et le volume d'un matériau ($M = \rho V$), les taux de cristallinité massique ϕ_m et volumique ϕ_v sont proportionnels :

$$\phi_m = \frac{\rho_c}{\rho} \phi_v \quad (1.3)$$

avec ρ et ρ_c , respectivement la masse volumique totale et cristalline d'un polymère donné.

Les méthodes les plus couramment utilisées pour déterminer le taux de cristallinité d'un polymère sont :

- la diffraction des rayons X,
- la microscopie électronique à transmission ou à balayage,
- la spectroscopie infrarouge,
- la dilatométrie,
- et l'analyse calorimétrique différentielle (DSC : *Differential Scanning Calorimetry*).

La diffraction des rayons X apparaît comme une méthode de choix dans l'étude de la cristallinité d'un matériau donné étant donné la propriété des cristaux à diffracter les rayons X. La méthode expérimentale la plus couramment utilisée en diffraction des rayons X est la diffractométrie à compteur. Elle consiste à mesurer l'intensité des rayons diffractés en fonction de l'angle que fait le rayonnement X avec la normale au plan de l'échantillon.

La microscopie électronique permet d'observer les sphérolites et de déterminer leur répartition et leur orientation dans la structure polymère. De plus, la microscopie électronique à transmission permet d'observer les lamelles cristallines et de caractériser l'arrangement des molécules dans le réseau cristallin. Ainsi, la diffraction des électrons sur ce réseau conduit à une loi d'évolution similaire à celle obtenue pour la diffraction des rayons X.

La spectroscopie infrarouge permet de caractériser rapidement le taux de cristallinité des polymères semi-cristallins. Elle est basée sur les intensités relatives de bandes spécifiques de la phase amorphe

ou de la phase cristalline. Cependant, un étalonnage utilisant une autre technique (diffraction par rayons X) est toutefois nécessaire. Le rayonnement infrarouge transmis par l'échantillon est reçu par un détecteur. Le spectre infrarouge est alors calculé en utilisant la transformée de Fourier du signal enregistré.

La dilatométrie consiste à mesurer la variation du volume spécifique du polymère lorsque la température augmente. Au passage d'une transition, le volume spécifique varie.

L'analyse calorimétrique différentielle consiste à chauffer un échantillon à vitesse modérée (de 5 à 20 K min⁻¹) et à analyser l'évolution du flux de chaleur en fonction de la température. Au passage d'une transition dans le matériau, on constate l'apparition de pics (endothermique ou exothermique) sur le thermogramme de l'échantillon testé. À partir de l'aire du pic exothermique correspondant à la cristallisation, on déduit le taux de cristallinité du matériau.

1.1.4.2 Paramètres influençant la cristallinité

Afin de pouvoir cristalliser, les matériaux polymères doivent présenter une structure moléculaire d'une grande régularité. Plusieurs paramètres peuvent influencer la structure cristalline et le taux de cristallinité :

- **La microstructure :**

La grande régularité du polymère dépend avant tout de la configuration dans laquelle celui-ci se trouve. En effet, seules les macromolécules isotactiques et syndiotactiques pourront s'aligner régulièrement les unes par rapport aux autres et former ainsi un réseau cristallin. Des chaînes linéaires ayant des groupements latéraux de petites tailles vont favoriser la cristallisation du polymère. En revanche, la présence de branchements et de ramifications va entraver la cristallisation. Les polymères de faible masse moléculaire vont cristalliser plus facilement que ceux ayant une masse moléculaire élevée. Ce phénomène est probablement dû au fait que les petites molécules ont une capacité de mouvement plus importante. Elles peuvent ainsi s'aligner plus aisément.

- **La vitesse de refroidissement :**

La température de refroidissement va jouer un rôle primordial. En effet, à l'état fondu, les macromolécules se trouvent dans un état désordonné. Une faible vitesse de refroidissement va permettre aux macromolécules de s'organiser, de s'aligner et de cristalliser. En cas de refroidissement important du polymère (trempe dans de l'azote liquide, par exemple), les macromolécules n'ont pas le temps de se réorganiser et se retrouvent figées dans un état amorphe [7, 9].

- **Les agents extérieurs :**

La présence de plastifiants dans un polymère ayant la capacité de cristalliser va diminuer le taux de cristallisation. En effet, les additifs ont la propriété de séparer les chaînes les unes des autres, modifiant ainsi la structure macromoléculaire du polymère [7].

- **Les contraintes mécaniques :**

Certains matériaux polymères peuvent cristalliser quand ils sont soumis à de fortes contraintes mécaniques (extrusion ou injection dans un moule d'un polymère fondu, étirage d'un polymère en phase solide, par exemple). Les contraintes mécaniques peuvent orienter les molécules et augmenter le taux de cristallinité. C'est le cas du caoutchouc naturel réticulé, amorphe à faible déformation qui peut devenir jusqu'à 25 % cristallin lorsqu'il est étiré d'environ 600 % [11].

1.2 Comportement et propriétés thermomécaniques des polymères

Le comportement d'un polymère donné est fortement dépendant de sa microstructure qui elle-même est influencée par les conditions de température et d'utilisation du matériau. Il a été mentionné précédemment que les polymères subissaient un changement d'état au passage d'une température appelée température de transition vitreuse. Bien que la connaissance de cette transition soit primordiale dans l'étude du comportement du matériau, d'autres phénomènes de relaxation influencent le comportement mécanique des polymères.

1.2.1 Phénomènes de relaxation chez les matériaux polymères

Au passage de températures caractéristiques, on va observer des modifications dans le comportement et les propriétés thermomécaniques des matériaux polymères. Ces températures caractéristiques sont appelées températures de relaxation. Elles sont dénotées α , β , γ , ... au fur et à mesure que la température décroît. Les phénomènes de relaxation sont associés à des mouvements de complexité croissante au fur et à mesure que la température augmente.

Divers essais mécaniques permettent de mettre en évidence les températures de relaxation et de transition du matériau. Parmi eux, on distingue l'analyse mécanique dynamique (AMD ou DMA pour *Dynamic mechanical analysis*) qui permet également de caractériser la viscoélasticité et les sensibilités à la vitesse de déformation et à la température de propriétés mécaniques d'un matériau donné.

1.2.1.1 Mise en évidence des températures de relaxation : l'analyse mécanique dynamique

Une viscoanalyse consiste à appliquer une déformation sinusoïdale très faible, de fréquence f , à un échantillon et à mesurer la force résultante. Les différents dispositifs de mesure (cisaillement, flexion 3 points, traction, compression) dépendent du matériau étudié. Pour une fréquence donnée, une large plage de températures est balayée pour une vitesse de chauffe de l'ordre de quelques degrés par minute. On peut également réaliser, pour une température donnée, un balayage en fréquence. Une courbe représentative d'un essai de DMA pour un polymère amorphe est présentée sur la figure 1.9.

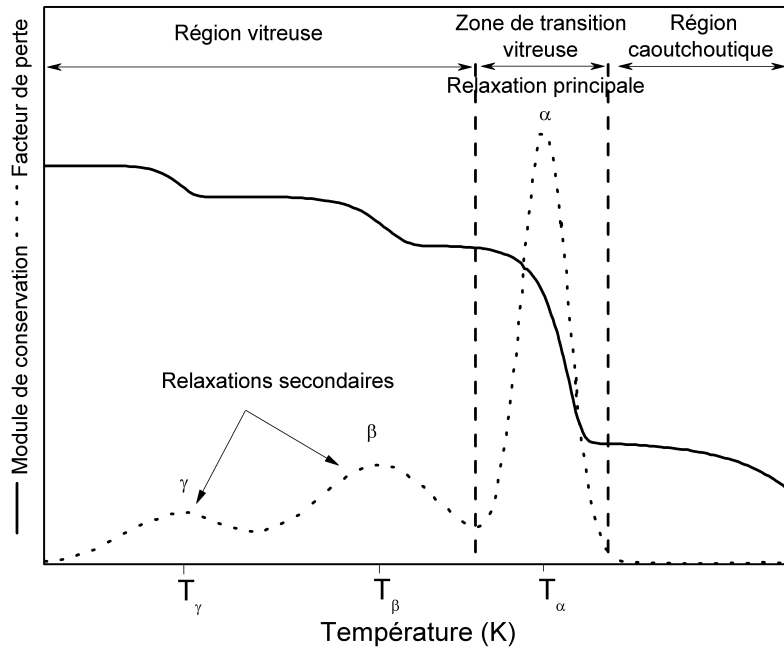


Figure 1.9 – Courbes représentatives d'un essai de DMA d'un polymère amorphe [12]. Identification des différentes transitions, températures et régions caractéristiques des polymères.

L'amplitude de la force et de l'allongement ainsi que la différence de phase entre les deux signaux permettent de déterminer les propriétés viscoélastiques du matériau :

- le module d'élasticité complexe E^* ou le module de cisaillement complexe G^* , avec :

$$E^* = E' + iE'' \text{ ou } G^* = G' + iG'', \quad (1.4)$$

avec E' ou G' le module de conservation, et E'' ou G'' le module de perte ou de dissipation.

- le facteur de perte, $\tan \delta$, correspondant au rapport E''/E' ou G''/G' .

Le module de conservation E' , partie réelle du module complexe E^* , caractérise la rigidité du matériau viscoélastique. Le module de conservation est proportionnel à l'énergie conservée et récupérée pendant le cycle.

Le module de perte E'' , partie imaginaire du module complexe E^* , est proportionnel à l'énergie dissipée dans le matériau pendant un cycle. Il traduit le caractère visqueux du matériau.

L'angle de phase δ représente le déphasage entre la contrainte et la déformation. Le facteur de perte $\tan \delta$ est le rapport entre le module de perte et le module de conservation. Il est utilisé pour évaluer les pertes d'énergie par rapport à l'énergie restituée. Il définit l'absorption mécanique ou le frottement interne d'un système viscoélastique. Un matériau purement élastique aura un décalage de phase nul tandis que pour un matériau purement visqueux $\delta = \pi/2$. Dans le cas d'un matériau viscoélastique, δ varie entre 0 et $\pi/2$.

La dépendance à la température du facteur de perte permet de mettre en évidence et de localiser les différentes relaxations du polymère, identifiées sur la figure 1.9. La température de transition vitreuse correspond au pic de plus forte intensité du facteur de perte. Les autres pics correspondent à d'autres relaxations, appelées relaxations secondaires du polymère.

1.2.1.2 Relaxation principale α

Dans le cas d'un polymère amorphe, la relaxation principale α est confondue avec la transition vitreuse. Celle-ci est un phénomène qui affecte uniquement les zones amorphes d'un matériau polymère donné (polymère amorphe ou semi-cristallin). Au passage de la température de transition vitreuse, notée T_g , les propriétés physiques et mécaniques du matériau (volume spécifique, densité, viscosité, module élastique, contrainte seuil...) vont subir des modifications. Ainsi, la connaissance de la transition vitreuse est d'une importance primordiale pour l'utilisation d'un matériau donné. Avant la température de transition vitreuse, le matériau va présenter un comportement vitreux et cassant, au-delà, il devient très ductile et pourra aisément être mis en forme. Ainsi, la transition vitreuse conditionne le domaine d'utilisation d'un matériau.

La transition vitreuse revêt un caractère cinétique. De ce fait, elle ne correspond pas à une température spécifique mais s'étend sur un domaine de température plus ou moins large. De manière générale, on appelle température de transition vitreuse, la température à laquelle le facteur de perte, $\tan \delta$, présente son extremum global comme le montre la figure 1.9. La transition vitreuse correspond à un domaine de température compris entre la région vitreuse et la région caoutchoutique. Le début de la transition vitreuse est marqué par l'apparition de mouvements coopératifs de relativement grande amplitude de la chaîne principale dans le matériau. Ces mouvements sont essentiellement constitués de changements conformationnels.

La transition vitreuse influence bien des propriétés (thermiques, diélectriques, mécaniques, optique...). Cependant, de nombreux paramètres influencent eux-mêmes la transition vitreuse. Les plus notables sont :

- la flexibilité des chaînes,
- la taille et la polarité des groupes latéraux,
- la masse moléculaire,
- la vitesse de sollicitation.

La flexibilité des chaînes macromoléculaires est déterminée par l'aisance avec laquelle une rotation peut intervenir autour d'une liaison simple appartenant au squelette principal. La température de transition vitreuse augmente lorsque :

- la flexibilité des chaînes diminue,
- la taille et la polarité des groupes latéraux augmentent,
- la masse moléculaire moyenne augmente,
- la cristallinité augmente,
- la vitesse de sollicitation augmente.

La configuration stéréochimique va également influencer la température de transition vitreuse du matériau.

1.2.1.3 Relaxations secondaires

Les relaxations secondaires se manifestent à des températures inférieures à celle de la relaxation principale α . Elles sont dénommées $\beta, \gamma, \delta \dots$ par ordre d'apparition lorsque l'on abaisse la température à partir de la relaxation principale. Les relaxations secondaires correspondent à différents mouvements de la chaîne principale et des groupements latéraux comme indiqué sur la figure 1.10. Les mouvements étant de faible amplitude, la dissipation liée à ces relaxations est plus faible que celle liée à la relaxation vitreuse. Ainsi, au passage de ces transitions, la variation du module de conservation reste faible. Les mouvements des groupes latéraux nécessitant plus d'énergie que les mouvements locaux de la chaîne principale, les relaxations correspondantes se produiront à des températures plus élevées.

Les relaxations secondaires sont des processus thermiquement activés. Ainsi, elles peuvent être décrites par la loi d'Arrhénius :

$$\langle \tau \rangle = \tau_0 \exp \left(-\frac{E_a}{RT} \right), \quad (1.5)$$

avec $\langle \tau \rangle$ le temps de relaxation moyen, E_a l'énergie d'activation, R la constante des gaz parfaits, T la température absolue et τ_0 une constante pré-exponentielle.

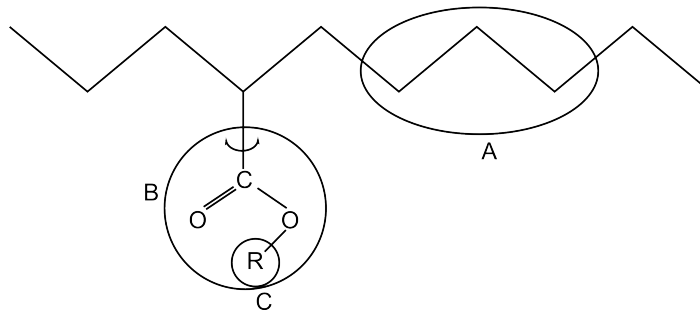


Figure 1.10 – Représentation des différents mouvements moléculaires qui interviennent dans le processus de relaxation secondaire d'un polymère amorphe [13].

La figure 1.10 illustre les trois types de mouvements pouvant apparaître à des températures inférieures à la transition vitreuse et étant à l'origine des relaxations secondaires [13]. Les mouvements de type A sont attribués aux mouvements locaux des segments de chaînes de la chaîne principale. Le mouvement de type B est relié à la rotation du groupe latéral autour de la chaîne principale. Le groupe latéral bouge d'une position d'équilibre à une autre sans que sa rotation ait besoin d'être complétée. Ce type de mouvement requiert une certaine coopérativité de mouvement avec la chaîne principale. Le mouvement de type C est un mouvement interne au groupe latéral sans interaction avec la chaîne principale.

1.2.2 Comportement mécanique des polymères en petites déformations

Selon le domaine de température envisagé, le polymère présentera un comportement de type solide rigide, avec un module de l'ordre du gigapascal (GPa) à basses températures, ou un comportement de type caoutchoutique, avec un module de l'ordre du mégapascal (MPa) à des températures élevées. Les différents phénomènes de relaxation sont dus à des mouvements localisés et thermiquement activés d'atomes ou de groupes d'atomes.

Le logarithme du module de conservation va décroître au passage des diverses relaxations du matériau. Entre deux relaxations, il peut être considéré comme constant. Au passage de la température de transition vitreuse, une chute de plusieurs décades du module de conservation est observé. Lorsque le facteur de perte est faible, le module de conservation peut être assimilé au module d'Young [1].

La région vitreuse définit une élasticité d'origine énergétique. Elle est caractérisée par des modifications réversibles des distances atomiques et des angles de valence des liaisons chimiques. Les seules libertés de mouvements moléculaires correspondent aux oscillations des atomes autour de leur position d'équilibre. Lorsque la température croît, le module de conservation diminue légèrement, comme on peut le voir sur la figure 1.9. Cette diminution est due à une agitation moléculaire des segments de

chaînes polymères. Dans ces zones de températures, appelées relaxations secondaires, les segments de chaînes peuvent se mouvoir localement. Dans le domaine de température caractérisé par la région vitreuse, le matériau polymère présente un comportement solide, rigide. En fonction de la température, le polymère pourra présenter une rupture de type fragile ou ductile.

Le domaine caoutchoutique définit une élasticité d'origine entropique. Il se situe après la zone de ramollissement ou zone de transition vitreuse et avant la zone d'écoulement de la matière ou de fusion des cristallites dans le cas d'un polymère semi-cristallin. Il est caractérisé par une faible dépendance du module à la température. Dans cette gamme de températures, les mouvements de rotation et de translation des segments de chaînes sont possibles. Ainsi, les macromolécules peuvent prendre une forme étirée sous l'effet de la sollicitation qui correspond à une conformation plus improbable d'où une diminution de l'entropie. Sous l'effet de l'agitation thermique, les segments de chaînes cherchent à adopter une conformation de plus forte entropie de type pelote statistique.

La région de transition vitreuse correspond à un domaine de température compris entre les régions vitreuse et caoutchoutique. Elle s'étend sur un domaine de température plus ou moins important suivant le polymère considéré. Dans la zone de transition vitreuse ou zone de ramollissement quand la température augmente, les mouvements de segments de chaînes sont facilités et plus nombreux que dans le domaine vitreux. Les mouvements macromoléculaires sont rendus possible s'il y a suffisamment d'espace libre dans le matériau polymère, autrement dit, si le volume libre est suffisant pour permettre aux segments de chaînes de se repositionner.

1.2.2.1 Principe de superposition temps-température

En mesurant le module de relaxation $E(t)$ lors d'essais de fluage, Leaderman [14] a mis en évidence une relation entre le temps de sollicitation et la température pour des matériaux viscoélastiques (la bakélique et un matériau caoutchoutique). En effet, il a constaté que le comportement d'un matériau viscoélastique à hautes températures pour des temps de sollicitation courts est équivalent à celui du même matériau à basses températures pour des temps de sollicitation plus longs. Des résultats similaires sont observés lors d'essais de relaxation et de DMA.

L'analyse de ces résultats montre qu'à basses températures il faudrait des temps de mesure extrêmement long pour obtenir une courbe complète. À l'inverse, pour des températures élevées, seuls des temps de mesure très courts sont nécessaires pour obtenir cette courbe. Or, de telles mesures sont difficiles à mettre en œuvre.

Pour une plage de fréquences réduite et un large domaine de températures, il est possible de construire une courbe complète à une température de référence grâce à la superposition et à la translation des différents segments de courbe obtenus comme le montre la figure 1.11. La courbe ainsi constituée est appelée courbe maîtresse.

À chaque translation des segments de courbe, on mesure l'écart de temps par rapport à la température de référence T_r . Le principe d'équivalence temps-température s'exprime par le biais du module de relaxation par la relation :

$$E(T_r, t) = E\left(T, \frac{t}{a_T}\right), \quad (1.6)$$

où t et T représente respectivement un temps et une température donnés. Cette relation indique que le module mesuré à la température T_r et au temps t est égal à celui calculé à la température T mais au temps t/a_T . Ainsi, un changement de température équivaut à appliquer un facteur multiplicatif à l'échelle du temps. L'expression du facteur de translation est donc donnée par la relation :

$$\log a_T = \log f - \log f_r. \quad (1.7)$$

1.2.2.2 Équation WLF

L'obtention d'une courbe maîtresse ne peut se faire qu'après avoir choisi une température de référence. Williams, Landel et Ferry [16] ont montré, pour une large variété de polymères, de solutions de polymères, de liquides de formation de verres organiques et de verres minéraux dont le polystyrène et le polyisobutylène, que si la température de référence était judicieusement choisie, alors il existait

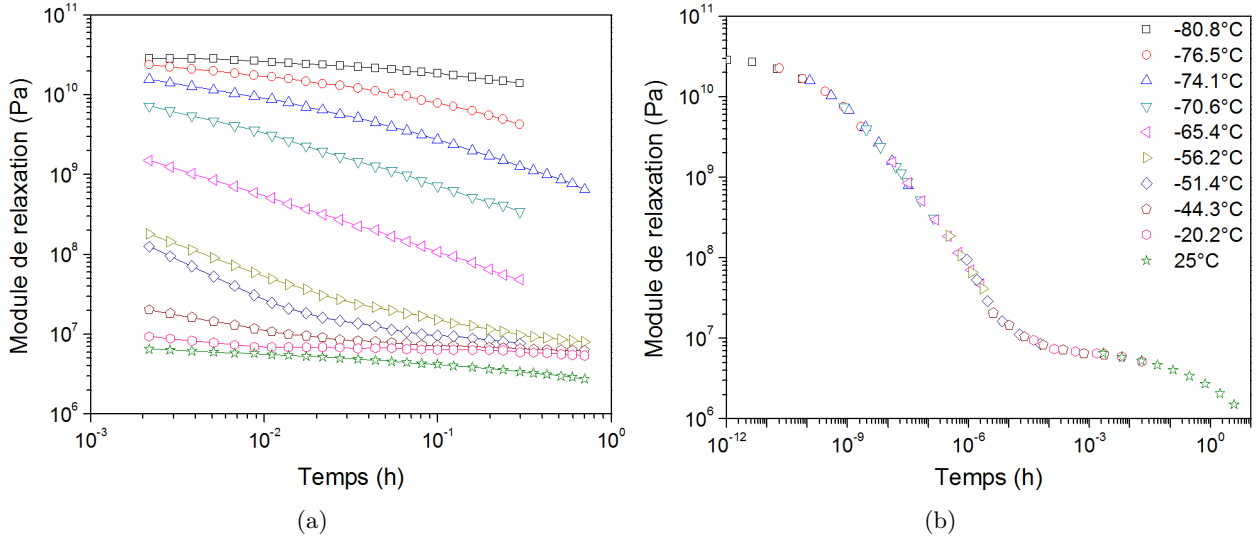


Figure 1.11 – (a) Essais de fluage et (b) courbe maîtresse construite à 25 °C pour un polyisobutylène. Données expérimentales provenant de Catsiff et Tobolsky [15].

une relation empirique entre la température et le facteur de transition. Dans le cas où la température de référence est égale à la température de transition vitreuse T_g , la relation s'écrit :

$$\log a_T = \frac{-c_1^g(T - T_g)}{c_2^g + T - T_g}, \quad (1.8)$$

où c_1^g et c_2^g sont deux constantes qui dépendent du matériau et de la température de référence. Cette relation, communément appelée équation WLF, trouve sa justification dans la théorie du volume libre développée par Cohen et Turnbull [17, 18]. Le réarrangement moléculaire des atomes ou segments de chaînes est conditionné, au niveau microscopique, par la présence de places vacantes de taille suffisante. Le volume libre v_f est défini comme étant la différence entre le volume moyen par atome du liquide $\bar{v}$ et le volume atomique de Van der Waals v_0 :

$$v_f = \bar{v} - v_0. \quad (1.9)$$

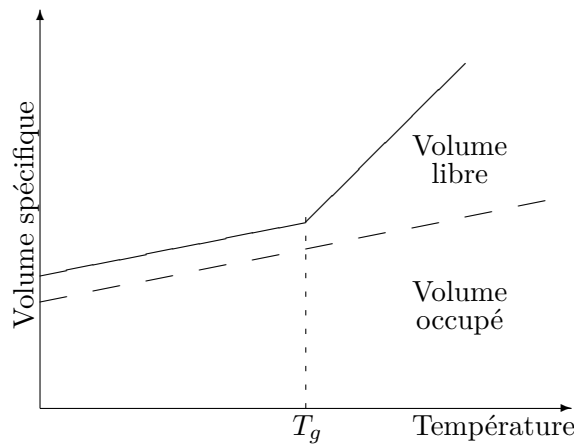


Figure 1.12 – Représentation schématique de la théorie du volume libre pour un polymère amorphe.

La figure 1.12 montre une représentation schématique de la division du volume spécifique du polymère en volume libre et volume occupé. Il est montré que le volume occupé augmente linéairement avec la température. En revanche, après la température de transition vitreuse, le volume libre augmente considérablement, ce qui suggère qu'un processus moléculaire contrôle le comportement viscoélastique.

La dépendance à la température du volume libre est prise comme étant la différence entre le coefficient de dilatation thermique α_t avant et après la température de transition vitreuse :

$$v_f(T) = v_f^g + \alpha_t(T - T_g), \quad (1.10)$$

où v_f^g représente la part de volume libre à la température de transition vitreuse T_g . L'équation WLF peut être retrouvée de manière très simple en introduisant deux équations intermédiaires.

En terme de viscosité, le facteur de translation est donné par :

$$a_T = \frac{\eta(T)}{\eta(T_g)}. \quad (1.11)$$

On introduit l'équation de la viscosité de Doolittle [19] qui relie la viscosité au volume libre :

$$\eta(T) = A \exp \left(\frac{B}{v_f(T)} \right), \quad (1.12)$$

où $\eta(T)$ représente la viscosité et A, B sont deux constantes. En combinant les équations 1.11 et 1.12, l'expression du facteur de translation devient :

$$\ln a_T = \ln \frac{\eta(T)}{\eta(T_g)} = B \left(\frac{1}{v_f(T)} - \frac{1}{v_f^g} \right). \quad (1.13)$$

En combinant les équations 1.10 et 1.13, on obtient :

$$\log a_T = \frac{\left(\frac{-B}{\ln 10 v_f^g} \right) (T - T_g)}{\left(\frac{v_f^g}{\alpha_t} \right) + T - T_g}, \quad (1.14)$$

ce qui correspond à l'équation WLF (équation 1.8). Les paramètres c_1 et c_2 sont des constantes identifiées à une température donnée. À la température de transition vitreuse, Williams, Landel et Ferry [16] ont déterminé c_1^g et c_2^g comme étant des constantes universelles égales à :

$$\begin{cases} c_1^g \sim -17.44 \\ c_2^g \sim 51.6 \text{ } ^\circ\text{C} \end{cases}. \quad (1.15)$$

Dans la pratique, il est préférable de déterminer expérimentalement les facteurs de translation et d'en déduire les paramètres de la loi WLF. Dans le cas des polymères thermoplastiques amorphes, l'équation WLF n'est valable que dans un domaine de température compris entre T_g et $T_g + 100 \text{ } ^\circ\text{C}$. Dans ce domaine de température, les polymères amorphes sont très déformables. Au-delà, le matériau s'écoule.

1.2.3 Comportement mécanique des polymères en grandes déformations

Les propriétés mécaniques des matériaux polymères sont beaucoup plus sensibles aux agents extérieurs que les métaux. En particulier, le comportement des polymères est fortement influencé par la température et par la vitesse de déformation.

La figure 1.13 présente différents comportements mécaniques pouvant être observés chez les matériaux polymères. On peut passer du comportement décrit par la courbe (a) à celui décrit par la courbe (d) soit en augmentant la température soit en diminuant la vitesse de déformation.

Quatre comportements distincts peuvent être identifiés. La courbe (a) présente le comportement du matériau à basses températures ou grandes vitesses de déformation. La contrainte augmente linéairement avec la déformation jusqu'à la rupture fragile du matériau. En augmentant la température ou en diminuant la vitesse de déformation, le matériau va présenter un seuil d'écoulement comme montré

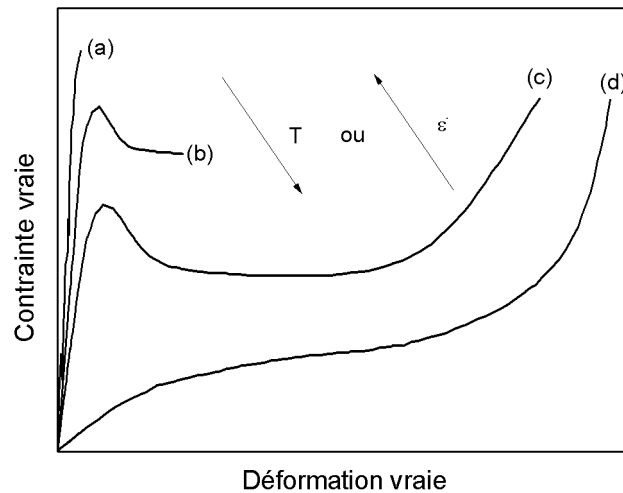


Figure 1.13 – Courbes de comportement caractéristiques des matériaux polymères [12].

sur les courbes (b) et (c). Au-delà de la contrainte seuil, un adoucissement plastique est observé. Ce phénomène, généralement relié au phénomène de striction dans le cas d'un essai de traction uniaxiale, traduit une rupture ductile du matériau. Durant la striction, les segments de chaînes se réorientent et s'alignent suivant la direction de l'effort appliqué. Due à l'agitation moléculaire, la température va augmenter au sein du matériau. Quand les segments de chaînes se sont alignés, le matériau se rigidifie et un durcissement structural est observé avant la rupture ductile du matériau. La courbe (d) de la figure 1.13 représente le comportement typique d'un élastomère, lorsque le polymère amorphe est à une température supérieure à la température de transition vitreuse. Un tel état de déformation est caractérisé par une importante extension des segments de chaînes polymères et l'absence de striction. Au cours de la déformation, les segments de chaînes polymères s'alignent et une cristallisation du matériau est possible. Comme dans le cas de la courbe (c), un important durcissement structural est observé avant la rupture.

Le comportement des polymères est fortement dépendant de l'architecture moléculaire ainsi que des conditions environnementales et des conditions d'utilisation. Les principaux paramètres influençant le comportement des polymères sont brièvement décrits par la suite.

1.2.3.1 Dépendance à l'architecture moléculaire

La figure 1.14 présente le comportement en traction de divers polymères, amorphes (polycarbonate (PC), poly(chlorure de vinyle) (PVC)) et semi-cristallins (poly(éther éther cétone) (PEEK), polyamide 6 (PA6), polypropylène (PP), polyéthylène (PE), poly(tétrafluoroéthylène) (PTFE)). On constate que le comportement mécanique en grandes déformations est semblable pour tous les polymères. Après le domaine viscoélastique initial, on observe un comportement transitoire au niveau du seuil d'écoulement suivi d'une déformation plastique, qui traduit un durcissement structural et une réorientation des chaînes polymères dans la direction de l'effort. Suite à une déformation plus ou moins importante, il y a rupture du matériau.

À une température et une vitesse de déformation données, chaque polymère va se présenter dans un état moléculaire bien particulier. Pour les polymères dont la phase amorphe présente un comportement vitreux à la température de l'essai, comme le PEEK, le PA6, le PC et le PVC, on observe une limite élastique marqué par un maximum local de la contrainte seuil suivi d'un adoucissement plastique. En revanche, pour les polymères semi-cristallins dont la phase amorphe présente un comportement caoutchoutique tel que le PP, le PE et le PTFE, le comportement du matériau passe progressivement du domaine viscoélastique au domaine viscoplastique.

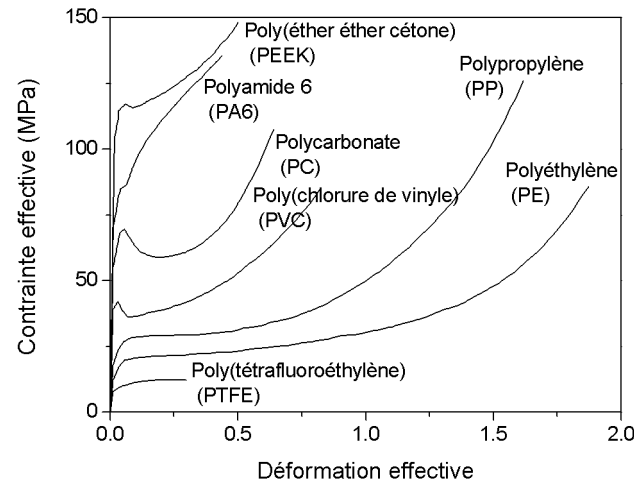


Figure 1.14 – Courbes contrainte effective-déformation effective de divers polymères obtenues à 25 °C et pour une vitesse de déformation de 10^{-3} s^{-1} [20].

1.2.3.2 Dépendance à la température

Le comportement d'un poly(méthacrylate de méthyle) (PMMA) testé à vitesse de déformation constante pour une large gamme de températures est représenté sur la figure 1.15.

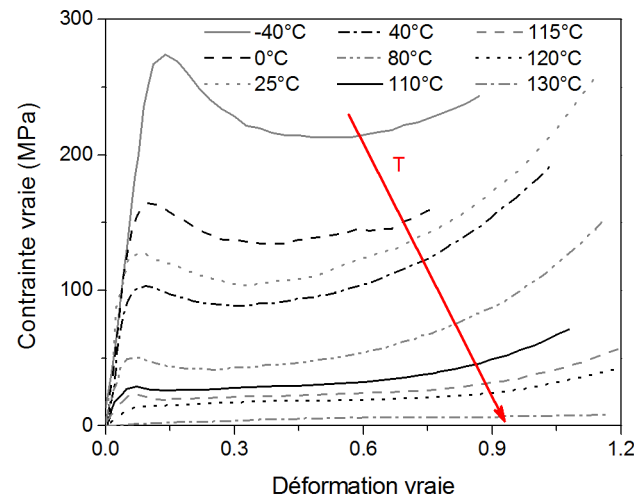


Figure 1.15 – Influence de la température sur le comportement mécanique d'un PMMA testé à une vitesse de déformation constante de 10^{-2} s^{-1} . Données expérimentales provenant de Richeton *et al.* [21].

On a pu voir précédemment, sur la figure 1.11, que le module d'élasticité était fortement dépendant de la température. Sur la figure 1.15, on peut noter que la contrainte seuil est également fortement dépendante de la température. En effet, le seuil d'écoulement plastique diminue au fur et à mesure que la température augmente. De plus, l'amplitude de l'adoucissement plastique diminue et le durcissement structural tend vers la courbe caractéristique du comportement hyperélastique (courbe à 130 °C). Ainsi, le comportement du polymère passe progressivement de l'état vitreux à l'état caoutchoutique au passage de la T_g .

1.2.3.3 Dépendance à la vitesse de déformation

Le comportement des polymères est également fortement dépendant de la vitesse de déformation. La figure 1.16 présente le comportement d'un PMMA testé à 25 °C sur une large gamme de vitesses de déformation.

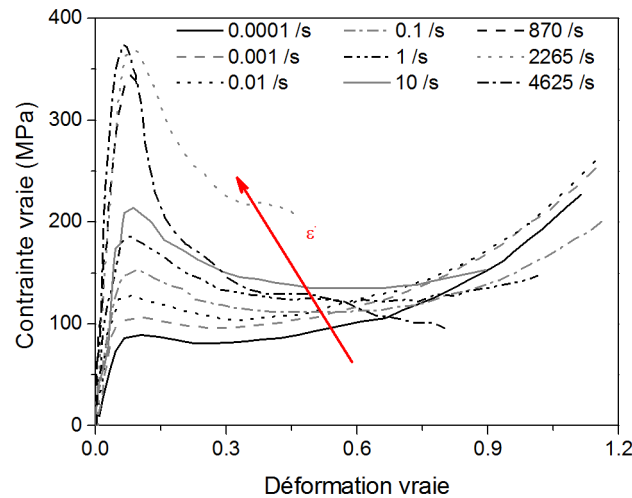


Figure 1.16 – Influence de la vitesse de déformation sur le comportement mécanique d'un PMMA testé à une température constante de 25 °C. Données expérimentales provenant de Richeton *et al.* [21].

L'augmentation de la vitesse de déformation contribue à rigidifier le matériau. En effet, on observe une augmentation du module d'élasticité et de la contrainte seuil. De plus, on peut noter que l'adoucissement plastique augmente avec la vitesse de déformation. Pour des vitesses de déformation de l'ordre de 0.0001 s^{-1} et 0.001 s^{-1} , lorsque le test est considéré comme isotherme [22], l'adoucissement plastique est presque inexistant. Ceci laisse suggérer que ce phénomène est lié à la réponse intrinsèque du matériau, comme l'ont montré G'Sell et Jonas [23] et Richeton *et al.* [24], mais on peut également supposer qu'il est lié à de l'auto-échauffement puisque la part d'auto-échauffement et l'adoucissement plastique augmentent avec la vitesse de déformation. De plus, en comparant les figures 1.15 et 1.16, on constate que la courbe de comportement obtenue à 25 °C et 1 s^{-1} est similaire à celle obtenue à 0 °C et 0.01 s^{-1} . Cette similitude entre vitesse de déformation et température suggère l'existence d'un principe de superposition temps-température pour la contrainte seuil. Ce principe de superposition sera explicité au chapitre 2.

1.2.3.4 Dépendance à la pression

Les effets de la pression hydrostatique sur le comportement d'un polymère amorphe (polycarbonate) et un polymère semi-cristallin (polyéthylène) ont été étudiés par Spitzig et Richmond [25] et sont présentés sur la figure 1.17. Le module initial, la contrainte seuil et l'adoucissement plastique augmente avec la pression hydrostatique.

Sur la figure 1.17(a), dans le cas de l'étude d'un polymère amorphe, on peut noter que l'augmentation de la pression hydrostatique atténue l'adoucissement plastique jusqu'à sa disparition. La contrainte seuil n'est plus définie par un maximum local. Le matériau passe progressivement de l'état viscoélastique à l'état viscoplastique.

Dans le cas d'un polymère semi-cristallin comme le polyéthylène (PE), la pression hydrostatique modifie considérablement le comportement en traction/compression du matériau. En effet, lorsque la pression hydrostatique est faible, la différence de comportement entre traction et compression reste modérée. Le comportement en traction fait apparaître le phénomène de striction identifié sur les courbes par un adoucissement plastique de plus en plus marqué lorsque la pression augmente. En revanche, le comportement en compression présente un plateau plastique avec l'augmentation de la pression.

La différence de comportement entre traction et compression est principalement due au phénomène de cavitation. Lorsque le matériau est sollicité en traction, des micro-craquelures vont se former perpendiculairement à l'effort appliqué. Les cavités vont s'ouvrir et ainsi fragiliser le matériau. En revanche, lors d'un essai de compression, les micro-défauts présents à l'intérieur du matériau vont se fermer et des micro-craquelures vont apparaître parallèlement à l'effort appliqué. Ainsi, la principale

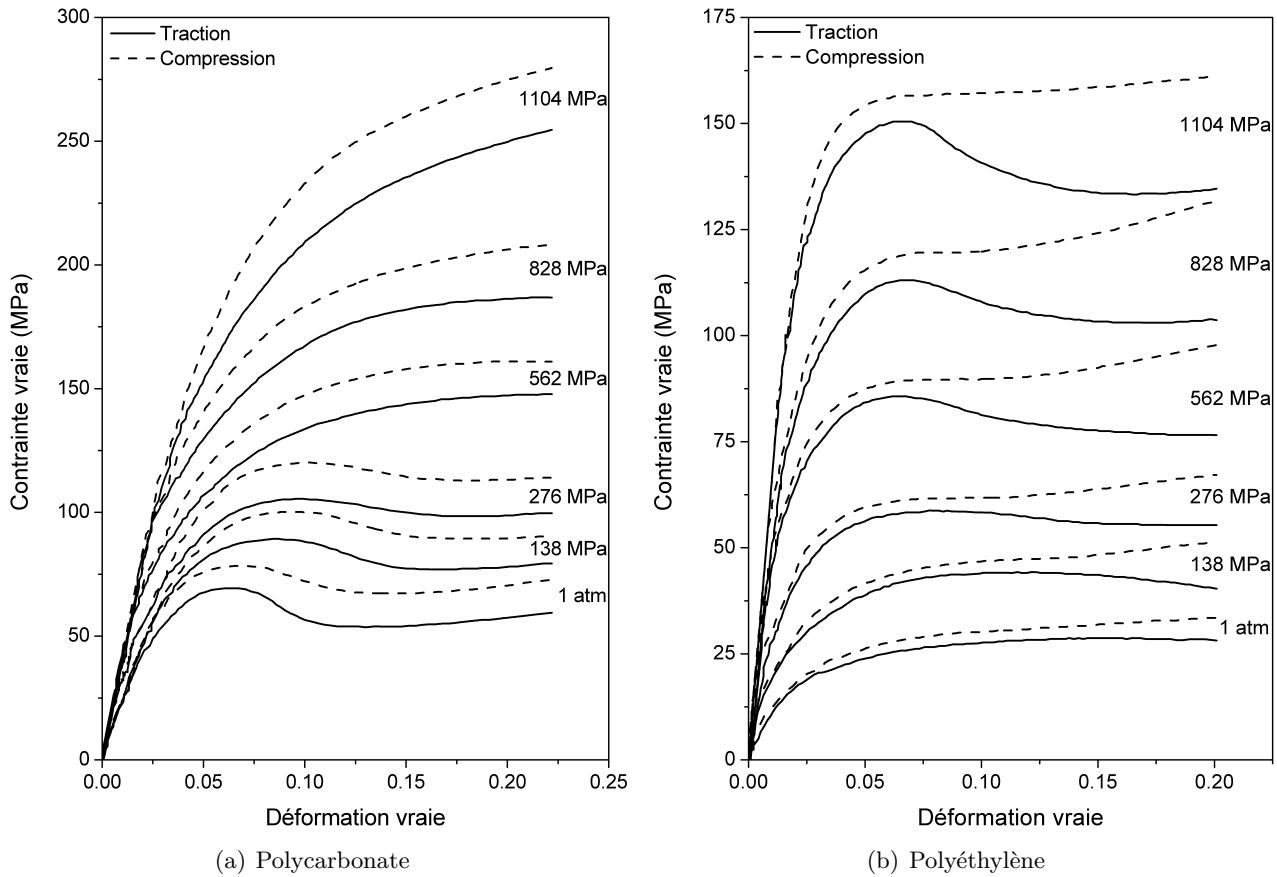


Figure 1.17 – Influence de la pression hydrostatique sur le comportement mécanique de deux polymères : (a) un polymère amorphe, le polycarbonate (PC) et (b) un polymère semi-cristallin, le polyéthylène (PE). D’après Spitzig et Richmond [25].

différence régnant entre le comportement en traction et le comportement en compression réside dans l’évolution d’espace vide au sein du matériau au cours de l’essai. Pour des matériaux semi-cristallins tel que le polypropylène (PP), le phénomène de cavitation se manifeste par une variation de volume et un blanchiment du matériau.

1.3 Conclusion

Les matériaux polymères présentent un comportement complexe fortement dépendant de la micro-structure. De plus, ils sont également fortement influencés par la température, la vitesse de déformation et la pression.

L’utilisation de matériaux polymères dans des applications industrielles a nécessité, en amont, de nombreuses recherches afin de comprendre les mécanismes de déformation de tels matériaux [5, 26–31]. De plus, avec l’émergence des modèles numériques, de nombreux modèles mathématiques ont été identifiés afin d’approcher le comportement de ces matériaux.

Dans le chapitre suivant, nous proposons de passer en revue différents modèles de comportement permettant de modéliser en partie ou totalement le comportement mécanique des matériaux polymères. Ces différents modèles tiennent compte de la dépendance à la vitesse et à la température de ces matériaux. De plus, une comparaison entre différents modèles de contrainte seuil sera effectuée.

Chapitre 2

Modélisation du comportement mécanique des polymères

Au fil des ans, de nombreux modèles mathématiques ont été développés afin de décrire le comportement mécanique des matériaux polymères. Parmi les modèles de comportement couramment utilisés, on distingue deux approches :

- L’approche phénoménologique considère uniquement le comportement mécanique macroscopique du matériau. Un modèle utilisant l’approche phénoménologique est construit en ajustant des paramètres afin que la réponse numérique et le comportement mécanique du matériau correspondent. De manière générale, ces modèles présentent un nombre de paramètres réduits. Cependant, ceux-ci n’ont pas nécessairement un sens physique.
- L’approche structurelle, en revanche, est basée sur l’analyse des phénomènes physiques et thermomécaniques qui se produisent au cours de la déformation du matériau. Afin de tenir compte de ces différents phénomènes, un plus grand nombre de paramètres est nécessaire. Cependant, étant donné qu’ils ont un sens physique, ils demeurent mesurables.

Ainsi, les modèles phénoménologiques semblent plus aisés à développer et à mettre en œuvre que les modèles physiques. Ces derniers ont généralement des formes complexes mais reproduisent plus fidèlement le comportement des matériaux en grandes déformations.

Tout d’abord, nous présenterons quelques modèles phénoménologiques unifiés. Ces modèles permettent de décrire les courbes contrainte-déformation des polymères sur un domaine de déformation plus ou moins important. Par la suite, divers modèles, phénoménologiques ou physiques, permettant de modéliser les différents comportements observés lors de la déformation d’un polymère, seront décrits.

2.1 Modèles de comportement unifiés

2.1.1 Modèle de G’Sell-Jonas

En 1979, G’Sell et Jonas [32] propose un modèle phénoménologique afin de modéliser le comportement plastique du polyéthylène haute densité (HDPE) et du polychlorure de vinyle (PVC). Le comportement plastique est décrit par l’expression :

$$\sigma(\varepsilon, \dot{\varepsilon}) = K \exp\left(\frac{\gamma_\varepsilon}{2} \varepsilon^2\right) \dot{\varepsilon}^m, \quad (2.1)$$

où σ est la contrainte équivalente, ε est la déformation équivalente, $\dot{\varepsilon}$ est le taux (ou vitesse) de déformation équivalent, m décrit la sensibilité du matériau à la vitesse de déformation, K et γ_ε sont des constantes décrivant le durcissement structural du matériau.

En 1983, G’Sell *et al.* [33] introduisent un terme de viscoélasticité dans l’expression 2.1 et ob-

tiennent :

$$\sigma(\varepsilon, \dot{\varepsilon}) = K \underbrace{\left(1 - \exp\left(-\frac{\varepsilon}{\varepsilon_\nu}\right)\right)}_{\text{terme de viscoélasticité}} \exp\left(\frac{\gamma_\varepsilon}{2} \varepsilon^2\right) \dot{\varepsilon}^m, \quad (2.2)$$

où ε_ν est supposé être un paramètre indépendant de la vitesse de déformation.

Par la suite, les effets de température ont été inclus dans l'équation 2.2 :

$$\sigma(\varepsilon, \dot{\varepsilon}, T) = K \underbrace{\exp\left(\frac{a}{T}\right)}_{\text{effet de température}} \left(1 - \exp\left(-\frac{\varepsilon}{\varepsilon_\nu}\right)\right) \exp\left(\frac{\gamma_\varepsilon}{2} \varepsilon^2\right) \dot{\varepsilon}^m, \quad (2.3)$$

avec a une propriété matériau et T la température absolue.

Le modèle de G'Sell-Jonas décrit le comportement viscoélastique et viscoplastique des polymères semi-cristallins. Cependant, ce modèle ne permet pas de reproduire l'adoucissement plastique des polymères vitreux.

2.1.2 Modèle de Matsuoka

Matsuoka [34] propose un modèle phénoménologique permettant de modéliser le comportement mécanique des polymères vitreux :

$$\sigma(\varepsilon, \dot{\varepsilon}) = E_0 \varepsilon \exp(-C\varepsilon) \exp\left(-\left(\frac{\varepsilon}{\dot{\varepsilon} t^*}\right)^B\right), \quad (2.4)$$

avec σ la contrainte équivalente, ε la déformation équivalente, $\dot{\varepsilon}$ la vitesse de déformation équivalente, t^* le temps de relaxation, E_0 le module élastique initial, B et C des paramètres empiriques.

Ce modèle permet de modéliser le caractère viscoélastique non-linéaire, le seuil d'écoulement ainsi que l'adoucissement plastique des polymères vitreux en petites déformations. Cependant, en accord avec Duan *et al.* [35], ce modèle ne permet pas de reproduire le comportement des polymères vitreux en grandes déformations.

2.1.3 Modèle DSGZ

Le modèle DSGZ [35], développé par Duan, Saigal, Grief et Zimmerman, est basé sur les modèles de Johnson-Cook [36], G'Sell-Jonas [32], Matsuoka [34] et Brooks [37]. Le modèle de Johnson-Cook [36] propose une approche phénoménologique pour décrire le comportement plastique des métaux ductiles. Brooks [37] propose un modèle constitutif dans le but de prévoir le comportement des polymères cristallisant sous contrainte. En se basant sur ces quatre modèles, Duan, Saigal, Grief et Zimmerman proposent le modèle DSGZ [35], présentant une triple dépendance à la déformation, à la vitesse de déformation et à la température, décrit par :

$$\sigma(\varepsilon, \dot{\varepsilon}, T) = K \cdot \left(f(\varepsilon) + \left(\frac{\varepsilon \exp\left(1 - \frac{\varepsilon}{C_3 h(\dot{\varepsilon}, T)}\right)}{C_3 h(\dot{\varepsilon}, T)} - f(\varepsilon) \right) \exp((\ln(g(\dot{\varepsilon}, T) - C_4) \varepsilon) \right) h(\dot{\varepsilon}, T) \quad (2.5)$$

avec

$$\begin{cases} f(\varepsilon) &= (\exp(-C_1\varepsilon) + \varepsilon^{C_2}) (1 - \exp(-\alpha\varepsilon)) \\ h(\dot{\varepsilon}, T) &= \dot{\varepsilon}^m \exp\left(\frac{a}{T}\right) \end{cases}, \quad (2.6)$$

et la fonction $g(\dot{\varepsilon}, T)$ la forme adimensionnelle de la fonction $h(\dot{\varepsilon}, T)$. K , C_1 , C_2 , C_3 , C_4 , a , m et α sont les huit paramètres matériau de ce modèle. Les propriétés matériau sont déterminées à partir

d'au moins trois courbes contrainte vraie-déformation vraie à différentes vitesses de déformation et températures.

En accord avec Duan *et al.* [35], le modèle DSGZ permet de décrire le comportement des polymères vitreux amorphes et semi-cristallins sur une large gamme de déformations. De plus, il permet de modéliser l'adoucissement plastique et le durcissement structural des polymères. Bien que le modèle proposé par Duan, Saigal, Grief et Zimmerman [35] permette de modéliser avec précision le comportement des polymères vitreux et semi-cristallin pour de faibles vitesses de déformation et des vitesses de déformation intermédiaires, il s'avère que, pour de grandes vitesses de déformation, il existe une forte disparité entre les prévisions numériques et les résultats expérimentaux [38].

2.2 Modélisation du module d'élasticité

Sur la figure 1.11(a), on a pu noter que le comportement du module élastique était fortement dépendant de la température et de la vitesse de déformation. Plusieurs modèles ont été développés pour décrire l'évolution du module élastique en fonction de la température et de la vitesse de déformation.

2.2.1 Expression des différents modèles

Dans les modèles constitutifs développés par Boyce et ses collaborateurs [39, 40], la dépendance à la température du module élastique dans la région vitreuse est généralement décrite par un modèle phénoménologique qui décroît avec la température de la manière suivante :

$$\log E(T) = \log E(T^{ref}) - c(T - T^{ref}), \quad (2.7)$$

avec $E(T^{ref})$ le module élastique à la température de référence T^{ref} et c un paramètre caractérisant la sensibilité à la température du matériau dans la région vitreuse. Cependant, l'évolution du module élastique dans la région de transition vitreuse et la région caoutchoutique n'est pas modélisée. Pour prendre en compte les effets de la transition vitreuse sur la sensibilité du module élastique à la température, Drozdov [41] propose la formulation :

$$E(T) = E_0 - \frac{E_1}{T_g - T} \quad (2.8)$$

où les constantes E_0 et E_1 , déterminées en utilisant la méthode des moindres carrés sur les courbes décrivant le module élastique en fonction de $1/(T_g - T)$, sont des paramètres matériau et T_g est la température de transition vitreuse. Cependant, cette approche ne permet de décrire que le début de la zone de transition vitreuse.

Pour décrire le comportement du module élastique sur une large gamme de températures, de la région vitreuse à la région caoutchoutique en passant par la transition vitreuse, d'autres modèles ont été développés.

Mahieux et Reifsnider [42, 43] furent les premiers à développer un modèle statistique permettant de modéliser la sensibilité à la température du module de stockage. Leur approche est basée sur l'influence de la température sur les liaisons secondaires des polymères. Chaque transition dans le polymère (relaxations secondaires, transition vitreuse, écoulement) requiert la rupture de liaisons secondaires. L'idée de Mahieux et Reifsnider est d'utiliser la statistique de Weibull pour représenter la rupture des liaisons secondaires durant le processus de relaxation ce qui permet de suivre l'évolution du module sur une large gamme de températures. Ils ont montré que leur modèle est valable pour une large gamme de polymères (amorphe, semi-cristallin, haut ou bas poids moléculaire...). En considérant trois transitions (relaxation secondaire β , transition α et l'écoulement), le module de stockage est déterminé par :

$$E(T) = (E_1 - E_2) \exp\left(-\left(\frac{T}{T_\beta}\right)^{m_1}\right) + (E_2 - E_3) \exp\left(-\left(\frac{T}{T_\alpha}\right)^{m_2}\right) + E_3 \exp\left(-\left(\frac{T}{T_f}\right)^{m_3}\right) \quad (2.9)$$

avec T_β la température de relaxation secondaire β , T_α la température de la relaxation principale confondue avec la température de transition vitreuse dans le cas d'un polymère amorphe, et T_f la température marquant le début de l'écoulement du matériau. Chaque température de transition est identifiée sur les courbes de DMA comme étant le maximum local de la courbe décrivant le facteur de perte ($\tan \delta$) en fonction de la température. E_i représentent les modules de rigidité instantanés identifiés au début de chaque transition. E_1 est le module instantané à très basse température, loin de la transition vitreuse, E_2 est le module instantané pris juste après la relaxation β et E_3 le module instantané au début de la région caoutchoutique. Les paramètres m_i sont les modules de Weibull représentant la probabilité de rupture des chaînes.

En se basant sur les travaux de Mahieux et Reifsnider [42, 43], pour des polymères amorphes, Richeton *et al.* [44] propose d'ajouter la dépendance à la vitesse de déformation à l'équation 2.9 :

$$E(T, \dot{\varepsilon}) = (E_1(\dot{\varepsilon}) - E_2(\dot{\varepsilon})) \exp \left(- \left(\frac{T}{T_\beta(\dot{\varepsilon})} \right)^{m_1} \right) + (E_2(\dot{\varepsilon}) - E_3(\dot{\varepsilon})) \exp \left(- \left(\frac{T}{T_g(\dot{\varepsilon})} \right)^{m_2} \right) + E_3(\dot{\varepsilon}) \exp \left(- \left(\frac{T}{T_f(\dot{\varepsilon})} \right)^{m_3} \right), \quad (2.10)$$

où $E_i(\dot{\varepsilon})$, $T_i(\dot{\varepsilon})$ décrivent la sensibilité des modules et des températures caractéristiques à la vitesse de déformation.

Pour une vitesse de déformation de référence $\dot{\varepsilon}^{ref}$, choisie arbitrairement, on détermine l'évolution en fonction de la vitesse de déformation des différents modules et températures apparaissant dans l'équation 2.10. La relaxation secondaire β , liée aux mouvements de rotation des chaînes latérales, est thermiquement activée par un processus d'Arrhenius. Ainsi, la dépendance à la vitesse de déformation de la température de relaxation secondaire T_β est déterminée par :

$$\frac{1}{T_\beta(\dot{\varepsilon})} = \frac{1}{T_\beta^{ref}} + \frac{R}{\Delta H_\beta} \ln \left(\frac{\dot{\varepsilon}^{ref}}{\dot{\varepsilon}} \right) \quad (2.11)$$

avec T_β^{ref} la température de la relaxation secondaire β à la vitesse de déformation de référence $\dot{\varepsilon}^{ref}$, ΔH_β l'énergie d'activation de la transition β et R la constante des gaz parfaits.

La sensibilité à la vitesse de déformation de la température de transition vitreuse est basée sur le principe d'équivalence temps-température décrit par la loi WLF :

$$T_g(\dot{\varepsilon}) = T_g^{ref} - \frac{c_2^{ref} \log(\dot{\varepsilon}^{ref}/\dot{\varepsilon})}{c_1^{ref} + \log(\dot{\varepsilon}^{ref}/\dot{\varepsilon})} \quad (2.12)$$

avec T_g^{ref} la température de transition vitreuse à $\dot{\varepsilon}^{ref}$, c_1^{ref} et c_2^{ref} les paramètres de la loi WLF relatifs à T_g^{ref} .

La dépendance à la vitesse de déformation de la température marquant le début de l'écoulement du matériau est décrite par un modèle phénoménologique :

$$T_f(\dot{\varepsilon}) = T_f^{ref} \left(1 - a \log \left(\frac{\dot{\varepsilon}^{ref}}{\dot{\varepsilon}} \right) \right) \quad (2.13)$$

avec T_f^{ref} la température marquant le début de l'écoulement du matériau déterminée à la vitesse de déformation $\dot{\varepsilon}^{ref}$ et a un paramètre matériau décrivant la sensibilité de cette température à la vitesse de déformation.

De manière similaire, la dépendance à la vitesse de déformation des différents modules instantanés est décrite par :

$$E_i(\dot{\varepsilon}) = E_i^{ref} \left(1 - s_i \log \left(\frac{\dot{\varepsilon}^{ref}}{\dot{\varepsilon}} \right) \right) \quad (2.14)$$

avec E_i^{ref} les modules instantanés à la vitesse de déformation de référence $\dot{\epsilon}^{ref}$ et s_i le paramètre de sensibilité à la vitesse de déformation du module E_i .

Dupaix et Boyce [45] proposent une autre approche pour modéliser le comportement du module élastique sur un gamme de températures qui s'étend de la région vitreuse à la région caoutchoutique :

$$E(T, \dot{\epsilon}) = \frac{1}{2}(E_g + E_c) - \frac{1}{2}(E_g - E_c) \tanh\left(\frac{5}{\Delta T}(T - T_g(\dot{\epsilon}))\right) + X_g(T - T_g(\dot{\epsilon})) \quad (2.15)$$

avec E_g le module d'élasticité au début de la région de transition vitreuse, E_c le module d'élasticité au début de la région caoutchoutique, ΔT représente le domaine de température sur lequel s'étend la transition vitreuse, T_g la température de transition vitreuse et X_g la pente du module caoutchoutique. Les constantes E_g , E_c , ΔT et X_g sont déterminées grâce à des essais de DMA réalisés à vitesse de déformation constante. Afin de prendre en compte la dépendance du module à la vitesse de déformation dans la zone de transition vitreuse, Dupaix et Boyce [45] définissent la dépendance de la température de transition vitreuse à la vitesse de déformation par la relation :

$$T_g(\dot{\epsilon}) = \begin{cases} T_g^* & \text{si } \dot{\epsilon} < \dot{\epsilon}^{ref} \\ \xi \log\left(\frac{\dot{\epsilon}}{\dot{\epsilon}^{ref}}\right) + \zeta + T_g^* & \text{si } \dot{\epsilon} \geq \dot{\epsilon}^{ref} \end{cases}, \quad (2.16)$$

avec T_g^* la température de transition vitreuse déterminé à la vitesse de déformation de référence $\dot{\epsilon}^{ref}$, ξ et ζ des constantes matériau. En analysant les équations 2.15 et 2.16, on peut noter que la dépendance à la vitesse de déformation du module élastique est seulement prise en compte à travers la température de transition vitreuse. Ainsi, aucune sensibilité du module élastique à la vitesse de déformation dans les régions vitreuse et caoutchoutique n'est décrite par cette loi.

2.2.2 Conclusion

Le tableau 2.1 propose de récapituler les différents modèles présentés au paragraphe 2.2.1 ainsi que leur plage de validité.

Modèle	Équations	Plage de validité	Commentaires
Boyce <i>et al.</i> [39, 40]	2.7	région vitreuse	Ne permet pas de modéliser la région de transition vitreuse et la région caoutchoutique. Non prise en compte des effets liés à la vitesse de déformation.
Drozdov [41]	2.8	région vitreuse et début de la région de transition vitreuse	Ne permet pas de modéliser entièrement la région de transition vitreuse et la région caoutchoutique. Non prise en compte des effets liés à la vitesse de déformation.
Mahieux et Reifsnider [42, 43]	2.9	région vitreuse à région caoutchoutique	Non prise en compte des effets liés à la vitesse de déformation.
Richeton <i>et al.</i> [44]	2.10-2.14	région vitreuse à région caoutchoutique	Prend en compte les effets de la vitesse de déformation sur toute la gamme de températures.
Dupaix et Boyce [45]	2.15-2.16	région vitreuse à région caoutchoutique	Les effets liés à la vitesse de déformation ne sont pris en compte que dans la région de transition vitreuse.

Tableau 2.1 – Comparaison des domaines de validité des différents modèles décrivant le module d'élasticité.

Ainsi, en se référant au tableau 2.1, pour un domaine de température s'étendant de la région vitreuse à la région caoutchoutique, il semble que le modèle proposé par Richeton *et al.* [24] propose

de prendre en compte davantage de phénomènes liés à la vitesse de déformation que le modèle de Mahieux et Reifsnider [42, 43] ou le modèle de Dupaix et Boyce [45].

2.3 Modélisation de la contrainte seuil

À l'image du module élastique, la contrainte seuil des matériaux polymères présente une forte dépendance à la vitesse de déformation et à la température comme on a pu le constater sur les figures 1.15 et 1.16. Depuis de nombreuses années, plusieurs théories moléculaires ont été développées dans l'idée de modéliser la contrainte seuil des polymères amorphes. Ces différentes théories, qui tiennent compte de la sensibilité à la vitesse de déformation et à la température du matériau, supposent que l'écoulement plastique est dû à un processus thermiquement activé.

La théorie des états de transition d'Eyring [46] fût l'une des premières développées. Le processus d'écoulement consiste en un saut des macromolécules d'une position d'équilibre à une autre. En 1966, Robertson [47] propose une approche expliquant comment une contrainte de cisaillement pouvait induire l'écoulement d'un polymère amorphe en changeant la structure de la chaîne polymère. Plus tard, Argon [48] propose une théorie pour modéliser la limite élastique des polymères vitreux basée sur l'apparition thermiquement activé de replis moléculaires (zig-zag) dans le segment de chaîne polymère. L'enthalpie libre d'activation du processus est obtenue en modélisant la barrière d'énergie intermoléculaire comme résultant du champ de contraintes de deux inclinaisons s'étendant au niveau des points de rotation de défauts moléculaires sur la chaîne polymère. D'autres théories ont été basées sur le principe de dislocation. Parmi elles, on trouve les travaux de Bowden et Raha [49] qui calculent l'énergie nécessaire à la nucléation d'une région cisailée soumise à un effort. Ces différentes théories sont présentées ci-après.

2.3.1 Théorie des états de transition d'Eyring

En 1936, Eyring [46] propose une théorie moléculaire pour modéliser la contrainte seuil des polymères amorphes. Initialement développée pour la détermination de la viscosité des solutions de polymères, elle peut être appliquée à tout procédé thermiquement activé. Le modèle consiste en un saut des molécules, ou segments de chaînes polymères, d'une position d'équilibre à une autre lorsque l'énergie d'activation est suffisante pour passer la barrière énergétique. L'existence de cette barrière énergétique est due aux segments de chaînes polymères voisins. Le procédé de déformation est généralement dû à un changement de conformation des macromolécules (origine intramoléculaire) ou au glissement des segments de chaînes polymères (origine intermoléculaire). Lorsqu'aucune force n'est appliquée, le système est en équilibre dynamique. Les segments de chaînes polymères oscillent à une fréquence f autour des positions d'équilibre. Ainsi, l'équilibre peut-être décrit par une loi de type Arrhenius :

$$f = f_0 \exp \left(-\frac{\Delta H}{RT} \right) \quad (2.17)$$

avec f_0 la fréquence de vibration fondamentale, ΔH l'énergie d'activation, R la constante des gaz parfaits et T la température absolue. Sous l'effet d'une contrainte σ , la fréquence des sauts augmente dans la direction de la force appliquée. Ainsi, le niveau de la barrière énergétique diminue d'une quantité d'énergie $\sigma V/2$ correspondant au travail effectué par le déplacement d'un segment de chaîne polymère. Le facteur 1/2 peut s'expliquer par le fait que deux segments de chaîne polymère sont associés à la même position d'équilibre. Vers l'avant, la fréquence d'écoulement f_f est donnée par :

$$f_f = f_0 \exp \left(-\frac{\Delta H}{RT} + \frac{\sigma V}{2kT} \right) \quad (2.18)$$

avec V le volume d'activation et k la constante de Boltzmann. Due à la symétrie, la fréquence d'écoulement vers l'arrière f_b est donnée par :

$$f_b = f_0 \exp \left(-\frac{\Delta H}{RT} - \frac{\sigma V}{2kT} \right). \quad (2.19)$$

Ainsi, pour un segment de chaîne polymère, la vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ est proportionnelle à la différence entre les fréquences d'écoulement vers l'avant et vers l'arrière :

$$\dot{\epsilon} \propto f_f - f_b = \nu_0 \exp\left(-\frac{\Delta H}{RT}\right) \cdot \left(\exp\left(\frac{\sigma V}{2kT}\right) - \exp\left(-\frac{\sigma V}{2kT}\right)\right) \quad (2.20)$$

ce que nous pouvons réécrire :

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_0 \exp\left(-\frac{\Delta H}{RT}\right) \sinh\left(\frac{\sigma V}{2kT}\right) \quad (2.21)$$

avec $\dot{\epsilon}_0$ un facteur pré-exponentiel. La contrainte seuil, σ_y , est obtenue en résolvant l'équation 2.21 :

$$\sigma_y = \frac{2kT}{V} \sinh^{-1}\left(\frac{\dot{\epsilon}}{\dot{\epsilon}_0 \exp\left(-\frac{\Delta H}{RT}\right)}\right). \quad (2.22)$$

2.3.2 Théorie des changements de configuration de Robertson

La théorie proposée par Robertson en 1966 [47] explique comment une contrainte de cisaillement seule peut entraîner l'écoulement d'un polymère vitreux en modifiant sa structure moléculaire. Afin de simplifier la géométrie de la chaîne polymère, Robertson propose un modèle plan en zigzag (voir figure 2.1) dans lequel chaque liaison est identique. Il suppose également que seules deux configurations sont stables : la configuration *cis* correspondant à un état de haute énergie et la configuration *trans* correspondant à un état de faible énergie.

On note ΔH , la différence d'énergie entre la configuration de basse énergie ou *trans* et la configuration de haute énergie ou *cis*. La configuration de chaque liaison est décrite par la position de quatre atomes adjacents dans le segment de chaîne polymère comme illustré sur la figure 2.1.

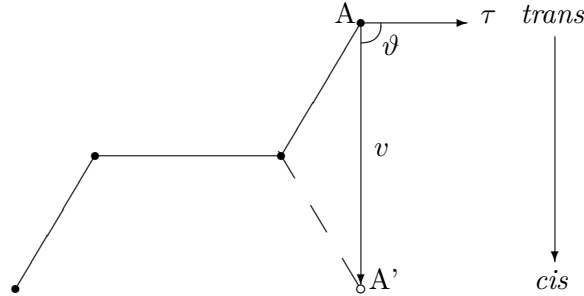


Figure 2.1 – Représentation schématique du modèle simplifié de la théorie de Robertson [47]. La ligne discontinue correspond à la nouvelle position de la molécule A après qu'une contrainte de cisaillement τ est induit une flexion de l'état *trans* vers l'état *cis*. v , dirigé de la configuration *trans* vers la configuration *cis*, est décrit par Robertson [47] comme étant le « volume de flexion ». ϑ est l'angle entre τ et v et varie entre 0 et π .

Le polymère vitreux est décrit par la température θ_g , température pour laquelle le polymère vitreux est en équilibre. Lors de l'application d'une contrainte de cisaillement τ , la proportion de liaisons « fléchies » dans le matériau varie. À l'état initial et au nouvel état d'équilibre obtenu à la température T , la proportion de liaisons « fléchies » est respectivement notée χ_i et $\chi_f(\vartheta)$:

$$\begin{cases} \chi_i &= \frac{\exp(-\Delta E/k\theta_g)}{1 + \exp(-\Delta E/k\theta_g)} \\ \chi_f(\vartheta) &= \frac{\exp(-(\Delta E - v\tau \cos \vartheta)/kT)}{1 + \exp(-(\Delta E - v\tau \cos \vartheta)/kT)} \end{cases} \quad (2.23)$$

avec k la constante de Boltzmann.

L'écoulement du polymère est supposé équivalent à la proportion maximale de liaisons « fléchies » dans le polymère lorsque celui-ci est à l'état liquide à une température θ_1 . L'application d'une contrainte de cisaillement τ à une température T induit un changement structural analogue à celui qui serait obtenu lors de l'équilibre du système, à l'état liquide, à une température θ_1 . La température θ_1 , déterminée par Robertson en supposant que le changement de configuration est un procédé thermiquement activé, est donnée par :

$$\theta_1 = \frac{\Delta H}{k \ln \left(\frac{2V\tau}{kT} \left[\ln \left(\frac{1 + \exp(-(\Delta H - V\tau)/kT)}{1 + \exp(-\Delta H/k\theta_g)} \right) + \left(\frac{V\tau}{kT} + \frac{\Delta H}{kT} - \frac{\Delta H}{k\theta_g} \right) \frac{\exp(-\Delta H/k\theta_g)}{1 + \exp(-\Delta H/k\theta_g)} \right]^{-1} - 1 \right)} \quad (2.24)$$

avec

$$\begin{cases} \theta_g = T_g & \text{si } T < T_g \\ \theta_g = T & \text{si } T > T_g \end{cases}$$

et V le volume d'activation. En augmentant la proportion de liens "fléchis", la structure du polymère devient plus désordonnée et est capable de s'écouler. La vitesse de déformation $\dot{\gamma}$ est donnée par :

$$\dot{\gamma} = \frac{\tau}{\eta}, \quad (2.25)$$

où τ est la contrainte de cisaillement appliquée et η est la viscosité. En combinant l'expression de la viscosité formulée par Doolittle [19] (équation 1.12) et la loi WLF [16] (équation 1.8), la vitesse de déformation s'exprime :

$$\dot{\gamma}_{max} = \frac{\tau}{\eta_g} \exp \left(-2.303 \left(\frac{c_1^g c_2^g}{\theta_1 - T_g + c_2^g} \frac{\theta_1}{T} - c_1^g \right) \right) \quad (2.26)$$

avec c_1^g et c_2^g les paramètres de la loi WLF à la température T_g et $\eta_g = \eta(T_g)$ la viscosité à la température T_g .

Argon et Bessonov [50] ont montré que la théorie développée par Robertson [47] dépendait fortement de la mobilité des segments de chaînes polymères. À basse température, la mobilité moléculaire des segments de chaînes polymères est fortement réduite voire inexistante. Ainsi, bien que la théorie de Robertson [47] soit en accord avec les résultats expérimentaux autour de la transition vitreuse, elle devient de moins en moins précise au fur et à mesure que la température diminue (dans la région vitreuse).

2.3.3 Théorie des replis moléculaires d'Argon

Argon [48, 50] propose une théorie permettant de modéliser la contrainte seuil des polymères vitreux en tenant compte de la résistance intermoléculaire. La déformation locale de cisaillement est représentée par la rotation d'un segment de chaîne polymère de rayon a . La rotation du segment de chaîne est due à la génération de deux défauts identiques, opposés en sens, séparés d'une distance z et orienté d'un angle ω . Une représentation schématique de la théorie d'Argon est présentée sur la figure 2.2.

En accord avec la théorie des inclinaisons de Li et Gilmann [51], Argon calcule l'enthalpie libre d'activation permettant la rotation des segments de chaîne par :

$$\Delta G^* = \frac{3\pi\mu\omega^2 a^3}{16(1-\nu)} \left(1 - 8.5(1-\nu)^{5/6} \left(\frac{\tau}{\mu} \right)^{5/6} \right) \quad (2.27)$$

avec μ le module de cisaillement, ν le coefficient de Poisson et τ la contrainte de cisaillement. En considérant l'écoulement du matériau comme étant un processus thermiquement activé, la vitesse de déformation plastique en cisaillement $\dot{\gamma}^p$ s'écrit :

$$\dot{\gamma}^p = \dot{\gamma}_0 \exp \left(-\frac{\Delta G^*}{kT} \right), \quad (2.28)$$

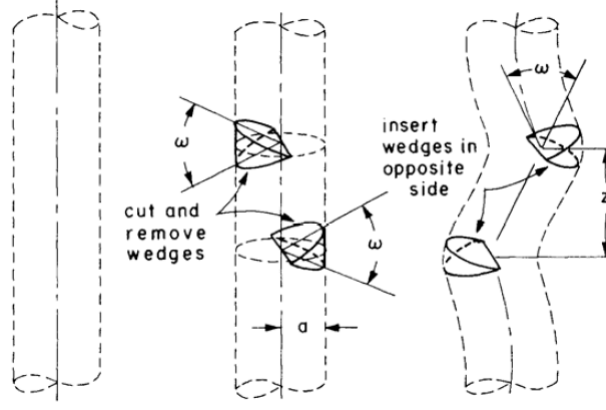


Figure 2.2 – Représentation schématique de la théorie moléculaire développée par Argon [48].

avec $\dot{\gamma}_0$ un facteur pré-exponentiel, T la température absolue et k la constante de Boltzmann. En combinant les équations 2.27 et 2.28, on déduit l'expression de la contrainte de cisaillement au seuil d'écoulement du matériau τ_y :

$$\tau_y \sim \frac{0.077}{1-\nu} \mu \left(1 - \frac{16(1-\nu)kT}{3\pi\mu\omega^2a^3} \ln \left(\frac{\dot{\gamma}_0}{\dot{\gamma}} \right) \right)^{5/6}. \quad (2.29)$$

Cette forme est rarement utilisée. En définissant s_0 comme étant la limite d'élasticité du matériau en cisaillement, la vitesse de déformation plastique en cisaillement s'écrit :

$$\dot{\gamma}^p = \dot{\gamma}_0 \exp \left(-\frac{As_0}{kT} \left(1 - \left(\frac{\tau_y}{s_0} \right)^{5/6} \right) \right) \text{ ou } \tau_y = s_0 \left(1 - \frac{kT}{As_0} \ln \left(\frac{\dot{\gamma}_0}{\dot{\gamma}^p} \right) \right)^{6/5} \quad (2.30)$$

avec

$$s_0 = 0.077 \frac{\mu}{1-\nu} \quad (2.31)$$

$$A = 39 \frac{\pi\omega^2a^3}{16k} \quad (2.32)$$

où A , une constante matériau, a pour unité le $[\text{m}^3]$. Cette constante dépend de la taille du défaut. Arruda, Boyce et leurs collaborateurs [39, 40, 52] ont utilisé le modèle d'Argon pour modéliser la contrainte seuil et l'écoulement du matériau lors de la modélisation en compression de plusieurs polymères amorphes. Cependant, l'expression du module de cisaillement, donnée par l'équation 2.7, est seulement dépendante de la température dans la région vitreuse et le coefficient de Poisson est pris constant. Ainsi, aucune dépendance à la vitesse de déformation du module de cisaillement μ et, par conséquent, de la limite d'élasticité athermique s_0 n'a été prise en compte.

Argon et Bessonov [50] ont montré que ce modèle décrit correctement la contrainte seuil de nombreux polymères vitreux, de la région vitreuse à la région de transition vitreuse. Un intéressant parallèle peut être fait entre la théorie développée par Argon [48] et celle développée par Robertson [47]. La théorie de Robertson [47], basée sur les interactions intramoléculaires, est valable pour de hautes températures, alors que la théorie d'Argon [48] est valable pour de faibles températures.

2.3.4 Modèle de dislocation Bowden et Raha

Bowden et Raha [49] proposent un modèle moléculaire permettant de déterminer la contrainte seuil des polymères vitreux amorphes. Due à des fluctuations thermiques, la nucléation sous contraintes de petites régions ciselées en forme de disques est envisagée comme étant l'étape critique dans le processus de déformation. Le modèle explique quantitativement la variation de la contrainte seuil en fonction de la température, de la vitesse de déformation et de la pression hydrostatique en utilisant seulement

deux paramètres : le module de cisaillement μ , déterminé expérimentalement, et le vecteur de Burgers de la région cisailée b , vecteur constant relié aux dimensions des chaînes moléculaires, représenté sur la figure 2.3.

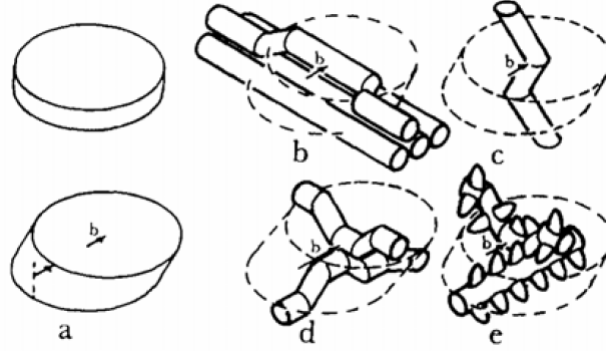


Figure 2.3 – Mécanismes élémentaires permettant la déformation plastique des polymères. a) Déplacement idéal. Le vecteur de Burgers b dépend de nombreux paramètres dont b) la largeur de la chaîne moléculaire, c) le déplacement nécessaire pour plier une seule chaîne, d) la longueur des liens composant la chaîne et e) l'espace entre chaque groupe latéraux [49].

Les surfaces supérieure et inférieure des disques sont déplacées dans la direction de contraintes par le vecteur de Burgers b . L'énergie U de la boucle de dislocation, de vecteur de Burgers b et de rayon R , dans un solide de module de cisaillement μ soumis à une contrainte de cisaillement τ est définie par :

$$U = (2\pi R) \frac{\mu b^2}{4\pi} \ln \left(\frac{2R}{r_0} \right) - \pi R^2 \tau b \quad (2.33)$$

où r_0 est le rayon du noyau de la dislocation. Lorsque le rayon R de la boucle de dislocation tend vers un rayon critique R^* , l'énergie tend également vers une valeur critique U^* :

$$U^* = \frac{\mu b^2 R^*}{4} \left(\ln \left(\frac{2R^*}{r_0} \right) - 1 \right) \text{ avec } R^* = \frac{\mu b}{4\pi \tau} \left(\ln \left(\frac{2R^*}{r_0} \right) + 1 \right). \quad (2.34)$$

À 0 K, la contrainte seuil critique en cisaillement apparaît pour $\tau^* = \mu/(\sqrt{3}\pi)$. Pour ce niveau de contrainte, l'énergie de la boucle de dislocation est nulle. Ainsi, le rayon critique du noyau de la dislocation est alors égale à $r_0^* = b\sqrt{3}/e$ (avec e le symbole de l'exponentielle). En remplaçant r_0 par sa valeur critique dans l'équation 2.34, l'expression de l'énergie critique à 0 K, U^* , est donnée par :

$$U^* = \frac{\mu b^2 R^*}{4} \ln \left(\frac{2R^*}{b\sqrt{3}} \right) \text{ avec } R^* = \frac{\mu b}{4\pi \tau} \left(\ln \left(\frac{2R^*}{b\sqrt{3}} \right) + 2 \right). \quad (2.35)$$

Bowden et Raha [49] supposent que l'écoulement du matériau se produit lorsque U^* atteint $50kT$, où k est la constante de Boltzmann et T la température absolue. En remplaçant U^* par $50kT$, on calcule la contrainte seuil. Ainsi, la contrainte seuil est exprimée selon :

$$\tau_y = \frac{\mu b}{4\pi R^*} \left(\frac{200kT}{\mu b^2 R^*} + 2 \right). \quad (2.36)$$

En résolvant l'équation $U^* = 50kT$ avec des valeurs adéquates de b et μ , Bowden et Raha [49] montrent, pour un PMMA et un PC, que la dépendance à la température de la contrainte seuil peut être reproduit par leur modèle. Cependant, Richeton [21] montre que ce modèle ne permet pas de reproduire la dépendance à la vitesse de déformation de la contrainte seuil.

2.3.5 Généralisation de la théorie d'Eyring

La théorie d'Eyring [46] considère un seul processus d'activation. Cependant, pour modéliser la contrainte seuil sur de larges gammes de vitesses de déformation et de températures, il est nécessaire de considérer au moins deux processus de relaxation. Ainsi, une expression plus générale que celle donnée par Eyring [46] doit être utilisée. La généralisation de cette théorie est connue comme étant la théorie de Ree-Eyring [53], initialement développée pour étudier la viscosité des polymères fondus. À partir de cette théorie, Roetling [54–56] déduit une expression générale pour la contrainte seuil :

$$\frac{\sigma_y}{T} = \sum_i \frac{1}{A_i} \sinh^{-1} \left(\frac{C_i \dot{\epsilon}}{T} \exp \left(\frac{\Delta H_i}{RT} \right) \right). \quad (2.37)$$

avec i le nombre de processus $\dot{\epsilon}$ la vitesse de déformation, T la température absolue, A_i et C_i des constantes matériau et ΔH_i l'énergie d'activation des différents processus impliqués. Pour plusieurs polymères, Roetling [54–56] montre que deux processus sont suffisants pour décrire la contrainte seuil sur de larges gammes de vitesses de déformation et de températures.

Bauwens, Bauwens-Crowet et leurs collaborateurs [57–64] proposent une équation similaire à celle de Roetling [54–56] pour la contrainte seuil :

$$\frac{\sigma_y}{T} = A_\alpha \left(\ln(2C_\alpha \dot{\epsilon}) + \frac{E_{a_\alpha}}{RT} \right) + A_\beta \sinh^{-1} \left(C_\beta \dot{\epsilon} \exp \left(\frac{E_{a_\beta}}{RT} \right) \right) \quad (2.38)$$

avec E_{a_α} et E_{a_β} les énergies d'activation respectivement associées à la relaxation α et à la relaxation β . Le processus α se réfère aux basses vitesses de déformation et hautes températures tandis que le processus β se réfère aux hautes vitesses de déformation et basses températures.

2.3.6 Modèle coopératif

Le modèle coopératif développé par Richeton *et al.* [65, 66], aussi appelé modèle de sauts coopératifs, est originellement dû au travail de Fotheringham et Cherry [67, 68]. Deux modifications majeures ont été apporté par rapport à l'équation originelle due à Eyring (équation 2.22). Premièrement, Richeton *et al.* [65, 66] supposent qu'il existe une contrainte interne σ_i telle que la contrainte effective σ^* est donnée par :

$$\sigma^* = \sigma_y - \sigma_i \quad (2.39)$$

avec σ_y la contrainte seuil. La contrainte interne est un paramètre structurel qui dépeint l'arrangement des défauts hérités de l'histoire thermique. Elle permet d'exprimer les différents propriétés macroscopiques observées au cours de la déformation du polymère. Deuxièmement, Fotheringham et Cherry [67, 68] ont supposé que l'écoulement du polymère survient seulement si plusieurs segments de chaînes polymères bougent de manière coopérative. Un tel concept a été développé pour prendre en compte l'importance du volume d'activation dans le processus d'activation. En accord avec Fotheringham et Cherry [68], le mouvement coopératif des segments de chaînes implique n transitions élémentaires. Ainsi, la vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ est donnée par :

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}^* \sinh^n \left(\frac{\sigma^* V}{2kT} \right) \quad (2.40)$$

avec V le volume d'activation et $\dot{\epsilon}^*$ la vitesse de déformation caractéristique. En combinant les équations 2.39 et 2.40, la contrainte seuil s'écrit :

$$\sigma_y = \sigma_i + \frac{2kT}{V} \sinh^{-1} \left(\frac{\dot{\epsilon}}{\dot{\epsilon}^*} \right)^{1/n}. \quad (2.41)$$

En se basant sur le principe de superposition temps-température, on peut déterminer σ_i et $\dot{\epsilon}^*$. En effet, il a été observé que le comportement mécanique des polymères à basses températures est comparable à celui observé pour de grandes vitesses de déformation. Bauwens-Crowet *et al.* [57] ont

établi que les courbes σ_y/T en fonction de $\log \dot{\varepsilon}$ pouvaient être translatées, horizontalement et verticalement, dans l'idée d'obtenir une courbe maîtresse à la température de référence T^{ref} . La translation horizontale $\Delta(\log \dot{\varepsilon})$ et la translation verticale $\Delta(\sigma_y/T)$ sont définies par :

$$\begin{cases} \Delta(\log \dot{\varepsilon}) &= \log \dot{\varepsilon}(T^{ref}) - \log \dot{\varepsilon}(T) \\ \Delta\left(\frac{\sigma_y}{T}\right) &= \frac{\sigma_y(T^{ref})}{T^{ref}} - \frac{\sigma_y(T)}{T} \end{cases} \quad (2.42)$$

En remplaçant dans l'équation 2.42, σ_y et $\dot{\varepsilon}$ par leurs expressions données par 2.40 et 2.41 et en accord avec les travaux de Povolo *et al.* [69, 70] qui proposent pour $\dot{\varepsilon}^*(T)$ une expression de type loi d'Arrhenius et une dépendance linéaire à la température pour $\sigma_i(T)$, on détermine les expressions de $\dot{\varepsilon}^*$ et σ_i :

$$\begin{cases} \dot{\varepsilon}^*(T) &= \dot{\varepsilon}_0 \exp\left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT}\right) & \text{si } T \leq T_g \\ \sigma_i(T) &= \sigma_i(0) - mT \end{cases} \quad (2.43)$$

avec ΔH_β l'énergie d'activation de la relaxation β , $\dot{\varepsilon}_0$ une constante pré-exponentielle, R la constante des gaz parfaits, T la température absolue, $\sigma_i(0)$ la contrainte interne à 0 K et m une constante matériau.

Si T , la température absolue, est supérieure à la température de transition vitreuse, l'équation WLF (équation 1.8) est utilisée pour déterminer la vitesse de déformation caractéristique $\dot{\varepsilon}^*(T)$ tandis que la contrainte interne $\sigma_i(T)$ s'annule comme suggérée par Fotheringham et Cherry [67] :

$$\begin{cases} \dot{\varepsilon}^*(T) &= \dot{\varepsilon}_0 \exp\left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT_g}\right) \exp\left(\frac{\ln 10 c_1^g (T - T_g)}{c_2^g + T - T_g}\right) & \text{si } T \geq T_g. \\ \sigma_i(T) &= 0 \end{cases} \quad (2.44)$$

En remplaçant 2.43 et 2.44 dans 2.41, on obtient, pour la contrainte seuil, les deux expressions suivantes :

$$\begin{cases} \sigma_y(T) &= \sigma_i(0) - mT + \frac{2kT}{V} \sinh^{-1} \left(\frac{\dot{\varepsilon}(T)}{\dot{\varepsilon}_0 \exp\left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT}\right)} \right)^{1/n} & \text{si } T \leq T_g \\ \sigma_y(T) &= \frac{2kT}{V} \sinh^{-1} \left(\frac{\dot{\varepsilon}(T)}{\dot{\varepsilon}_0 \exp\left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT_g}\right) \exp\left(\frac{\ln 10 c_1^g (T - T_g)}{c_2^g + T - T_g}\right)} \right)^{1/n} & \text{si } T \geq T_g \end{cases} \quad (2.45)$$

Ce modèle a été validé par Richeton *et al.* [65, 66] sur de larges gammes de vitesses de déformation et de températures pour trois polymères amorphes (un PMMA, un PC et un poly(amide imide) (PAI)). Le domaine de température s'étend de la région vitreuse à la région caoutchoutique et le domaine de vitesse de déformation s'étend du quasi-statique au dynamique.

Ce modèle a été étendu au cas des polymères semi-cristallins par Gueguen *et al.* [71] et au cas des nano-biocomposites à base d'amidon par Chivrac *et al.* [72]. Depuis ce modèle a largement été repris dans la littérature [28, 73–76].

2.3.7 Conclusion

Le tableau 2.2 propose de faire un bilan des différents modèles permettant de décrire la contrainte seuil des polymères amorphes. Les domaines de validité des différents modèles sont explicités, ainsi que leurs limitations respectives.

2.4 Comparaison entre différents modèles de contrainte seuil pour les polymères amorphes

Modèle	Équations	Plage de validité	Commentaires
Eyring [46]	2.22	région vitreuse	Permet de modéliser le comportement des polymères amorphes vitreux sollicités à de basses vitesses de déformation. Cependant, le modèle ne permet pas de prendre en compte l'évolution de la contrainte seuil dans la région de transition vitreuse et à de grandes vitesses de déformation.
Robertson [47]	2.26	région vitreuse (proche de la région de transition vitreuse)	Ne permet pas de modéliser le comportement des polymères dans la région de transition vitreuse. De plus, ce modèle est de moins en moins précis lorsque la température devient inférieure à la température de relaxation secondaire T_β .
Argon [48, 50]	2.30	régions vitreuse et de transition vitreuse (si $s_0 = s_0(T, \dot{\epsilon})$)	Permet de modéliser la dépendance à la température et à la vitesse de déformation de la contrainte seuil des polymères amorphes, de la région vitreuse à la région de transition vitreuse.
Bowden et Raha [49]	2.36	région vitreuse	Permet de modéliser la dépendance à la température entre T_β et T_g . En revanche, ne permet pas de modéliser la dépendance à la vitesse de déformation de la contrainte seuil.
Ree-Eyring [53]	2.38	région vitreuse	Permet de modéliser l'évolution de la contrainte seuil de la température de relaxation secondaire jusqu'à la température de transition vitreuse. Permet de prendre en compte la dépendance à la vitesse de déformation, du quasi-statique au dynamique. Ne permet pas de reproduire la chute de contrainte au passage de la région de transition vitreuse.
Coopératif [65, 66]	2.45	région vitreuse à région caoutchoutique	Permet de modéliser la dépendance à la vitesse de déformation et à la température de la contrainte seuil sur un large domaine.

Tableau 2.2 – Comparaison des domaines de validité des différents modèles décrivant la contrainte seuil.

On peut noter que les différents modèles étudiés permettent de décrire l'évolution de la contrainte seuil des polymères amorphes dans la région vitreuse pour des températures comprises entre T_β et T_g . Cependant, il apparaît que peu de modèles sont capables de décrire la chute de contrainte due au passage de la température de transition vitreuse. De plus, seul le modèle coopératif est capable de décrire l'évolution de la contrainte seuil de la région vitreuse à la région caoutchoutique.

2.4 Comparaison entre différents modèles de contrainte seuil pour les polymères amorphes

2.4.1 Introduction

La déformation plastique des polymères apparaît localisée lorsque la taille d'un défaut excède une taille critique. Ainsi, la déformation plastique démarre à partir d'un défaut localisée qui sous l'effet d'un effort va grossir jusqu'à atteindre sa taille critique. Différentes théories, exposées précédemment, ont été élaborées pour modéliser la limite d'élasticité des polymères. Celles-ci sont basées sur un ou plusieurs processus thermiquement activés. Une analyse thermodynamique de différents modèles permettra d'obtenir une plus grande compréhension des différents mécanismes et des limitations de

chaque modèle.

Ce travail propose de comparer, sur de larges gammes de températures et de vitesses de déformation, différents modèles permettant de modéliser la contrainte seuil des polymères amorphes. Les modèles examinés sont les modèles d'Eyring et d'Eyring linéarisé, le modèle coopératif et le modèle d'Argon, explicités au paragraphe 2.3. Pour le modèle d'Argon, deux expressions seront considérées. Tout d'abord, on supposera que la contrainte athermique du matériau s_0 est constante. Par la suite, les effets de température et de vitesse de déformation seront inclus dans le paramètre s_0 à travers les expressions du module de cisaillement et du coefficient de Poisson. Les évolutions de la contrainte seuil en fonction de la température et de la vitesse de déformation seront analysées pour ces différents modèles et comparées à des résultats expérimentaux issus de la littérature. Les propriétés thermodynamiques (volume d'activation opérationnel et énergie d'activation opérationnelle) seront également comparées pour les différents modèles.

2.4.2 Analyse thermodynamique des modèles

Pour un état structural comparable, Lefebvre, Escaig et leurs collaborateurs [77–81] ont lié la vitesse de déformation, la contrainte appliquée et la température en introduisant la notion de volume d'activation opérationnel V_0 et d'énergie d'activation opérationnelle ΔH_0 . Les expressions du volume d'activation opérationnel et de l'énergie d'activation opérationnelle sont dérivées de la forme analytique du logarithme de la vitesse de déformation. Ainsi, l'énergie d'activation opérationnelle à une contrainte et structure fixées et le volume d'activation opérationnel à une température et structure fixées sont définis par :

$$\begin{cases} \Delta H_0 &= RT^2 \left(\frac{\partial \ln \dot{\epsilon}}{\partial T} \right)_{\sigma_y, struct.} \\ V_0 &= kT \left(\frac{\partial \ln \dot{\epsilon}}{\partial \sigma_y} \right)_{T, struct.} \end{cases} \quad (2.46)$$

avec k la constante de Boltzmann, R la constante des gaz parfaits, T la température absolue, $\dot{\epsilon}$ la vitesse de déformation et σ_y la contrainte seuil.

2.4.2.1 Modèle d'Eyring

La théorie d'Eyring propose une expression pour la vitesse de déformation donnée par :

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_0^E \exp \left(-\frac{\Delta H^E}{RT} \right) \sinh \left(\frac{\sigma_y V^E}{2kT} \right) \quad (2.47)$$

avec $\dot{\epsilon}_0^E$ une constante pré-exponentielle, V^E le volume d'activation et ΔH^E l'énergie d'activation associés au modèle d'Eyring.

En utilisant les équations 2.46 et 2.47, on en déduit l'énergie d'activation opérationnelle et le volume d'activation opérationnel pour le modèle d'Eyring :

$$\begin{cases} \Delta H_0^E &= \Delta H^E - \frac{\sigma_y V^E \mathcal{N}_a}{2} \frac{1}{\tanh \left(\frac{\sigma_y V^E}{2kT} \right)} \\ V_0^E &= \frac{V^E}{2} \frac{1}{\tanh \left(\frac{\sigma_y V^E}{2kT} \right)} \end{cases} \quad (2.48)$$

avec $\mathcal{N}_a$ le nombre d'Avogadro.

En accord avec l'expression du volume d'activation opérationnel donnée par l'équation 2.48, l'énergie d'activation opérationnelle peut également s'écrire :

$$\Delta H_0^E = \Delta H^E - \mathcal{N}_a \sigma_y V_0^E. \quad (2.49)$$

On peut noter que l'énergie d'activation opérationnelle est le résultat de la différence entre l'énergie d'activation du matériau au repos et celle qui est mesuré en présence d'un effort. Ainsi, en présence d'un effort, le potentiel de la barrière énergétique diminue.

2.4.2.2 Modèle d'Eyring linéarisé

La forme linéarisée du modèle d'Eyring est obtenue en supposant que le terme $x = \sigma_y V^E / 2kT$, présent dans l'équation 2.47, est inférieur à 1. En effet, si $x < 1$ alors $\sinh(x)$ tend vers $\exp(x)/2$. Ainsi, la forme linéarisée du module d'Eyring s'écrit :

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_0^{LE} \exp \left(-\frac{\Delta H^{LE} - \sigma_y V^{LE} \mathcal{N}_a}{RT} \right). \quad (2.50)$$

Tous les paramètres ont la même signification que précédemment. De plus, les paramètres du modèle Eyring linéarisé sont liés à ceux du modèle d'Eyring par les relations :

$$\begin{cases} \dot{\epsilon}_0^{LE} &= \dot{\epsilon}_0^E / 2 \\ \Delta H^{LE} &= \Delta H^E \\ V^{LE} &= V^E / 2 \end{cases} \quad (2.51)$$

Les paramètres opérationnels du modèle d'Eyring linéarisé suivent les relations :

$$\begin{cases} \Delta H_0^{LE} &= \Delta H^{LE} - \sigma_y V^{LE} \mathcal{N}_a \\ V_0^{LE} &= V^{LE} \end{cases} \quad (2.52)$$

En combinant les équations 2.50 et 2.52, l'énergie d'activation opérationnelle s'écrit :

$$\Delta H_0^{LE} = RT \ln \left(\frac{\dot{\epsilon}_0^{LE}}{\dot{\epsilon}} \right). \quad (2.53)$$

Pour ce modèle, le volume d'activation opérationnel est indépendant de la vitesse de déformation et de la température. L'expression de l'énergie d'activation est similaire à celle obtenue pour le modèle d'Eyring (équation 2.49). Étant donné l'expression de la vitesse de déformation pour le modèle d'Eyring linéarisé, l'expression de l'énergie d'activation opérationnelle satisfait à la loi d'Arrhenius. Ainsi, l'énergie d'activation opérationnelle est linéairement dépendante de la température.

2.4.2.3 Modèle d'Argon

La théorie proposée par Argon [48, 50] est généralement écrite en termes de cisaillement sous la forme :

$$\dot{\gamma} = \dot{\gamma}_0^A \exp \left(-\frac{A\tau_0}{kT} \left(1 - \left(\frac{\tau_y}{\tau_0} \right)^{5/6} \right) \right) \text{ avec } \begin{cases} A &\sim \frac{39\pi\omega^2 a^3}{16} \\ \tau_0 &\sim \frac{0.077\mu}{1-\nu} \end{cases} \quad (2.54)$$

où A est assimilable au volume d'activation du matériau, τ_0 est la contrainte seuil athermique en cisaillement du matériau, μ le module de cisaillement et ν le coefficient de Poisson du matériau. Ainsi, le volume d'activation est dépendant des propriétés géométriques du défaut dans le segment de chaîne polymère. Voulant comparer ce modèle aux différents autres, nous préférons l'écrire en utilisant la vitesse de déformation équivalente $\dot{\epsilon}$. Ainsi, l'expression de la vitesse de déformation pour le modèle d'Argon s'écrit :

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_0^A \exp \left(-\frac{s_0 V^A}{kT} \left(1 - \left(\frac{\sigma_y}{s_0} \right)^{5/6} \right) \right) \text{ avec } s_0 = \frac{0.077E}{1-\nu} \quad (2.55)$$

avec s_0 la contrainte d'élasticité athermique du matériau en déformation uniaxiale.

Les paramètres opérationnels du modèle d'Argon sont données par les expressions :

$$\begin{cases} \Delta H_0^A &= s_0 V^A \mathcal{N}_a \left(1 - \left(\frac{\sigma_y}{s_0} \right)^{5/6} \right) \\ V_0^A &= \frac{5}{6} V^A \left(\frac{kT}{s_0 V^A} \ln \left(\frac{\dot{\epsilon}}{\dot{\epsilon}_0^A} \right) + 1 \right)^{-1/5} . \end{cases} \quad (2.56)$$

En combinant les équations 2.55 et 2.56, l'énergie d'activation opérationnelle s'écrit également :

$$\Delta H_0^A = RT \ln \left(\frac{\dot{\epsilon}_0^A}{\dot{\epsilon}} \right). \quad (2.57)$$

On peut noter que l'expression de l'énergie d'activation opérationnelle du modèle d'Argon a la même forme que celle déterminée pour le modèle d'Eyring linéarisé (équation 2.53). En comparant les relations 2.57 et 2.53 définissant l'énergie d'activation opérationnelle du modèle d'Argon et du modèle d'Eyring linéarisé, on en déduit que le volume d'activation du modèle d'Argon est égale à $s_0 V^A \mathcal{N}_a$.

Lors de l'utilisation de ce modèle, le paramètre s_0 ne présente généralement qu'une dépendance à la température dans la région vitreuse à travers le module de cisaillement [40]. Il se peut également qu'il soit pris constant [39]. Or, il est bien connu que les modules d'élasticité et de cisaillement et le coefficient de Poisson sont fortement dépendants de la vitesse de déformation et de la température (de la région vitreuse à la région caoutchoutique). On suppose que les expressions du coefficient de Poisson et du module d'élasticité sont dépendants de la température et de la vitesse de déformation. Ainsi, s_0 , contrainte athermique du matériau qui était jusqu'à présent constante, devient dépendante de la vitesse de déformation et de la température à travers le module d'élasticité et le coefficient de Poisson. On peut alors la considérer comme une contrainte interne au matériau. L'expression du module d'élasticité est donnée dans les travaux de Richeton *et al.* [44] par les expressions 2.10 à 2.14 rappelées ci-dessous :

$$E(T, \dot{\epsilon}) = (E_1(\dot{\epsilon}) - E_2(\dot{\epsilon})) \exp \left(- \left(\frac{T}{T_\beta(\dot{\epsilon})} \right)^{m_1} \right) + (E_2(\dot{\epsilon}) - E_3(\dot{\epsilon})) \exp \left(- \left(\frac{T}{T_g(\dot{\epsilon})} \right)^{m_2} \right) + E_3(\dot{\epsilon}) \exp \left(- \left(\frac{T}{T_f(\dot{\epsilon})} \right)^{m_3} \right). \quad (2.58)$$

La dépendance à la vitesse de déformation des différents paramètres est donnée par :

$$\begin{cases} E_i(\dot{\epsilon}) &= E_i^{ref} \left(1 + s_i \log \left(\dot{\epsilon} / \dot{\epsilon}^{ref} \right) \right) \\ \frac{1}{T_\beta(\dot{\epsilon})} &= \frac{1}{T_\beta^{ref}} + \frac{R}{\Delta H_\beta} \ln \left(\dot{\epsilon}^{ref} / \dot{\epsilon} \right) \\ T_g(\dot{\epsilon}) &= T_g^{ref} - \frac{c_2^g \log \left(\dot{\epsilon}^{ref} / \dot{\epsilon} \right)}{c_1^g + \log \left(\dot{\epsilon}^{ref} / \dot{\epsilon} \right)} \\ T_f(\dot{\epsilon}) &= T_f^{ref} \left(1 + 0.01 \log \left(\dot{\epsilon} / \dot{\epsilon}^{ref} \right) \right) \end{cases} \quad (2.59)$$

où E_i et T_f suivent des lois phénoménologiques avec s_i paramètres de sensibilité à la vitesse des différents modules, T_β suit une loi d'Arrhenius avec R , la constante des gaz parfaits et ΔH_β l'énergie d'activation de la transition β . La dépendance à la vitesse de déformation de la température de transition vitreuse est donnée par la loi de Williams-Landel-Ferry (WLF) [16] avec c_1^g et c_2^g , paramètres de la loi WLF déterminés à une température de référence choisie comme étant la température de transition vitreuse.

Le coefficient de Poisson est également dépendant de la vitesse de déformation et de la température. Suite à des observations faites à partir des travaux de Pandini et Pegoretti [82], Mott *et al.* [83] et

Greaves *et al.* [84], l'expression 2.60 a été développée. Une explication développée de l'introduction de ce modèle et sa validation sont données au chapitre 4. Ainsi, l'évolution du coefficient de Poisson en fonction de la température et de la vitesse de déformation peut-être décrite par :

$$\nu(T, \dot{\epsilon}) = \begin{cases} \nu_0 + (\nu_c - \nu_0) \exp\left(-\frac{(T - (T_g(\dot{\epsilon}) + \Delta T))^2}{2w^2}\right) & \text{si } T < T_g + \Delta T \\ \nu_c & \text{si } T \geq T_g + \Delta T \end{cases}, \quad (2.60)$$

où $2w = w_1/\sqrt{\ln 4}$ avec w_1 la largeur du pic à mi-hauteur, ν_0 le coefficient de Poisson dans la région vitreuse, loin de la température de transition vitreuse, et ν_c le coefficient de Poisson dans la région caoutchoutique ($\nu_c \sim 0.4999$), T_g la température de transition vitreuse dépendant de la vitesse de déformation et ΔT un paramètre matériau correspondant à la moitié de la gamme de température sur laquelle s'étend la région de transition vitreuse.

En considérant que le paramètre s_0 est dépendant à la température, l'expression de l'énergie d'activation opérationnelle s'écrit :

$$\Delta H_0^{A2} = RT \ln\left(\frac{\dot{\epsilon}_0^{A2}}{\dot{\epsilon}}\right) - \mathcal{N}_a T \frac{\partial s_0(T, \dot{\epsilon})}{\partial T} V^{A2} \left(1 - \frac{1}{6} \left(\frac{\sigma_y}{s_0(T, \dot{\epsilon})}\right)^{5/6}\right) \quad (2.61)$$

où $\partial s_0/\partial T$, la dérivée de s_0 par rapport à la température, est égale à :

$$\frac{\partial s_0(T, \dot{\epsilon})}{\partial T} = 0.077 \frac{\frac{\partial E(T, \dot{\epsilon})}{\partial T} (1 - \nu(T, \dot{\epsilon})) + E(T, \dot{\epsilon}) \frac{\partial \nu(T, \dot{\epsilon})}{\partial T}}{(1 - \nu(T, \dot{\epsilon}))^2} \quad (2.62)$$

avec $\partial E/\partial T$ et $\partial \nu/\partial T$ les dérivées, respectivement, du module d'élasticité et du coefficient de Poisson par rapport à la température. L'expression générale du volume d'activation opérationnel, donnée par l'équation 2.56, reste la même lorsque l'on prend en compte les effets de vitesse et de température. Cependant, bien que l'expression reste la même, le volume d'activation opérationnel devient dépendant de la vitesse de déformation et de la température à travers le paramètre s_0 :

$$V_0^{A2} = \frac{5}{6} V^{A2} \left(\frac{kT}{s_0(T, \dot{\epsilon}) V^{A2}} \ln\left(\frac{\dot{\epsilon}}{\dot{\epsilon}_0^{A2}}\right) + 1 \right)^{-1/5}. \quad (2.63)$$

On notera "Argon 2", le modèle d'Argon dont le paramètre s_0 est dépendant de la température et de la vitesse de déformation. On prendra soin de noter que ce modèle ne permet pas de décrire la contrainte seuil des polymères amorphes au-delà de la température de transition vitreuse.

2.4.2.4 Modèle coopératif

Le modèle coopératif, développé par Richeton *et al.* [65, 66], permet de modéliser la contrainte seuil des polymères amorphes de la région vitreuse à la région caoutchoutique. Deux expressions sont à considérer :

$$\dot{\epsilon} = \begin{cases} \dot{\epsilon}_0^C \exp\left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT}\right) \sinh^n\left(\frac{(\sigma_y - \sigma_i(0) + mT)V^C}{2kT}\right) & \text{si } T < T_g \\ \dot{\epsilon}_0^C \exp\left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT_g}\right) \exp\left(\frac{\ln 10}{c_2^g + T - T_g} \frac{c_1^g(T - T_g)}{c_2^g}\right) \sinh^n\left(\frac{\sigma_y V^C}{2kT}\right) & \text{si } T \geq T_g \end{cases} \quad (2.64)$$

où ΔH_β l'énergie d'activation de la relaxation β , $\sigma_i(0)$ la contrainte interne à 0 K, $m \sim \sigma_i(0)/T_g$ une constante matériau, T_g la température de transition vitreuse, c_1^g et c_2^g les paramètres de la loi WLF déterminés à la température T_g .

Étant donné que l'expression du modèle coopératif est dépendante de la température de transition vitreuse, les paramètres opérationnels présentent également deux expressions. Ainsi, le volume d'activation opérationnel est donnée par l'expression :

$$V_0^C = \frac{nV^C}{2} \frac{1}{\tanh(x)} \text{ avec } x = \begin{cases} \frac{(\sigma_y - \sigma_i(T))V^C}{2kT} & \text{si } T < T_g \\ \frac{\sigma_y V^C}{2kT} & \text{si } T \geq T_g \end{cases} \quad (2.65)$$

et $\sigma_i(T) = \sigma_i(0) - mT$. L'énergie d'activation opérationnelle est donnée par :

$$\Delta H_0^C = \begin{cases} \Delta H_\beta - N_a (\sigma_y - \sigma_i(0)) V_0^C(T < T_g) & \text{si } T < T_g \\ \frac{RT^2 \ln 10}{(c_2^g + T - T_g)^2} - N_a \sigma_y V_0^C(T \geq T_g) & \text{si } T \geq T_g \end{cases} \quad (2.66)$$

On peut noter que, comme pour le modèle d'Eyring, l'énergie d'activation opérationnelle du modèle coopératif est due à la différence de deux quantités. Le premier terme correspond à l'énergie d'activation de la relaxation β lorsque le polymère présente un comportement vitreux ($T < T_g$). Lorsque le matériau présente un comportement caoutchoutique ($T > T_g$), le premier terme correspond à l'énergie apparente de la relaxation viscoélastique. Quelque soit la température, le second terme correspond à l'énergie mesurée en présence d'un effort. Ainsi, le potentiel de la barrière énergétique diminue en présence d'un effort.

2.4.3 Résultats et discussion

2.4.3.1 Matériaux étudiés

La contrainte seuil ainsi que les paramètres opérationnels (volume d'activation et énergie d'activation) sont dépendants de la température et de la vitesse de déformation comme constaté dans l'écriture des différents modèles. Le PMMA et le PC étudiés par Richeton *et al.* [85] sous compression uniaxiale seront utilisés ici. Ne considérant que des essais de compression, les effets de pression ne seront pas considérés. Pour chaque modèle, les différents paramètres matériaux utilisés sont répertoriés dans le tableau 2.3.

2.4.3.2 Contrainte seuil

Pour une vitesse de déformation de 0.01 s^{-1} , les prévisions numériques des différents modèles sont présentées sur la figure 2.4 sur une large gamme de températures. Les prévisions numériques sont comparés aux résultats expérimentaux du PC et du PMMA. Pour les deux matériaux et dans la gamme de températures testées, on peut noter que deux modèles sont en accord avec les résultats expérimentaux : le modèle coopératif, comme mis en avant par Richeton *et al.* [66, 85], et le modèle d'Argon 2 qui tient compte de la dépendance à la vitesse de déformation et à la température du module d'élasticité et du coefficient de Poisson à travers le paramètre s_0 . Cependant, on peut noter que ce modèle n'est plus valide après la température de transition vitreuse. La prise en compte de la dépendance à la vitesse de déformation et à la température du paramètre s_0 permet d'améliorer les capacités prédictives du modèle d'Argon de la région vitreuse jusqu'au début de la région caoutchoutique. On notera toutefois qu'en deçà de $-50 \text{ }^\circ\text{C}$, le modèle coopératif et le modèle d'Argon 2 divergent l'un de l'autre. Les modèles d'Eyring, d'Eyring linéarisé et d'Argon présentent des résultats similaires.

Pour une température de $25 \text{ }^\circ\text{C}$, les prévisions numériques des différents modèles sont présentées sur la figure 2.5 sur une large gamme de vitesses de déformation. Les prévisions numériques sont comparées aux résultats expérimentaux du PC et du PMMA. Les modèles d'Eyring, d'Eyring linéarisé et d'Argon (s_0 constant) présentent une dépendance linéaire à la vitesse de déformation. En revanche, les modèles coopératif et d'Argon 2 ($s_0 = s_0(T, \dot{\epsilon})$) présentent une évolution significative de la contrainte seuil pour les grandes vitesses de déformation. Le modèle coopératif présente une bonne adéquation avec les résultats expérimentaux du PC et du PMMA. La dépendance à la vitesse de déformation du modèle d'Argon 2 présente une bonne adéquation avec les résultats expérimentaux du PC. Cependant, on peut

Modèle	Paramètre	PC	PMMA
Eyring	$\dot{\epsilon}_0^E$ (s ⁻¹)	1.38×10^{21}	4.23×10^{24}
	ΔH^E (kJ mol ⁻¹)	224	178
	V^E (m ³)	3.83×10^{-27}	6.78×10^{-28}
Eyring linéarisé	$\dot{\epsilon}_0^{LE}$ (s ⁻¹)	6.89×10^{20}	2.11×10^{24}
	ΔH^{LE} (kJ mol ⁻¹)	224	178
	V^{LE} (m ³)	1.92×10^{-27}	3.38×10^{-28}
Argon ($s_0 = \text{constante}$)	$\dot{\epsilon}_0^A$ (s ⁻¹)	1.06×10^{21}	1.92×10^{24}
	ΔH^A (kJ mol ⁻¹)	248	177
	V^A (m ³)	2.01×10^{-27}	2.60×10^{-28}
	s_0 (MPa)	205	1131
Argon 2 ($s_0 = s_0(T, \dot{\epsilon})$)	$\dot{\epsilon}_0^{A2}$ (s ⁻¹)	1.06×10^{21}	1.92×10^{24}
	ΔH^{A2} (kJ mol ⁻¹)	40	90
	V^{A2} (m ³)	2.01×10^{-27}	1.60×10^{-27}
	$E_1/E_2/E_3$ (MPa)	3500/1680/20	5500/2700/20
	$T_\beta/T_g/T_f$ (K)	173/423/450	290/387/466
	$m_1/m_2/m_3$	5/80/15	5/40/20
	$\dot{\epsilon}^{ref}$ (s ⁻¹)	1	1
	s	0.011	0.087
	ν_0/ν_c	0.38/0.4999	0.35/0.4999
	w	11	11
	ΔT (K)	10	12.5
Coopératif	$\dot{\epsilon}_0^C$ (s ⁻¹)	8.69×10^{12}	7.46×10^{15}
	ΔH^C (kJ mol ⁻¹)	40	90
	V^C (m ³)	5.14×10^{-29}	5.16×10^{-29}
	$\sigma_i(0)$ (MPa)	145	190
	m (MPa K ⁻¹)	0.24	0.47
	n	5.88	6.37
	T_g (K)	413	378
Paramètres communs	c_1^g	17.44	32.58
	c_2^g (°C)	51.6	83.5

Tableau 2.3 – Propriétés matériaux du PC et du PMMA. Les valeurs des différents paramètres sont issus des travaux de Richeton *et al.* [44, 85].

noter, sur la figure 2.5(b), que pour le PMMA, ce modèle ne permet pas de prévoir correctement les données expérimentales. Cet écart peut être dû au fait que les températures de relaxation β et de transition vitreuse sont proches.

2.4.3.3 Volume d'activation opérationnel

Sur la figure 2.6, l'évolution du volume d'activation opérationnel est présentée pour les différents modèles, pour le PC et le PMMA testés sous compression uniaxiale à une vitesse de déformation de 0.01 s⁻¹. Le volume d'activation opérationnel du modèle coopératif, proposé par Richeton *et al.* [65], et des deux modèles d'Argon [48] présentent une forte sensibilité à la température en particulier au voisinage de la température de transition vitreuse. Alors que le modèle d'Eyring linéarisé ne présente aucune sensibilité à la température du volume d'activation opérationnel, celui-ci augmente fortement au voisinage de la température de transition vitreuse pour le modèle d'Eyring.

Les figures 2.7 et 2.8 présentent la dépendance à la vitesse de déformation et à la température du volume d'activation opérationnel calculé par le modèle d'Argon 2 et le modèle coopératif pour le PC et le PMMA.

Pour les deux matériaux et les deux modèles, V_0 augmente avec la température et diminue avec la

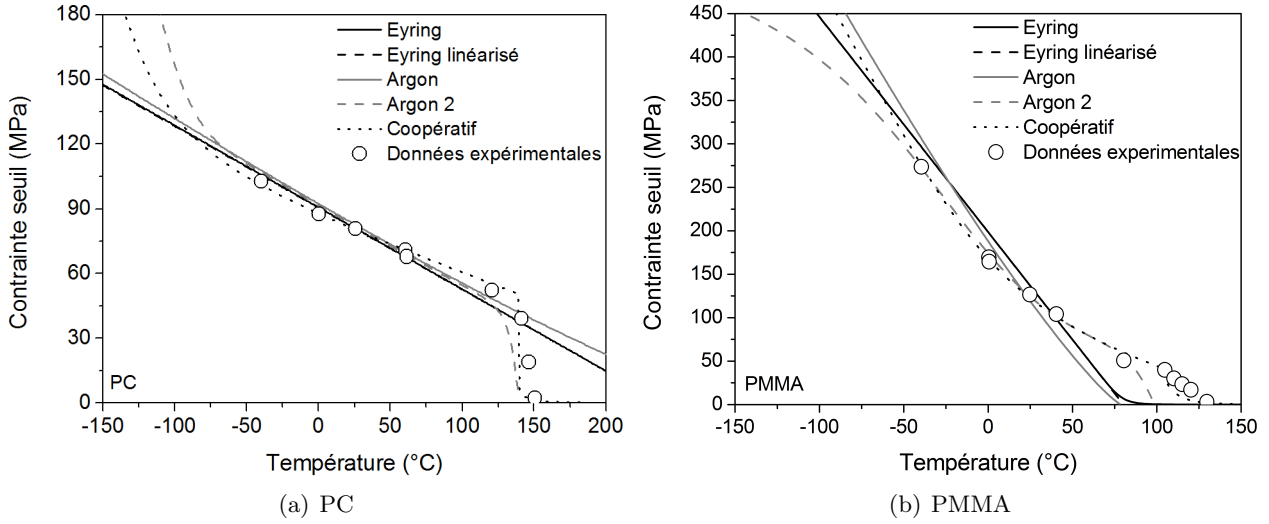


Figure 2.4 – Sensibilité à la température des différents modèles proposés et comparaison avec les résultats expérimentaux de Richeton *et al.* [85] pour (a) un PC et (b) un PMMA testés en compression uniaxiale à une vitesse de déformation de 0.01 s^{-1} .

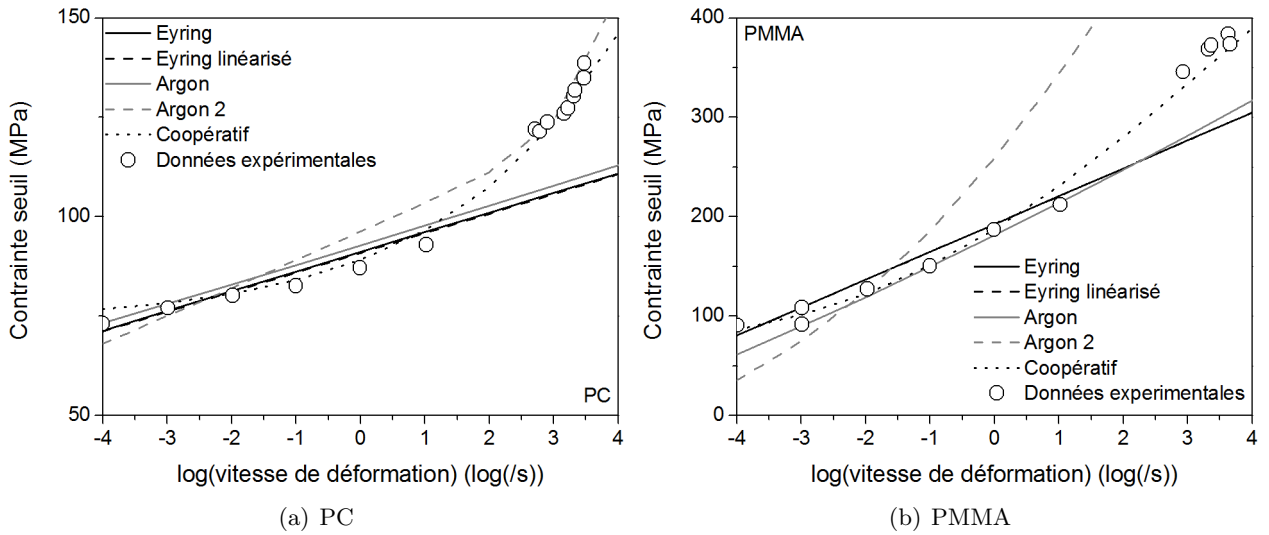


Figure 2.5 – Sensibilité à la vitesse de déformation des différents modèles proposés et comparaison avec les résultats expérimentaux de Richeton *et al.* [85] pour (a) un PC et (b) un PMMA testés en compression uniaxiale à une température de 25 °C .

vitesse de déformation. Lefebvre et Escaig [79] ont mesuré expérimentalement le volume d'activation opérationnel du PMMA. Pour le modèle coopératif les résultats numériques sont quantitativement en accord avec les résultats expérimentaux. En revanche, pour le modèle d'Argon 2, un facteur 10 existe entre les prévisions numériques et les résultats expérimentaux.

Pour les différents modèles, on constate que lorsque la température tend vers 0 K, le volume d'activation tend vers une valeur constante quelque soit la vitesse de déformation. Cette valeur correspond au volume d'activation opérationnel initial. Cette dernière est directement proportionnelle au volume d'activation du matériau. Pour chaque modèle, le volume d'activation opérationnel initial est donné dans le tableau 2.4. Lorsque la température s'approche de la température de relaxation secondaire, le volume d'activation opérationnel devient dépendant de la vitesse de déformation et augmente avec la température. À la température de transition vitreuse, le volume d'activation opérationnel augmente fortement et tend vers l'infini comme illustré sur les figures 2.7 et 2.8.

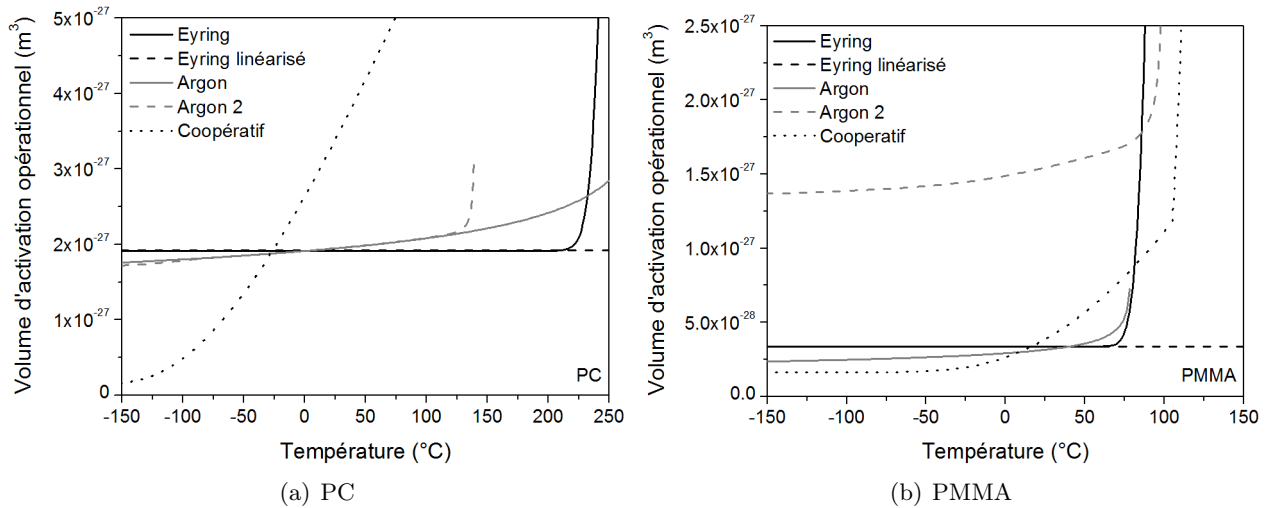


Figure 2.6 – Comparaison entre les différents modèles du volume d’activation opérationnel pour (a) un PC et (b) un PMMA testés en compression uniaxiale à une vitesse de déformation de 0.01 s^{-1} .

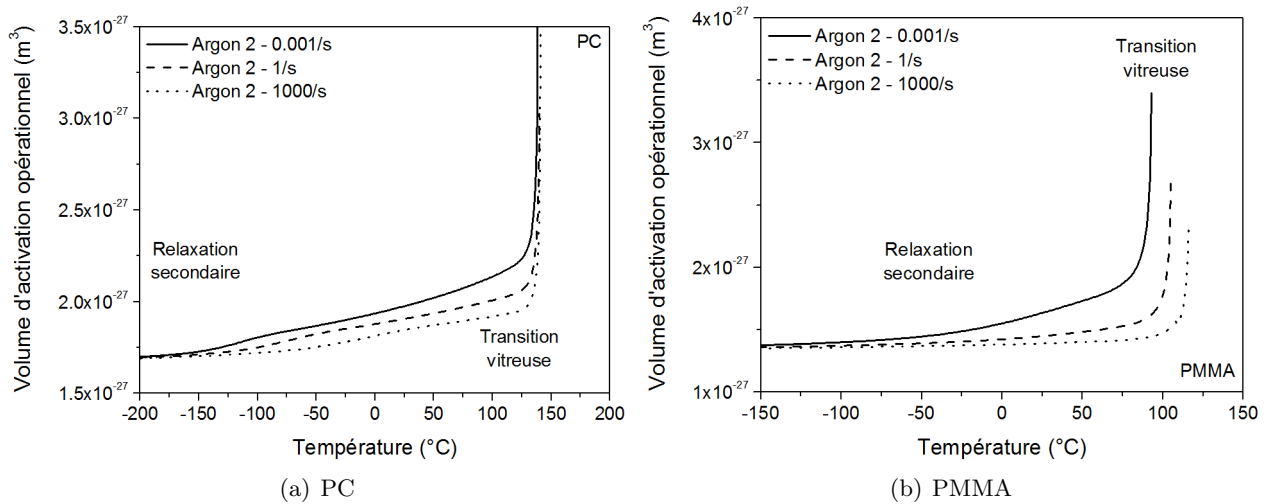


Figure 2.7 – Influence de la température et de la vitesse de déformation sur le volume d’activation opérationnel du modèle d’Argon 2 pour (a) un PC et (b) un PMMA testés en compression uniaxiale à une vitesse de déformation de 0.01 s^{-1} .

Modèle	Paramètre	PC	PMMA
Eyring	$V^E/2$	1.915×10^{-27}	3.39×10^{-28}
Eyring linéarisé	V^{LE}	1.92×10^{-27}	3.38×10^{-28}
Argon	$5/6 V^A$	1.675×10^{-27}	2.16×10^{-28}
Argon 2	$5/6 V^{A2}$	1.675×10^{-27}	1.33×10^{-27}
Coopératif	$nV^C/2$	1.51×10^{-28}	1.64×10^{-28}
Volume des liens statistiques en solution [86]		4.82×10^{-28}	9.10×10^{-28}

Tableau 2.4 – Comparaison des volumes d’activation opérationnels (en m^3) à 0 K.

2.4.3.4 Énergie d’activation opérationnelle

La figure 2.9 compare la distribution d’énergie d’activation opérationnelle des différents modèles en fonction de la température. L’énergie d’activation opérationnelle présente une dépendance linéaire

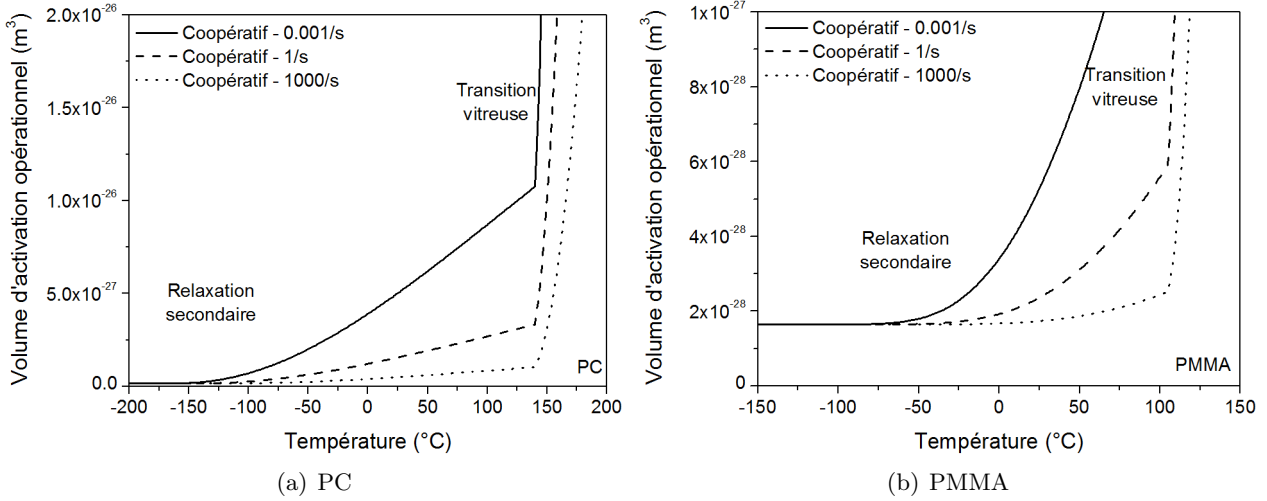


Figure 2.8 – Influence de la température et de la vitesse de déformation sur le volume d'activation opérationnel du modèle coopératif pour (a) un PC et (b) un PMMA testés en compression uniaxiale à une vitesse de déformation de 0.01 s^{-1} .

à la température pour les modèles d'Eyring, d'Eyring linéarisé et d'Argon. Les modèles d'Argon 2 et coopératif présentent une évolution significative de l'énergie d'activation opérationnelle en fonction de la température au voisinage de la relaxation secondaire et de la transition vitreuse. Une forte évolution de l'énergie d'activation opérationnelle est observée au voisinage de la relaxation secondaire pour le modèle d'Argon 2 alors que celle-ci est modérée pour le modèle coopératif comme on peut le voir sur la figure 2.11. Au voisinage de la température de transition vitreuse, l'énergie d'activation opérationnelle augmente fortement pour le modèle coopératif et le modèle d'Argon 2.

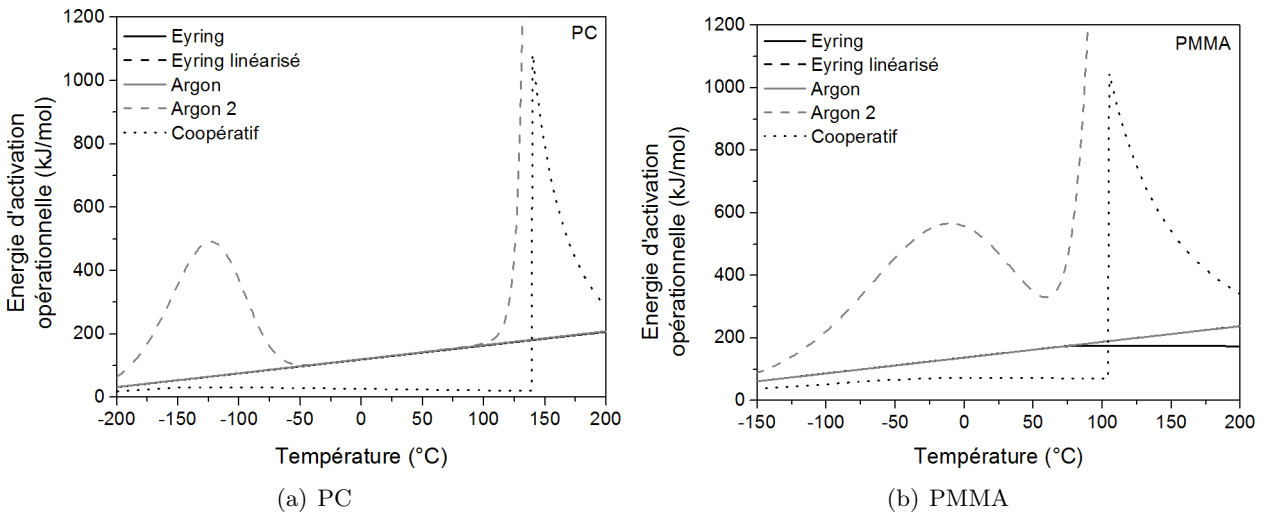


Figure 2.9 – Comparaison entre les différents modèles de l'énergie d'activation opérationnelle pour (a) un PC et (b) un PMMA testés en compression uniaxiale à une vitesse de déformation de 0.01 s^{-1} .

La sensibilité à la température et à la vitesse de déformation de l'énergie d'activation opérationnelle est présentée sur la figure 2.10 pour le modèle d'Argon 2 et sur la figure 2.11 pour le modèle coopératif pour le PC et le PMMA. Pour ces deux modèles, on observe un décalage en température du pic dû à la relaxation secondaire lorsque l'on augmente la vitesse de déformation. Lorsque la température de la relaxation secondaire est proche de la température de transition vitreuse, comme c'est le cas pour le PMMA à 1000 s^{-1} , le pic relatif à la relaxation secondaire tend à se confondre avec le pic dû

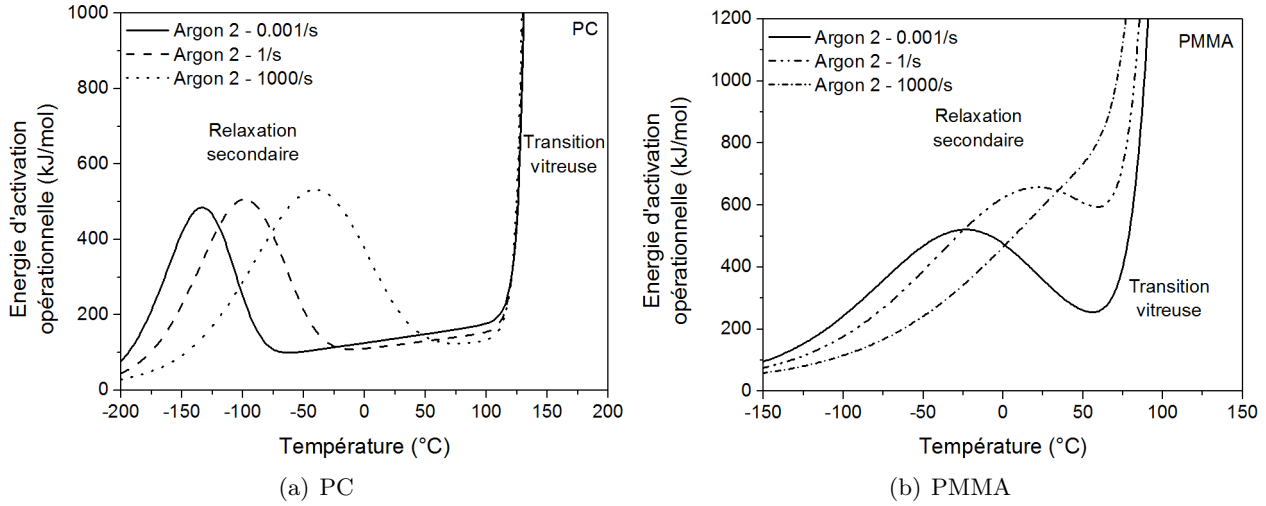


Figure 2.10 – Influence de la température et de la vitesse de déformation sur l'énergie d'activation opérationnelle du modèle d'Argon 2 pour (a) un PC et (b) un PMMA testés en compression uniaxiale à une vitesse de déformation de 0.01 s^{-1} .

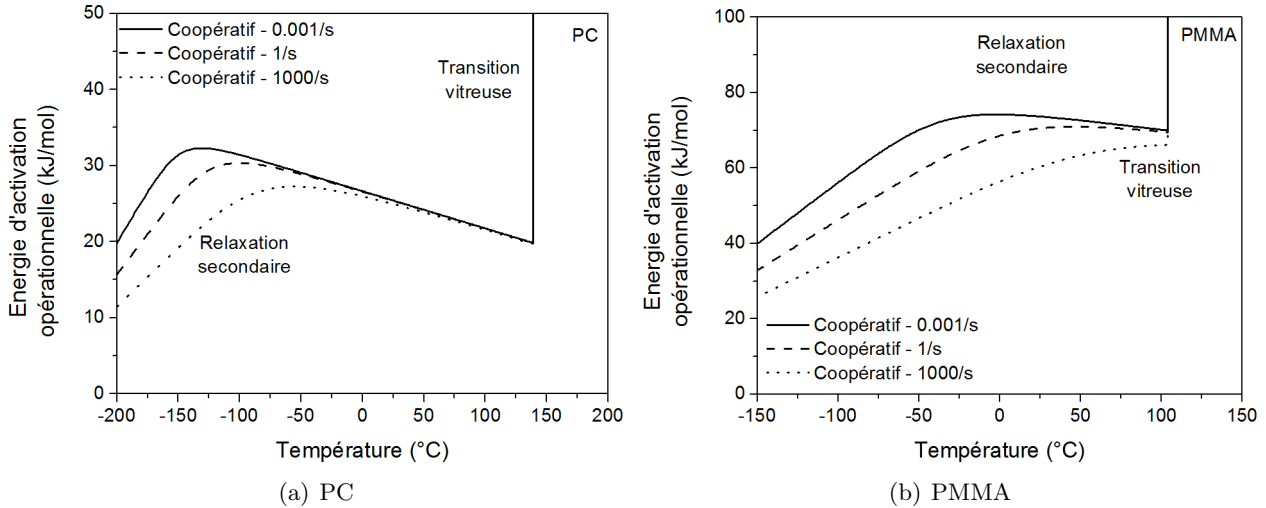


Figure 2.11 – Influence de la température et de la vitesse de déformation sur l'énergie d'activation opérationnelle du modèle coopératif pour (a) un PC et (b) un PMMA testés en compression uniaxiale à une vitesse de déformation de 0.01 s^{-1} .

à la température de transition vitreuse comme on peut le voir sur les figures 2.10(b) et 2.11(b). En accord avec la littérature [57–59, 61–64, 79], à basses températures, seule la transition secondaire β est responsable du processus de relaxation de la contrainte. À hautes températures, la relaxation de la contrainte est due à l'action conjointe de la transition secondaire β et de la transition vitreuse.

De fortes disparités existent entre la distribution de l'énergie d'activation opérationnelle donnée par le modèle d'Argon 2 et le modèle coopératif. Alors que l'énergie d'activation diminue lorsque la vitesse de déformation augmente pour le modèle coopératif, celle-ci augmente à la température de relaxation secondaire pour le modèle d'Argon 2. De plus, un facteur 10 est noté entre ces deux modèles pour la valeur maximale du pic dû à la relaxation secondaire.

2.4.4 Conclusion

Les effets de la vitesse de déformation et de la température ont été pris en compte dans le modèle d'Argon [48] à travers la définition de la contrainte athermique du matériau. Ainsi, il a été possible de

représenter l'évolution de la contrainte seuil des polymères amorphes en fonction de la température, de la région vitreuse à la température de transition vitreuse. La dépendance de la contrainte seuil à la vitesse de déformation a également été étudiée. Cependant, bien que pour le PC le modèle est capable de décrire la contrainte seuil en petites et grandes vitesses de déformation, une forte disparité entre la prévision numérique et les résultats expérimentaux a été observée pour le PMMA.

Une comparaison thermodynamique de différents modèles de contrainte seuil a mis en évidence l'influence de la relaxation secondaire et de la transition vitreuse dans le processus d'écoulement pour le modèle d'Argon 2 et le modèle coopératif. D'un point de vue thermodynamique, il semblerait que les modèles d'Eyring, d'Eyring linéarisé et d'Argon (s_0 constant) soient équivalents. De plus, ces modèles ne permettent pas de prendre en compte l'augmentation du niveau de la contrainte seuil apparaissant pour de grandes vitesses de déformation. À l'inverse, le modèle d'Argon 2 et le modèle coopératif permettent de modéliser la contrainte seuil sur de larges gammes de vitesses de déformation et de températures. Pour ces modèles, l'énergie et le volume d'activation opérationnels montrent l'influence de la relaxation secondaire dans le processus d'écoulement.

Contrairement au modèle coopératif, le modèle d'Argon 2 ne permet pas de modéliser la contrainte d'écoulement des polymères amorphes dans la région caoutchoutique. De plus, l'augmentation du niveau d'énergie d'activation opérationnelle, au niveau de la relaxation β , est beaucoup plus importante pour le modèle d'Argon 2 que pour le modèle coopératif.

2.5 Modélisation du durcissement structural

Le durcissement structural, induit par la déformation plastique, est lié au mode de sollicitation (élevé en traction, plus faible en compression et en torsion). Il peut être corrélé à l'orientation du matériau. Dans le cas d'un essai de traction, le durcissement structural démarre lorsque la striction s'est propagée sur la totalité de l'éprouvette. Au cours de la striction, les segments de chaînes polymères s'alignent dans la direction de chargement. Durant cette phase, la déformation est homogène et le matériau se comporte tel un élastomère. La microstructure des élastomères ou des polymères solides, suffisamment déformés pour observer un durcissement structural, est caractérisée par de longues chaînes moléculaires flexibles et un réseau tri-dimensionnel formé par réticulation ou enchevêtrement des molécules. Plusieurs modèles phénoménologiques [87–89] et micromécaniques [90–92] ont été développés ces dernières décennies dans le but de modéliser le comportement en grandes déformations des polymères. Le comportement hyperélastique des polymères est difficile à capturer numériquement. L'hypothèse d'incompressibilité du matériau, qui est généralement admise dans le cas des modèles hyperélastique, permet de décomposer, de manière additive, la fonction de l'énergie de déformation en une partie volumique, ψ_{vol} , et une partie isochore, ψ_{iso} [93–95] :

$$\psi(\mathbb{C}) = \psi_{vol}(J) + \psi_{iso}(\bar{\mathbb{C}}) \quad (2.67)$$

avec $J = \det \mathbb{F}$, $\mathbb{F}$ étant le gradient de déformation, $\mathbb{C} = \mathbb{F}^t \mathbb{F}$ le tenseur de Cauchy-Green droit et $\bar{\mathbb{C}} = J^{-2/3} \mathbb{C}$ la partie isochore de $\mathbb{C}$. La décomposition additive, donnée par l'équation 2.67, est conforme à la décomposition multiplicative de Flory [96], $\mathbb{C} = (J^{1/3}) \bar{\mathbb{C}}$ qui satisfait à la condition de compressibilité, $\det \bar{\mathbb{C}} = 1$.

Parmi les modèles phénoménologiques, les modèles basés sur les invariants de déformation sont fréquemment utilisés (modèles Néo-Hookéen, Mooney-Rivlin, Gent, Yeoh. . .). L'énergie de déformation ψ , continue dérivable, est une fonction qui dépend d'au moins un des invariants de déformation du tenseur de Cauchy-Green droit $\mathbb{C}$:

$$\begin{cases} I_1 = \lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 \\ I_2 = \lambda_1^2 \lambda_2^2 + \lambda_2^2 \lambda_3^2 + \lambda_1^2 \lambda_3^2 \\ I_3 = \lambda_1^2 \lambda_2^2 \lambda_3^2 \end{cases}, \quad (2.68)$$

où λ_i sont les élongations principales du gradient de déformation $\mathbb{F}$.

En supposant l'incompressibilité du matériau ($I_3 = 1$), on peut écrire l'énergie de déformation comme étant une série de puissance :

$$\psi = \tilde{\psi}(I_1, I_2) = \sum_{p,q=0}^{\infty} C_{pq}(I_1 - 3)^p(I_2 - 3)^q \quad (2.69)$$

avec C_{pq} des paramètres matériau et $C_{00} = 0$.

D'autres modèles, tels que les modèles d'Ogden [87], d'Attard [97, 98]..., sont basés sur les élongations principales ($\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$). L'énergie de déformation s'écrit alors sous la forme :

$$\psi = \tilde{\psi}_{iso}(\bar{\lambda}_1, \bar{\lambda}_2, \bar{\lambda}_3) + \tilde{\psi}_{vol}(J) \quad (2.70)$$

avec $\bar{\lambda}_i = J^{-1/3}\lambda_i$ ($i=1, 2, 3$) les élongations principales du gradient de déformation $\mathbb{F}$.

Les contraintes principales du tenseur des contraintes de rappel $\mathbb{B}$ sont définies par :

$$\mathbb{B}_i = \lambda_i \frac{d\psi}{d\lambda_i} + p. \quad (2.71)$$

La pression hydrostatique p est déterminée en considérant le matériau incompressible ($\lambda_1\lambda_2\lambda_3 = 1$ ou trace $\mathbb{B} = 0$).

La dernière catégorie de modèles concerne les modèles micro-mécaniques. Pour ces modèles, l'approche mécanique statistique est adoptée dans le but d'obtenir des informations à l'échelle microscopique et de les transférer à l'échelle macroscopique en les moyennant ou en les homogénéisant. Plusieurs modèles micro-mécaniques, tels que les modèles 3-chaînes, 4-chaînes, 8-chaînes, full-network..., ont été développés.

L'approche mécanique statistique suppose une structure de longues chaînes moléculaires orientées aléatoirement. Lorsqu'une force est appliquée, la structure de la chaîne polymère s'étire et son entropie configurationnelle diminue. Deux théories sont communément utilisées pour décrire la distribution statistique des chaînes polymères : la théorie Gaussienne et la théorie non-Gaussienne. La théorie Gaussienne considère que la longueur de la chaîne déformée est négligeable devant sa longueur initiale. Dans ce cas, l'énergie de déformation s'écrit :

$$\psi = \frac{1}{2}nkT(\lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 - 3) \quad (2.72)$$

avec $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$ les élongations principales, T la température absolue, k la constante de Boltzmann, n le nombre de chaînes par unité de volume et $C_R = nkT$ le module caoutchoutique.

La théorie non-Gaussienne, utilisée par Kuhn et Gr  n [99] en 1942, prend en compte la limite d'extensibilit   des cha  nes polym  res. L'  nergie de d  formation pour une cha  ne polym  re s'  crit :

$$\psi = nkT \sum_{i=1}^3 \left(\frac{\lambda_i}{\sqrt{N}} \beta_i + \ln \left(\frac{\beta_i}{\sinh \beta_i} \right) \right) \text{ avec } \beta_i = \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda_i}{\sqrt{N}} \right) \quad (2.73)$$

o   $\mathcal{L}^{-1}$ est l'inverse de la fonction de Langevin d  finie par $\mathcal{L}(x) = \coth(x) - 1/x$ et N le nombre de liaisons statiquement totalement   tir  es lorsque le mat  riau atteint sa d  formation maximale. On parle alors de d  formation de verrouillage, d  formation    partir de laquelle les segments de cha  nes polym  res sont consid  r  s comme totalement   tir  s. Ce ph  nom  ne entraine une brusque augmentation de la rigidit   du mat  riau. En 1943, James et Guth [100] proposent une   quation constitutive bas  e sur la th  orie non-Gaussienne pour d  crire le comportement des cha  nes   lastom  res au cours de la d  formation du polym  re. Ils supposent que les cha  nes sont distribu  es al  atoirement et la d  formation du r  seau est donn  e par le gradient de d  formation.

Parmi les nombreux mod  les hyper  lastiques qui permettent de d  crire le comportement des   lastom  res ou le durcissement structural des polym  res solides, seuls quelques uns seront d  crits ci-dessous. L'influence de la temp  rature sur le comportement m  canique des mat  riaux pourra   tre rajout  e pour certains de ces mod  les.

2.5.1 Modèle Néo-Hookéen

Le modèle Néo-Hookéen a été développé par Rivlin en 1948 [101] pour l'étude des caoutchoucs vulcanisés. Ce modèle est basé sur une approche statistique de la thermodynamique de chaînes polymères réticulées. Le potentiel énergétique s'écrit à partir du premier invariant de déformation I_1 , donné par l'équation 2.68, et est donnée par la relation :

$$\psi^{NH} = C_{10}(I_1 - 3) \quad (2.74)$$

avec C_{10} une constante matériau reliée au module de cisaillement par la relation $\mu = 2C_{10}$.

En utilisant l'équation 2.71 et la relation $\mu = 2C_{10}$, et, en supposant que le matériau est incompressible, on détermine les contraintes principales du tenseur des contraintes de rappel pour le modèle Néo-Hookéen par la relation :

$$\mathbb{B}_i^{NH} = \mu \left(\lambda_i^2 - \frac{1}{3}I_1 \right). \quad (2.75)$$

2.5.2 Modèle de Mooney-Rivlin

Mooney [102] écrit le potentiel énergétique comme étant la combinaison linéaire de deux invariants de déformation I_1 et I_2 donnés par la relation 2.68 :

$$\psi^{MR} = C_{10}(I_1 - 3) + C_{01}(I_2 - 3) \quad (2.76)$$

avec C_{10} , C_{01} des constantes matériau reliées au module de cisaillement par la relation $\mu = 2(C_{10} + C_{01})$.

En utilisant l'équation 2.71 et en supposant le matériau comme incompressible, on détermine les contraintes principales du tenseur des contraintes de rappel $\mathbb{B}$ pour le modèle de Mooney-Rivlin :

$$\mathbb{B}_i^{MR} = 2\lambda_i^2 \left(C_{10} + C_{01} \left(\sum_{\substack{j=1,3 \\ j \neq i}} \lambda_j^2 \right) \right) + p. \quad (2.77)$$

En supposant le matériau comme incompressible (trace $\mathbb{B} = 0$), les contraintes principales deviennent :

$$\mathbb{B}_i^{MR} = 2C_{10} \left(\lambda_i^2 - \frac{1}{3}I_1 \right) + 2C_{01} \left(\lambda_i^2 \left(\sum_{\substack{j=1,3 \\ j \neq i}} \lambda_j^2 \right) - \frac{2}{3}I_2 \right). \quad (2.78)$$

Ce modèle, souvent référencé comme le modèle de Mooney-Rivlin, est largement utilisé pour prévoir le comportement non-linéaire des matériaux caoutchoutiques.

2.5.3 Modèle de Yeoh

Le modèle de Yeoh a été proposé la première fois en 1990 [103]. Il a été développé pour décrire le comportement de matériaux incompressibles de type élastomère. Le potentiel énergétique proposé par Yeoh [103] est une fonction polynomiale du 3^{ième} ordre qui n'utilise que le premier invariant de déformation I_1 . Ce potentiel s'écrit :

$$\psi^Y = C_{10}(I_1 - 3) + C_{20}(I_1 - 3)^2 + C_{30}(I_1 - 3)^3 \quad (2.79)$$

avec C_{10} , C_{20} , C_{30} trois paramètres matériau. Le module de cisaillement est relié au paramètre C_{10} par la relation : $\mu = 2C_{10}$.

En utilisant l'équation l'équation 2.71, on détermine les contraintes principales du tenseur des contraintes de rappel :

$$\mathbb{B}_i^Y = 2\lambda_i^2 \left(C_{10} + 2C_{20}(I_1 - 3) + 3C_{30}(I_1 - 3)^2 \right) + p. \quad (2.80)$$

En considérant le matériau incompressible (trace $\mathbb{B} = 0$), on détermine p . Ainsi, les contraintes principales du tenseur des contraintes de rappel, pour le modèle de Yeoh s'écrivent :

$$\mathbb{B}_i^Y = 2 \left(\lambda_i^2 - \frac{1}{3}I_1 \right) \left(C_{10} + 2C_{20}(I_1 - 3) + 3C_{30}(I_1 - 3)^2 \right). \quad (2.81)$$

2.5.4 Modèle de Gent

Le modèle de Gent [89] est un modèle phénoménologique basé sur le principe d'extensibilité maximale des chaînes macromoléculaires. Gent propose ce modèle afin de prendre en compte le phénomène de verrouillage (limite d'extensibilité) des chaînes polymères qui apparaît lorsque les chaînes polymères se sont complètement étirées. Ainsi, le premier invariant de déformation I_1 tend vers une valeur critique I_m . Le potentiel énergétique associé au modèle de Gent s'écrit :

$$\psi^{Gent} = -\frac{E}{6}(I_m - 3) \ln \left(1 - \frac{I_1 - 3}{I_m - 3} \right) \quad (2.82)$$

avec E le module d'élasticité correspondant à la pente initiale de la courbe contrainte-déformation du matériau soumis à un essai de traction uniaxiale.

À partir de l'équation 2.71, l'expression des contraintes principales du tenseur des contraintes de rappel s'écrit sous la forme :

$$B_i^{Gent} = \frac{E}{3} \frac{I_m - 3}{I_m - I_1} \lambda_i^2 - p. \quad (2.83)$$

L'utilisation de l'hypothèse d'incompressibilité (trace $\mathbb{B} = 0$) nous permet de déduire l'expression de la pression et, par conséquent, l'expression des contraintes principales devient :

$$B_i^{Gent} = \frac{E}{3} \frac{I_m - 3}{I_m - I_1} \left(\lambda_i^2 - \frac{I_1}{3} \right). \quad (2.84)$$

2.5.5 Modèle 3-chaînes

Le modèle 3-chaînes a été proposé par Guth et ses collaborateurs [91, 100]. Dans ce modèle, 3 chaînes sont supposées représenter le réseau tri-dimensionnel qui est orienté suivant les directions principales comme illustré sur la figure 2.12.

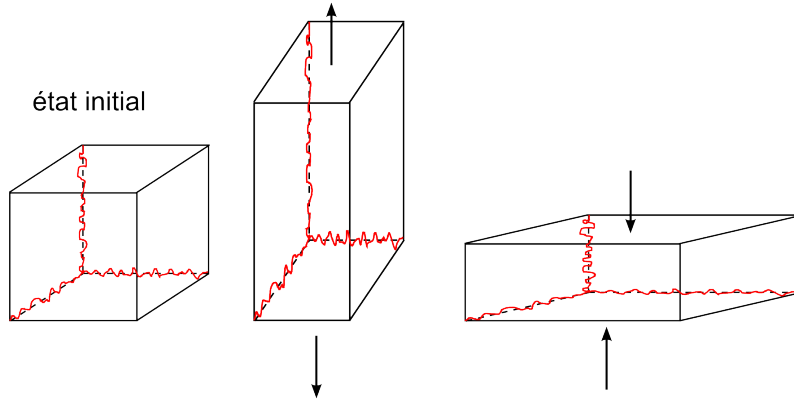


Figure 2.12 – Représentation schématique du modèle 3-chaînes. Les 3 chaînes, attachées à un coin de la cellule cubique, sont représentées au repos, et soumises à un état de traction et de compression uniaxiales.

Pour décrire l'énergie d'activation de tout le réseau tri-dimensionnel, James et Guth [100] considèrent que n chaînes sont distribuées uniformément suivant les trois directions principales (densité de la chaîne égale à $N/3$ dans chaque direction). Le potentiel énergétique d'une chaîne est donné par l'expression :

$$\psi^{3-ch} = \frac{C_r N}{3} \sum_{i=1}^3 \left(\frac{\lambda_i}{\sqrt{N}} \beta_i + \ln \left(\frac{\beta_i}{\sinh \beta_i} \right) \right) \text{ avec } \beta_i = \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda_i}{\sqrt{N}} \right). \quad (2.85)$$

avec $\mathcal{L}^{-1}$ l'inverse de la fonction de Langevin employé pour prendre en compte le comportement en grandes déformations des polymères, $C_r = nkT$ le module caoutchoutique et N le nombre de liaisons

statistiquement totalement étirées lorsque le matériau atteint sa déformation maximale. Dans le repère principal, les contraintes principales du tenseur des contraintes de rappel $\mathbb{B}$ sont données par :

$$\mathbb{B}_i^{3-ch} = \frac{C_R \sqrt{N}}{3} \lambda_i \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda_i}{\sqrt{N}} \right) + p. \quad (2.86)$$

En considérant l'hypothèse d'incompressibilité (trace $\mathbb{B} = 0$), on détermine la pression p . Ainsi, les contraintes principales du tenseur des contraintes de rappel s'écrivent :

$$\mathbb{B}_i^{3-ch} = \frac{C_R \sqrt{N}}{3} \left(\lambda_i \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda_i}{\sqrt{N}} \right) - \frac{1}{3} \sum_{j=1}^3 \lambda_j \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda_j}{\sqrt{N}} \right) \right). \quad (2.87)$$

Le modèle 3-chaînes prévoit correctement le comportement des élastomères en traction uniaxiale. Cependant, il ne permet pas de modéliser correctement leur comportement en traction équibiaxiale et en cisaillement pur.

2.5.6 Modèle 4-chaînes

Le modèle 4-chaînes, originalement développé par Flory et Rehner [104], consiste en quatre chaînes attachées chacune à un sommet (A, B, C et D) d'un tétraèdre droit régulier de centre O et reliées ensemble au point de jonction P, à l'intérieur du tétraèdre, comme illustré sur la figure 2.13.

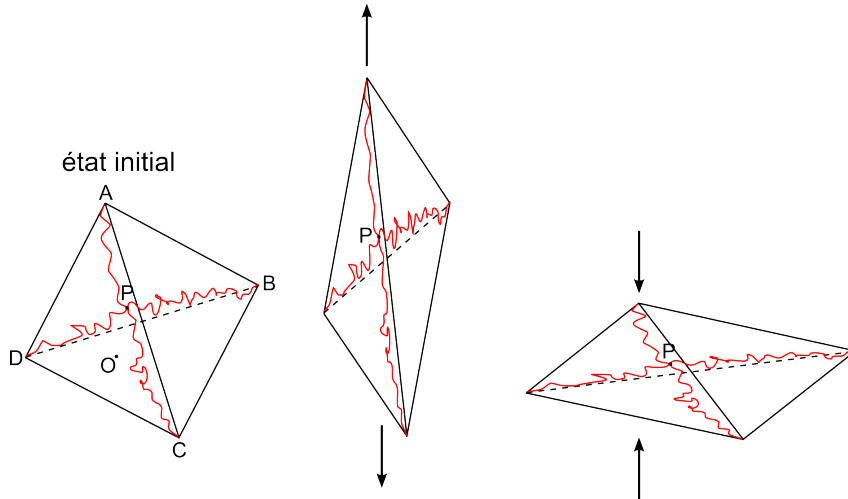


Figure 2.13 – Représentation schématique du modèle 4-chaînes. Les 4 chaînes, attachées au point de jonction P à l'intérieur du tétraèdre, sont représentées au repos, et soumises à un effort de traction et de compression uniaxiaux.

Soit $OA = \lambda$, la longueur moyenne de chaque chaîne à l'état non-déformé. Lorsque le solide est contraint, le tétraèdre se déforme de manière homogène. La position des différents sommets du tétraèdre et du point de jonction bougent de leur position initiale. Leurs nouvelles coordonnées sont exprimées en fonction des cosinus entre le repère initial et le repère principal de déformation. Plus de détails sur le calcul des nouvelles coordonnées sont données dans les travaux de Flory et Rehner [104] et Treloar [90]. Après déformation, la longueur OA devient égale à $\alpha\lambda$ avec α le rapport entre la longueur actuelle et la longueur initiale le long de l'axe de déformation. Après calcul, le potentiel énergétique du modèle 4-chaînes est donné par l'expression [90] :

$$\psi^{4-ch} = \frac{1}{2} C_R \left(\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2 - 3 \right) \dots \quad (2.88)$$

avec C_R le module caoutchoutique et α_i le rapport entre la longueur déformée et la longueur initiale le long de l'axe principal de déformation i . Il a été montré par Flory et Rehner [104] et Treloar [90] que le

potentiel énergétique du modèle 4-chaînes était indépendant des directions principales de déformation. Treloar [90, 105] a modifié le modèle 4-chaînes en l'étendant aux chaînes non-Gaussiennes. Le tétraèdre se déforme en accord avec la déformation imposée et les chaînes se déforment en accord avec le point de jonction P en se déplaçant de manière non-affine jusqu'à ce que l'équilibre soit satisfait. Le modèle 4-chaînes présente le désavantage que la forme des courbes force-déplacement et l'extensibilité maximale des chaînes polymères dépendent considérablement de la direction de l'élongation. Ainsi, Wang et Guth [91] soutiennent que ces défauts rendent le modèle irréaliste. De plus, le modèle 4-chaînes présentant une expression mathématique complexe, il est rarement utilisé dans la littérature. Par conséquent, l'expression du tenseur des contraintes de rappel ne sera pas donnée ici.

2.5.7 Modèle 8-chaînes

Le modèle 8-chaînes, développé par Arruda et Boyce [92], est basé sur une représentation avec 8-chaînes de la structure macromoléculaire des élastomères. Les chaînes sont attachées à chaque coin d'une cellule cubique et attachées ensemble au centre de la cellule au point de jonction P comme illustré sur la figure 2.14.

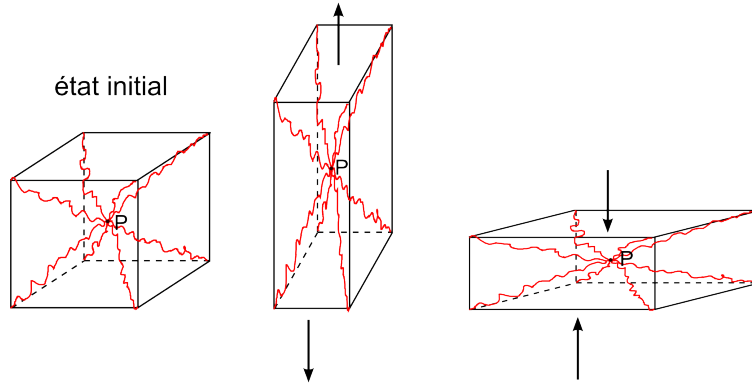


Figure 2.14 – Représentation schématique du modèle 8-chaînes. Les 8 chaînes, attachées au centre de la cellule cubique au point de jonction P, sont représentées au repos, et soumises à un état de traction et de compression uniaxiales.

Dues aux conditions de symétrie de la structure, le point de jonction P des chaînes est toujours localisé au centre de la structure. L'étirement de chaque chaîne dans la structure est déterminé comme étant :

$$\lambda_{chain} = \sqrt{\frac{1}{3}(\lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2)} \quad (2.89)$$

avec $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$ les élongations dans le repère principal (valeurs principales du gradient de déformation $\mathbb{F}$). Ainsi, le potentiel énergétique est défini par :

$$\psi^{8-ch} = C_r \sqrt{N} \left(\beta_{chain} \lambda_{chain} + \sqrt{N} \ln \left(\frac{\beta_{chain}}{\sinh \beta_{chain}} \right) \right) \text{ avec } \beta_{chain} = \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda_{chain}}{\sqrt{N}} \right) \quad (2.90)$$

avec $\mathcal{L}^{-1}$ l'inverse de la fonction de Langevin, C_R le module caoutchoutique et N le nombre de liaisons statistiquement totalement étirées lorsque le matériau atteint sa déformation maximale.

En utilisant l'équation 2.71 et en supposant que le terme $\partial \beta_{chain} / \partial \lambda_i$ est négligeable devant les autres termes, on détermine les contraintes principales du tenseur des contraintes de rappel $\mathbb{B}$:

$$\mathbb{B}_i^{8-ch} = \frac{C_r \sqrt{N}}{3} \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda_{chain}}{\sqrt{N}} \right) \frac{\lambda_i^2}{\lambda_{chain}} + p. \quad (2.91)$$

En supposant que le matériau est incompressible (trace $\mathbb{B} = 0$), l'expression des contraintes principales devient :

$$\mathbb{B}_i^{8-ch} = \frac{C_r \sqrt{N}}{3} \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda_{chain}}{\sqrt{N}} \right) \frac{\lambda_i^2 - \lambda_{chain}^2}{\lambda_{chain}}. \quad (2.92)$$

Le modèle 8-chaînes tient compte de la nature tri-dimensionnelle des mécanismes de déformation des polymères caoutchoutiques. Ce modèle nécessite seulement deux paramètres : le module caoutchoutique C_r et l'extensibilité maximale des chaînes N . Ces deux paramètres peuvent être déterminés à partir d'un seul essai (essai de traction, de compression, de cisaillement pur ou encore un essai bi-axial).

Boyce [106, 107] a comparé le modèle 8-chaînes et le modèle de Gent. Elle a ainsi montré que ces deux modèles présentaient des résultats similaires. Ainsi, un parallèle peut être fait entre les paramètres de ces deux modèles. Boyce [106] note que le module d'élasticité du modèle de Gent est relié au module caoutchoutique du modèle 8-chaînes par la relation :

$$E = 3C_R. \quad (2.93)$$

De plus, une comparaison peut être faite entre la fonction inverse de Langevin du modèle 8-chaînes et le rapport $(I_1 - 3)/(I_m - 3)$ du modèle de Gent (équation 2.82). Ainsi :

$$\frac{I_1 - 3}{I_m - 3} \equiv \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda_{chain}}{\sqrt{N}} \right). \quad (2.94)$$

2.5.8 Modèle full-network

Wu et van der Giessen [108, 109] propose un modèle appelé « full-network ». Afin d'améliorer les capacités de modélisation du durcissement structural des polymères amorphes, les chaînes polymères, distribuées aléatoirement dans l'espace, sont connectées au centre d'une sphère, comme représentées sur la figure 2.15, et se déforment de manière affine. Au repos, la chaîne polymère, de longueur initiale $\|\vec{r}_0\|$, est orientée suivant la direction $\vec{r}_0$ caractérisée par les angles θ_0 et φ_0 tels que $0 \leq \theta_0 \leq \pi$ et $0 \leq \varphi_0 \leq 2\pi$ par rapport au repère initial de référence $(O, \vec{e}_1^0, \vec{e}_2^0, \vec{e}_3^0)$. Lorsque le polymère est soumis à un effort, la chaîne polymère sera alors de longueur $\|\vec{r}\|$, orientée suivant la direction $\vec{r}$ caractérisée par les angles θ et φ par rapport au repère déformée $(O, \vec{e}_1, \vec{e}_2, \vec{e}_3)$. Les deux repères $(O, \vec{e}_1^0, \vec{e}_2^0, \vec{e}_3^0)$ et $(O, \vec{e}_1, \vec{e}_2, \vec{e}_3)$ sont choisis arbitrairement.

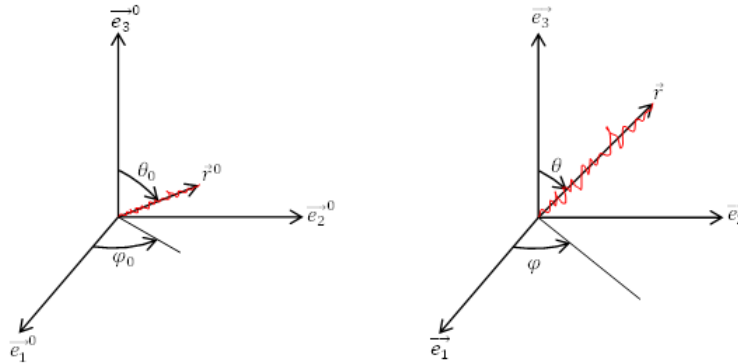


Figure 2.15 – Représentation schématisée du modèle « full-network ». Une seule chaîne est modélisée dans son état au repos et dans un état contraint.

Wu et van der Giessen [108, 109] supposent que les chaînes polymères sont distribuées aléatoires dans le réseau tri-dimensionnel constitué de n chaînes par unité de volume. De plus, ils supposent que la déformation du réseau tri-dimensionnel est homogène. Le potentiel énergétique ψ du réseau tri-dimensionnel est égale à la somme des potentiels énergétiques ψ de chaque chaîne :

$$\psi^{full-net} = \int \psi \, dn \quad (2.95)$$

où dn , le nombre actuel de chaînes se trouvant entre (θ, φ) et $(\theta + d\theta, \varphi + d\varphi)$, est défini par :

$$dn = nC(\theta, \varphi, t) \sin \theta d\theta d\varphi \quad (2.96)$$

où $C(\theta, \varphi, t)$ est une fonction de distribution de l'orientation des chaînes moléculaires orientées suivant la direction $\vec{r}$ à l'instant t . Ainsi, le potentiel énergétique pour le modèle « full-network » s'écrit :

$$\psi^{full-net} = \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \psi C(\theta, \varphi, \lambda_i) \sin \theta d\theta d\varphi. \quad (2.97)$$

Afin de déterminer les composantes du tenseur des contraintes de rappel $\mathbb{B}^{full-net}$, on calcule la dérivée du potentiel énergétique par rapport à l'élongation dans la direction i , en accord avec l'équation 2.71 :

$$\frac{d\psi^{full-net}}{d\lambda_i} = n \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \frac{d\psi}{d\lambda_i} C \sin \theta d\theta d\varphi \quad (2.98)$$

où

$$\frac{d\psi}{d\lambda_i} = \frac{\partial \psi}{\partial \lambda} \frac{d\lambda}{d\lambda_i} \text{ avec } \frac{\partial \psi}{\partial \lambda} = kT\sqrt{N}\mathcal{L}^{-1}\left(\frac{\lambda}{\sqrt{N}}\right) \quad (2.99)$$

où k est la constante de Boltzmann, T la température absolue, N le nombre de liaisons statistiquement totalement étirées, $\mathcal{L}^{-1}$ l'inverse de la fonction de Langevin et

$$\lambda^2 = \sum_{i=1}^3 (m_i^0)^2 \lambda_i^2 \quad (2.100)$$

avec m_i^0 les composantes du vecteur de direction unité dans la base Lagrangienne $(O, \vec{e}_1^0, \vec{e}_2^0, \vec{e}_3^0)$ reliées aux composantes m_i du vecteur de direction unité dans la base Eulérienne $(O, \vec{e}_1, \vec{e}_2, \vec{e}_3)$ par la relation :

$$m_i = \frac{\lambda_i}{\lambda} m_i^0 \quad (2.101)$$

avec

$$\vec{m}^0 = \begin{cases} m_1^0 = \sin \theta_0 \cos \varphi_0 \\ m_2^0 = \sin \theta_0 \sin \varphi_0 \\ m_3^0 = \cos \theta_0 \end{cases} \quad \text{et} \quad \vec{m} = \begin{cases} m_1 = \sin \theta \cos \varphi \\ m_2 = \sin \theta \sin \varphi \\ m_3 = \cos \theta \end{cases}. \quad (2.102)$$

En introduisant les relations 2.98, 2.99 et 2.100 dans l'équation 2.71, on détermine les contraintes principales du tenseur des contraintes de rappel dans la base Eulérienne :

$$\mathbb{B}_{i_E}^{full-net} = \frac{C_r \sqrt{N}}{4\pi} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \mathcal{L}^{-1}\left(\frac{\lambda}{\sqrt{N}}\right) \lambda^4 m_i^2 \sin \theta d\theta d\varphi + p \quad (2.103)$$

et dans la base Lagrangienne :

$$\mathbb{B}_{i_L}^{full-net} = \frac{C_r \sqrt{N}}{4\pi} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \mathcal{L}^{-1}\left(\frac{\lambda}{\sqrt{N}}\right) \frac{\lambda_i^2 m_i^2}{\lambda} \sin \theta_0 d\theta_0 d\varphi_0 + p. \quad (2.104)$$

En considérant l'hypothèse d'incompressibilité (trace $\mathbb{B} = 0$), on détermine la pression p pour chacune des deux expressions du tenseur des contraintes de rappel du modèle « full-network ». Ainsi, les composantes du tenseur des contraintes de rappel s'écrivent :

$$\begin{cases} \mathbb{B}_{i_E}^{full-net} = \frac{C_r \sqrt{N}}{4\pi} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \mathcal{L}^{-1}\left(\frac{\lambda}{\sqrt{N}}\right) \lambda^4 \left(m_i^2 - \frac{1}{3}\right) \sin \theta d\theta d\varphi \\ \mathbb{B}_{i_L}^{full-net} = \frac{C_r \sqrt{N}}{4\pi} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \mathcal{L}^{-1}\left(\frac{\lambda}{\sqrt{N}}\right) \left(\frac{\lambda_i^2 m_i^2}{\lambda} - \frac{\lambda}{3}\right) \sin \theta_0 d\theta_0 d\varphi_0 \end{cases}. \quad (2.105)$$

Wu et van der Giessen [108, 109] ont également comparé le modèle « full-network » avec les modèles 3-chaînes et 8-chaînes. Ils ont montré que, pour les mêmes valeurs des paramètres C_r et N , la réponse du modèle « full-network » est toujours comprise entre la réponse du modèle 3-chaînes et celle du modèle 8-chaînes (équations 2.87 et 2.92). Dues à ces observations et au fait que la résolution de

l'équation 2.103 ou 2.104 est coûteuse en temps de calcul, une approximation du modèle « full-network » a été déterminée en combinant les modèles 3-chaînes et 8-chaînes :

$$\mathbb{B}_i^{full-net} = (1 - \rho)\mathbb{B}_i^{3-ch} + \rho\mathbb{B}_i^{8-ch} \quad (2.106)$$

où ρ est un paramètre matériau relié à l'élongation maximale dans le repère principal :

$$\rho = \frac{0.85}{\sqrt{N}} \max(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3). \quad (2.107)$$

Le facteur 0.85 a été déterminé dans le but d'obtenir la meilleure corrélation de l'équation 2.103 ou 2.104 après intégration sur la sphère unité. La contribution du modèle 8-chaînes devient importante quand λ_{max} s'approche de l'étirement limite $\lambda_L = \sqrt{N}$ pour une seule chaîne.

2.5.9 Modèle GD

Le modèle GD, développé par Gornet, Marckmann, Desmorat et Charrier [110], est un modèle phénoménologique dont le potentiel énergétique est exprimé en fonction des deux premiers invariants de déformation (I_1 et I_2). Ainsi, en considérant le matériau comme isotrope et incompressible, le potentiel énergétique s'écrit :

$$\psi^{GD}(I_1, I_2) = \psi_1(I_1) + \phi_2(I_2) = h_1 \int e^{h_3(I_1-3)^2} dI_1 + 3h_2 \int \frac{1}{\sqrt{I_2}} dI_2 \quad (2.108)$$

où h_1 , h_2 et h_3 , des paramètres matériau, déterminés par calibrage du modèle sur les données expérimentales. En accord avec les auteurs [110], la part du potentiel énergétique décrit par I_1 représente la réponse globale du matériau et est équivalent au modèle de Hart-Smith [111]. La seconde partie du potentiel énergétique, impliquant le second invariant de déformation I_2 , permet d'améliorer les prévisions du modèle lors des conditions de chargements multiaxiaux.

Le tenseur des contraintes de rappel, obtenu par différenciation du potentiel énergétique, est donné par :

$$\mathbb{B}^{GD} = -p\mathbb{I} + 2 \left(\frac{\partial \psi^{GD}}{\partial I_1} + I_1 \frac{\partial \psi^{GD}}{\partial I_2} \right) \mathbb{B} - 2 \frac{\partial \psi^{GD}}{\partial I_2} \mathbb{B}^2 \text{ avec } \mathbb{B} = \mathbb{F}\mathbb{F}^T. \quad (2.109)$$

Les différentiations du potentiel énergétique, par rapport à I_1 et I_2 , sont égales à :

$$\begin{cases} \frac{\partial \psi^{GD}}{\partial I_1} = h_1 e^{h_3(I_1-3)^2} \\ \frac{\partial \psi^{GD}}{\partial I_2} = \frac{3h_2}{\sqrt{I_2}} \end{cases} \quad (2.110)$$

La pression hydrostatique p est déterminée en supposant le matériau comme incompressible (trace $\mathbb{B} = 0$).

En comparant le modèle GD au modèle 8-chaînes, Gornet *et al.* [110] ont mis en évidence les motivations physiques du modèle phénoménologique.

Chagnon *et al.* [112] ont établi que le terme en I_1 du potentiel énergétique décrivant le modèle de Hart-Smith ($\psi_1(I_1)$), qui est identique au modèle GD, est équivalent au modèle 8-chaînes et au modèle de Gent sur une gamme de déformations allant jusqu'au verrouillage des segments de chaînes polymères.

Le terme en I_2 ($\psi_2(I_2)$) peut-être vu comme étant une correction de la théorie de réseau fantôme (terme en I_1). Le terme $3h_2$ représente la limitation de la pression due à l'enchevêtrement du réseau 8-chaînes.

Le modèle GD a été étendu aux matériaux isotropes compressibles. L'endommagement a également été pris en compte à travers les paramètres h_i ($i = 1, 2, 3$) afin de prendre en compte l'important effet de Mullins qui apparaît pour les élastomères.

2.5.10 Conclusion

Le tableau 2.5 propose de faire un bilan des capacités prévisionnelles de chacun des modèles hyperélastiques étudiés.

Modèle	Équations	Commentaires
Néo-Hookéen [101]	2.75	Permet de décrire le comportement en petites déformations des élastomères ($\lambda < 1$). Cependant, ne permet pas de prendre en compte le phénomène d'extensibilité maximale des segments de chaînes polymères.
Mooney-Rivlin [102]	2.78	Permet de décrire le comportement en petites déformations des élastomères ($\lambda < 1$). Cependant, ne permet pas de tenir compte du phénomène de verrouillage.
Yeoh [103]	2.81	Permet de décrire le comportement des élastomères en grandes déformations. Tient compte du phénomène de verrouillage des chaînes polymères.
Gent [89]	2.84	Permet de décrire le comportement des polymères en grandes déformations. Résultats comparables à ceux obtenus pour le modèle 8-chaînes.
3-chaînes [91, 100]	2.87	Représentation avec 3 chaînes du réseau tri-dimensionnel d'une structure polymère. Permet de prévoir le comportement des polymères en traction uniaxiale. Cependant, il ne permet pas de modéliser correctement leur comportement en traction équibiaxiale et en cisaillement pure.
4-chaînes [104]	2.88	Représentation avec 4 chaînes du réseau tri-dimensionnel d'une structure polymère. Le potentiel énergétique et, par conséquent, l'expression du tenseur des contraintes dépendent de la direction de l'élongation. Modèle complexe.
8-chaînes [92]	2.92	Représentation avec 8 chaînes du réseau tri-dimensionnel d'une structure polymère. Permet de prévoir avec précision le comportement en traction uniaxiale, traction équibiaxiale et cisaillement pure.
Full-network [108, 109]	2.105	Résultats compris entre le modèle 3 chaînes et le modèle 8 chaînes. Améliore les capacités prévisionnelles des modèles 3 chaînes et 8 chaînes. Cependant, les améliorations ne sont pas significatives en comparaison du temps de calcul.
GD [110]	2.109	Modèle phénoménologique pour représenter le comportement uniaxial et multiaxial des élastomères. De plus, le modèle a été étendu aux matériaux isotropes compressibles et permet également de modéliser l'endommagement des matériaux.

Tableau 2.5 – Comparaison des domaines de validité des différents modèles décrivant le durcissement structural des matériaux polymères.

Il apparaît que le modèle 8 chaînes, le modèle « full-network » et le modèle GD permettent de modéliser avec précision le comportement en grandes déformations des polymères. Contrairement aux deux autres modèles, le modèle GD est basé sur des considérations phénoménologiques. Ces différents paramètres sont déterminés par calibrage du modèle sur les données expérimentales. Concernant les modèles 8-chaînes et « full-network », les différents paramètres peuvent être extraits des courbes de traction/compression uniaxiale. Bien que le modèle « full-network » soit légèrement plus performant que le modèle 8-chaînes, il est également beaucoup plus coûteux en temps de calcul.

2.6 Conclusion

Nous avons vu dans le premier chapitre que les matériaux polymères sont fortement influencés par la vitesse de déformation et la température. Afin de modéliser des applications de mise en forme des polymères dans le but d'optimiser la production et la géométrie (épaisseur) des éléments formés ou encore, de valider des structures polymères soumises à des efforts tels qu'un pare-choc soumis à un impact, il a été nécessaire de développer des modèles mathématiques permettant de capturer au mieux le comportement de ces matériaux.

Les différents modèles, présentés dans ce second chapitre, permettent d'approcher le comportement des polymères sur une gamme de vitesses de déformation et de températures, plus ou moins étendue suivant les modèles. Certains de ces modèles, tels que les modèles phénoménologiques, ne sont généralement valides que pour de faibles niveaux de déformation mais présentent l'avantage de ne nécessiter qu'un faible nombre de paramètres. D'autres modèles (phénoménologiques ou physiques) permettent de modéliser une partie de la courbe de comportement des polymères (module élastique, contrainte seuil, durcissement structural). L'adoucissement plastique, observé après la limite d'élasticité des polymères vitreux, est caractérisé par une diminution du niveau de contrainte. La modélisation de l'écoulement plastique est due à l'action combinée d'une loi d'écoulement et d'un modèle de durcissement structural. L'utilisation combinée de différents modèles permet de modéliser le comportement des polymères en grandes déformations sur des gammes de vitesses de déformation et de températures dépendantes des modèles choisis. En revanche, ces modèles présentent l'inconvénient de posséder un nombre de paramètres plus important que les modèles phénoménologiques. De plus, le temps de calcul est généralement significatif. Cependant, ces modèles fournissent une meilleure représentation du comportement mécanique des polymères en grandes déformations ce qui est fort appréciable lors de la modélisation de procédés de mise en forme des polymères thermoplastiques. Ainsi, le choix d'un modèle de comportement est fortement influencé par sa précision sur les gammes de vitesses de déformation et de températures visées, par le niveau de déformation envisagé et par le temps de calcul.

Chapitre 3

Extraction du comportement mécanique des polymères en présence d'auto-échauffement par l'utilisation d'un modèle phénoménologique simplifié

Les matériaux polymères sont bien connus pour être sensibles à la vitesse de déformation et à la température. Les effets de frottement et d'auto-échauffement jouent un rôle important sur la réponse mécanique de ces matériaux. Comme décrit au chapitre 2, de nombreux modèles physiques et phénoménologiques ont été développés ces dernières années dans le but de prendre en compte ces dépendances. Ce chapitre propose un modèle phénoménologique simplifié basé sur une technique de cartographie pour la dépendance à la vitesse de déformation et à la température. Dans ce travail, les effets de frottement et d'auto-échauffement sont également analysés. Des résultats intéressants sont obtenus en comparant les résultats prévus par les simulations numériques aux résultats expérimentaux issus de la littérature pour un polypropylène (PP) et un polychlorotrifluoroéthylène (PCTFE). Deux études paramétriques ont été réalisées. Dans une première étude, l'influence du frottement, entre les barres de compression et un échantillon soumis à un essai de compression dynamique, est examinée. La seconde étude a porté sur l'influence de la fraction d'énergie de déformation plastique convertie en chaleur sur le comportement mécanique des polymères. Ces études paramétriques permettent d'obtenir une bonne approximation de la contrainte à l'interface et du coefficient de Taylor-Quinney pour les deux polymères étudiés.

3.1 Introduction

Les matériaux polymères sont largement utilisés dans des parties structurales soumises à des sollicitations dynamiques. Ainsi, la connaissance de leurs propriétés mécaniques est d'une grande importance pour diverses applications industrielles. De nombreux travaux ont été menés dans le but de comprendre et d'analyser le comportement dynamique des polymères ainsi que l'évolution de l'auto-échauffement pour de grandes vitesses de déformation. Chou *et al.* [113] ont étudié les effets de la vitesse de déformation sur le comportement mécanique de plusieurs polymères. De plus, pour de grandes vitesses de déformation, Chou *et al.* [113] ont mesuré l'augmentation de température au cours de la déformation. Dans ces travaux, le comportement en compression du poly(méthylmethacrylate) (PMMA), de l'acétate-butyrat de cellulose, du polypropylène (PP) et du nylon 66 est étudié. Chou *et al.* [113] ont montré que la limite d'élasticité de ces matériaux présente une double dépendance au $\log \dot{\epsilon}$, où $\dot{\epsilon}$ est la vitesse (ou taux) de déformation appliquée. Des résultats similaires ont été observés par Briscoe et Hutchings [114] et Kukureka et Hutchings [115] pour un poly(éthylène) haute densité (HDPE). Cependant, dans l'étude menée par Brown *et al.* [116], la contrainte seuil apparaît linéairement dépendante au $\log \dot{\epsilon}$. Walley et Field [117] ont étudié la dépendance à la vitesse de déformation d'un grand nombre de polymères à température ambiante en prenant grand soin d'utiliser un lubrifiant adéquat et d'avoir des épaisseurs d'échantillon adaptées aux vitesses de déformation afin d'éviter des problèmes de frottement (entre les barres de compression et l'échantillon) et d'inertie

(contraintes internes radiales trop importantes). Ainsi, ils ont montré que l'évolution de la contrainte seuil en fonction du logarithme de la vitesse de déformation pouvait se classer en trois catégories :

- la contrainte seuil évolue linéairement avec le logarithme de la vitesse de déformation avec aucun changement de pente entre les chargements quasi-statiques et dynamiques,
- une relation bilinéaire existe entre la contrainte seuil et le $\log \dot{\epsilon}$ avec une augmentation rapide de la pente autour de 10^3 s^{-1} ,
- une diminution de la contrainte seuil pour une vitesse de déformation autour de 10^3 s^{-1} , possiblement suivie par une augmentation.

Lorsque les matériaux polymères sont testés à de grandes vitesses de déformation sur le dispositif des barres d'Hopkinson (SHPB), quelques problèmes peuvent survenir. Ainsi, Briscoe et Nosker [118] ont émis des doutes sur la validité de ces mesures en considérant avec attention les effets de friction sur la réponse mécanique du matériau lors des tests à grandes vitesses de déformation. À température ambiante, ils ont étudié l'influence de la lubrification sur la réponse mécanique du HDPE soumis à des sollicitations de compression dynamique. Ainsi, ils ont montré que le choix du lubrifiant pouvait augmenter la contrainte seuil d'environ 25 %. À basse température, Trautmann *et al.* [119] ont observé le même comportement. Dans ces deux cas, il a été trouvé que la vaseline, produisant une couche lubrifiée presque idéale, est le lubrifiant le plus approprié pour les tests de compression dynamique. Ainsi, le choix d'un lubrifiant peut significativement influencer la réponse mécanique des matériaux polymères.

Il a été vu précédemment que les matériaux polymères sont fortement dépendants à la température et à la vitesse de déformation. Bauwens-Crowet [59] a étudié le comportement seuil du PMMA en compression pour des vitesses de déformation comprises entre 10^{-5} s^{-1} et 1 s^{-1} et des températures comprises entre -20°C et 100°C . Ainsi, l'étude de la dépendance à la température et à la vitesse de déformation et l'application du principe de superposition temps-température à 100°C a permis à Bauwens-Crowet [59] de prévoir l'évolution de la contrainte seuil du matériau jusqu'à 10^7 s^{-1} . Dans leurs travaux, la courbe maîtresse du PMMA présente une relation bilinéaire avec une augmentation de la contrainte pour de grandes vitesses de déformation et de basses températures. Récemment, la relation bilinéaire entre la contrainte seuil et le logarithme de la vitesse de déformation a été observée par Richeton *et al.* [66] pour trois polymères amorphes (polycarbonate (PC), PMMA et poly(amide imide) (PAI)). À hautes températures ou basses vitesses de déformation, le comportement du matériau est seulement relié à la transition vitreuse (ou transition α), tandis que pour de grandes vitesses de déformation et de basses températures, les effets de la relaxation β sont ajoutés à ceux de la transition α comme proposé par Bauwens, Bauwens-Crowet et leurs collaborateurs [57, 59, 61, 63, 64]. D'autres auteurs, tels que Argon [50] et Robertson [47], ont proposé des théories basées sur les mouvements moléculaires et les interactions intermoléculaires. Richeton *et al.* [65, 66] ont proposé une théorie basée sur les mouvements de sauts coopératifs des segments de chaînes moléculaires. Dans leurs travaux, deux considérations sont utilisées pour décrire le comportement de la contrainte seuil au-dessus et en dessous de T_g . À l'état vitreux, une contrainte interne dépeint l'arrangement des défauts hérités de l'histoire thermique du matériau. Au-dessus de la température de transition vitreuse, en accord avec le fait que les mouvements moléculaires sont de plus grandes amplitudes qu'en dessous de la transition vitreuse, l'équation WLF est utilisée. Récemment, Siviour *et al.* [120, 121] ont déterminé une relation linéaire décrivant l'équivalence temps-température basée sur une technique de cartographie. En accord avec Siviour *et al.* [120, 121], Furmanski *et al.* [22, 122] ont réalisé au cours d'essais quasi-statique des sauts en vitesses de déformation afin d'isoler le comportement mécanique lié à l'auto-échauffement du matériau.

Supposer un comportement adiabatique ou isotherme est une hypothèse forte lorsque le matériau polymère est sollicité en dynamique, à de grandes vitesses de déformation. Plusieurs auteurs ont étudié l'évolution de la température au cours de la déformation plastique des polymères. Chou *et al.* [113] ont mesuré l'évolution de la température en utilisant des thermocouples. Ils ont ainsi montré que la température augmentait rapidement après la limite d'élasticité du matériau. Arruda *et al.* [40] ont mesuré l'augmentation de température au cours d'essais de compression uniaxiale d'un PMMA en utilisant

des détecteurs infrarouges. Ils ont montré que l'augmentation de la vitesse de déformation affecte de manière considérable le comportement plastique du matériau due à la combinaison de l'adoucissement plastique et de l'adoucissement thermique. Rittel [123] a utilisé des thermocouples pour mesurer l'augmentation de température durant la compression dynamique d'éprouvettes polycarbonate et époxy sur barres d'Hopkinson. Ainsi, il a trouvé que la fraction d'énergie de déformation plastique convertie en chaleur, aussi appelée coefficient de Taylor-Quinney ou facteur β , est sensible à la déformation et à la vitesse de déformation. Suivant la vitesse de déformation et le niveau de déformation, le facteur β est compris entre 40 % et 100 % pour le PC. Pour l'époxy, il a déterminé un facteur β inférieur à 20 % pour une vitesse de déformation de 2500 s^{-1} . En utilisant un détecteur infrarouge, Li et Lambros [124] ont trouvé que le facteur β , pour le PC, était compris entre 50 % et 100 % en fonction de la déformation. Cependant, aucune sensibilité à la vitesse de déformation n'a été identifiée. Pour le HPDE, Hilmanen *et al.* [125, 126] ont trouvé que presque la totalité de la déformation plastique était convertie en chaleur. Une bonne concordance entre thermocouples et détecteurs infrarouges a été trouvée par Regev et Rittel [127], pour les mesures de températures au cours des tests de compression dynamique.

De nombreux modèles ont été développés pour simuler le comportement en grandes déformations des polymères dans la région vitreuse et la région de transition vitreuse. Ces modèles [24, 39, 128, 129] sont basés sur une décomposition multiplicative du gradient de déformation en un gradient de déformation élastique et en un gradient de déformation plastique comme initialement proposé par Lee [130] et utilisent différentes approches moléculaires pour modéliser le comportement seuil des polymères (théorie de Ree-Eyring [53], théorie d'Argon [48], théorie coopérative [65]). Ces modèles, qui permettent de modéliser le comportement des matériaux polymères en grandes déformations, ont montré une bonne adéquation avec les résultats expérimentaux. Cependant, un grand nombre de paramètres (mesurables ou non) est généralement nécessaire pour déterminer la réponse mécanique des polymères. De plus, le temps de calcul peut être considérable.

Pour réduire le temps de calcul et le nombre de paramètres, une solution est d'utiliser un modèle phénoménologique simple [32, 34, 35]. Étant donné que la dépendance à la vitesse de déformation et à la température des polymères vitreux est généralement bien décrite pour de petites déformations, on propose de restreindre notre analyse aux petites déformations. En accord avec ces observations, on propose un modèle phénoménologique thermomécanique pour simuler le comportement des polymères dans la région vitreuse et la région de transition vitreuse pour une large gamme de vitesses de déformation. Dans le paragraphe 3.2, les équations décrivant le comportement du matériau sont présentées. Dans le paragraphe 3.3, le modèle est validé pour deux polymères semi-cristallins en utilisant des essais de compression quasi-statiques et dynamiques et une étude paramétrique portant sur l'influence du facteur β et de la contrainte équivalente à l'interface entre les barres de compression et l'échantillon est menée.

3.2 Loi de comportement

Un modèle thermomécanique est utilisé pour simuler le comportement des polymères dans la région vitreuse et la région de transition vitreuse. Le comportement mécanique et thermique sont mis à jour à chaque pas de temps en prenant en compte les effets thermiques (convection et conduction) et l'auto-échauffement du matériau. Un modèle éléments finis utilisant le code CAST3M [131] est proposé pour analyser la réponse thermomécanique des polymères soumis à un test de traction ou compression uniaxiale. Une procédure utilisateur, notée PASAMOI, basée sur la procédure PASAPAS de CAST3M [132], est utilisée pour résoudre des problèmes non-linéaires en temps et en espace. Un tel problème est classiquement résolu en utilisant une theta-méthode [132], avec $\theta \in [0, 1]$. Bien que robuste, cette méthode peut, cependant, ne pas converger due à de fortes non-linéarités de la vitesse de déformation. En partant de l'hypothèse que le pas de temps est petit, on peut supposer que l'incrément entre deux pas de temps de la vitesse de déformation est faible. Ainsi, en cas de non-convergence, on

définit la vitesse de déformation actualisée $\dot{\varepsilon}_{eq_i}^{act}$ au pas i par :

$$\dot{\varepsilon}_{eq_i}^{act} = \sqrt{\varepsilon_{eq_{i-1}}^{2-g} \varepsilon_{eq_i}^g} \quad (3.1)$$

où $\dot{\varepsilon}_{eq_{i-1}}$ est la vitesse de déformation au pas $i - 1$, ε_{eq_i} la vitesse de déformation courante au pas i et $g \in [0, 2]$. La vitesse de déformation actualisée est utilisée pour prévoir le comportement du matériau au pas i . Cependant, la vitesse de déformation courante au pas i est stockée pour déterminer la vitesse de déformation actualisée au pas $i + 1$.

La loi de comportement décrite ci-dessous a été introduite dans le sous-programme utilisateur *OTOCHF* de CAST3M.

3.2.1 Modèle thermique

Il est bien connu que les propriétés calorimétriques, volumétriques et thermodynamiques des polymères sont sensibles à la température. Cependant, dans ce travail, la masse volumique ρ , la chaleur spécifique C_p , la conductivité thermique Γ et le coefficient d'expansion thermique sont supposés indépendants de la température, et, par conséquent, sont constants. Nous supposons que l'augmentation de température est seulement due à la déformation plastique. Ainsi, la déformation élastique initiale est supposée isotherme.

Durant le test mécanique, deux phénomènes thermiques coexistent : la conduction de la chaleur et la convection. Au cours d'un essai de compression dynamique, les effets de conduction prennent place durant le contact entre les barres de compression et l'échantillon et au cours de l'auto-échauffement du polymère. La loi de Fourier décrivant la conduction de la chaleur exprime la densité de flux de chaleur q comme étant le produit entre la conductivité thermique Γ et le gradient de température $\partial T / \partial x_i$:

$$q_i = -\Gamma \frac{\partial T}{\partial x_i}. \quad (3.2)$$

Au cours de la déformation, la température augmente dans l'échantillon. L'augmentation de température due à la déformation plastique débute à la limite d'élasticité. La fraction d'énergie de travail plastique converti en chaleur a été étudiée pour différents polymères à différentes vitesses de déformation et différentes températures [39, 123]. L'augmentation de température dans l'échantillon, $\Delta\theta$, est définie par :

$$\Delta\theta = \frac{\beta}{\rho C_p} \int \sigma : d\varepsilon_p, \quad (3.3)$$

avec le facteur β représentant la fraction d'énergie de travail plastique converti en chaleur, aussi connue comme le coefficient de Taylor-Quinney. Dans ce travail, une étude paramétrique portant sur le paramètre β est réalisée.

La détermination du transfert de chaleur entre la surface de l'échantillon et l'environnement extérieur est basée sur la loi de refroidissement de Newton. Il est postulé que le flux de surface φ en convection est proportionnel à la différence de température entre la surface T_s et l'air T_a :

$$\varphi = h \sqrt{T_s - T_a}, \quad (3.4)$$

avec h le coefficient de transfert de chaleur.

3.2.2 Modélisation du comportement mécanique

Une loi phénoménologique, basée sur le critère de von Mises, est utilisée pour simuler le comportement plastique des matériaux polymères. La déformation plastique est supposée être isochore. Connaissant le comportement d'un matériau à une température de référence T_0 et à une vitesse de déformation de référence $\dot{\varepsilon}_0$, nous cherchons à prévoir son comportement mécanique à différentes vitesses de déformation et à différentes températures. La courbe de comportement de référence à $(T_0, \dot{\varepsilon}_0)$ est

entrée point par point dans le sous-programme utilisateur.

Les propriétés mécaniques des polymères (module d'Young, contrainte seuil, durcissement structural) sont dépendantes de la vitesse de déformation et de la température [39, 44, 65, 66]. Comme expliqué ci-dessus, on suppose que le principe d'équivalence temps-température est vérifié. Ainsi, la viscoplasticité du matériau est obtenue par un décalage en température. Par conséquent, on suppose que l'évolution du module élastique (équation 3.5) et du coefficient de Poisson (équation 3.6) est seulement dépendante de la température. Cette dépendance, dans la gamme de températures nous intéressant (région vitreuse et région de transition vitreuse), est modélisée par :

$$E(T) = \left(1 - B \frac{T}{A}\right) E(T_0), \quad (3.5)$$

$$\nu(T) = \left(1 - B \frac{T}{A}\right) \nu(T_0) + B \frac{T}{A} * 0.49992, \quad (3.6)$$

avec $E(T_0)$ et $\nu(T_0)$ respectivement le module élastique et le coefficient de Poisson de la courbe de référence, A une constante décrivant la sensibilité à la température et B un paramètre matériau. Le terme 0.49992 est choisi dans le but d'obtenir un module d'élasticité isostatique K proche de 2 GPa aux alentours de la région caoutchoutique.

La dépendance à la température du comportement mécanique (écoulement plastique) est donnée par :

$$\sigma(\varepsilon_{eq,pl}, T) = \left(1 - B \frac{T}{A}\right) \sigma(\varepsilon_{eq,pl}, T_0) \quad (3.7)$$

avec $\varepsilon_{eq,pl}$ la déformation plastique équivalente, $\sigma(\varepsilon_{eq,pl}, T)$ la contrainte d'écoulement du matériau à la température T et $\sigma(\varepsilon_{eq,pl}, T_0)$ la contrainte d'écoulement de la courbe de référence. Cette relation exprime le décalage de la contrainte d'écoulement en fonction de la température. Dans le prochain paragraphe, nous montrons que cette relation traduit également la dépendance à la vitesse de déformation de la contrainte d'écoulement.

Dans de précédents travaux expérimentaux dédiés aux matériaux polymères [22, 120, 121, 133], une technique de cartographie de la contrainte seuil a été proposée afin de lier sa dépendance à la température à sa dépendance à la vitesse de déformation. Elle est décrite par une loi empirique donnée par l'expression :

$$\Delta T = T - T_0 = D \log \left(\frac{\dot{\varepsilon}_{eq}}{\dot{\varepsilon}_0} \right) \quad (3.8)$$

où D est une constante matériau décrivant la relation entre température et vitesse de déformation. Ainsi, la dépendance à la vitesse de déformation du matériau apparaît comme un décalage de la température dans le modèle numérique. Nous pouvons noter que le modèle phénoménologique proposé permet de tenir compte du durcissement structural et de l'adoucissement thermique. Cependant, il ne tient pas compte de l'adoucissement plastique.

Ainsi, le modèle phénoménologique proposé fait appel à seulement trois paramètres (A , B , D) et une courbe contrainte-déformation de référence à $(T_0, \dot{\varepsilon}_0)$. La méthode de prévision élastique-correction plastique est utilisée pour calculer la réponse mécanique des matériaux polymères. Ainsi, une prévision élastique de la contrainte est faite. Si la contrainte équivalente excède la contrainte seuil, alors une correction plastique est appliquée. La température augmente dans le matériau lorsque celui-ci se déforme de manière plastique.

Due à la déformation plastique, la température augmente dans le matériau. Pour prendre en compte l'évolution de la température, un calcul thermique est réalisé avant la mise à jour de la réponse mécanique du matériau. Une représentation schématique de l'introduction du modèle phénoménologique est présentée sur la figure 3.1.

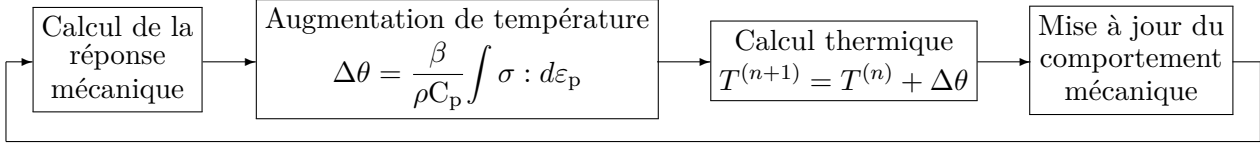


Figure 3.1 – Représentation schématique de l'intégration numérique du modèle phénoménologique au pas $(n + 1)$.

3.3 Résultats et Discussion

3.3.1 Matériaux étudiés

Le modèle est validé en comparant les résultats prévus par les simulations numériques aux résultats expérimentaux provenant de la littérature. Deux matériaux sont étudiés. Le premier est un polypropylène (PP) isotactique fortement orienté fourni par Lyondellbasell et étudié dans notre équipe de recherche par Wang *et al.* [5]. Le taux de cristallinité de ce matériau est de 49.2 %. Wang *et al.* [5] ont étudié le comportement mécanique en compression dynamique du PP pure à différentes vitesses de déformation et différentes températures en utilisant les barres d'Hopkinson. Des tests ont été effectués à quatre températures (23 °C, 50 °C, 85 °C, 100 °C) et quatre vitesses de déformation ($592 \pm 6.5\% \text{ s}^{-1}$, $1276 \pm 7.9\% \text{ s}^{-1}$, $2221 \pm 5.6\% \text{ s}^{-1}$, $3346 \pm 4.3\% \text{ s}^{-1}$). Par la suite, ces vitesses de déformation sont référencées SR1, SR2, SR3 et SR4.

Le second matériau est un polychlorotrifluoroéthylène (PCTFE) fabriqué par Daikin Industries au Japon et étudié par Brown *et al.* [134]. Le taux de cristallinité de ce matériau est de 75 %. Des tests de compression ont été menés en utilisant les machines servo-hydrauliques MTS 880 et MTS 810 pour des vitesses de déformation faibles et intermédiaires et les barres d'Hopkinson pour de grandes vitesses de déformation. Pour ce matériau, notre modèle sera uniquement validé pour de faibles vitesses de déformation et des vitesses de déformation intermédiaires dû à un manque de données au début des courbes de comportement dynamique en raison d'un non-équilibre dynamique [134]. Le comportement du matériau à différentes vitesses de déformation et températures a été étudié. Il est supposé que, pour les tests mécaniques dont la vitesse de déformation est supérieure à 10^{-3} s^{-1} , les conditions isothermes ne sont plus garanties [22]. La dépendance à la vitesse de déformation du matériau a été étudiée sur une gamme de vitesses de déformation allant de 10^{-4} s^{-1} à 100 s^{-1} . Pour la dépendance à la température, les tests ont été réalisés sous conditions isothermes à une vitesse de déformation de 10^{-3} s^{-1} . Or, comme nous sommes intéressés par l'auto-échauffement du PCTFE, nous utiliserons uniquement les données expérimentales pour lesquelles la vitesse de déformation est supérieure à 10^{-3} s^{-1} . Par conséquent, notre modèle sera validé à température ambiante pour une gamme de vitesses de déformation allant de 0.01 s^{-1} à 100 s^{-1} .

Les deux matériaux ont été testés sous compression uniaxiale en utilisant les barres de Hopkinson et/ou des machines servo-hydrauliques. Chaque type d'essai permet de caractériser le comportement mécanique du matériau étudié sur une large gamme de vitesses de déformation définie par la machine utilisée et la taille de l'échantillon. Les différents tests sont équivalents puisque tous les échantillons ont été sollicités en compression uniaxiale.

Dans le but de déterminer le paramètre D de l'équation 3.8, la technique de cartographie est appliquée. À partir des résultats expérimentaux de Wang *et al.* [5] et Brown *et al.* [134], la dépendance à la vitesse de déformation et à la température de la contrainte seuil, pour le PP et le PCTFE, sont présentées sur la figure 3.2. Pour le PCTFE, les résultats expérimentaux de Brown *et al.* [134] fournissent l'effet d'une large gamme de vitesses de déformation à une température fixe de 23 °C (voir figure 3.2(d)). Ils fournissent également l'effet d'une large gamme de températures à une vitesse de déformation fixe de 10^{-3} s^{-1} (voir figure 3.2(c)). Ces résultats offrent suffisamment d'informations pour appliquer la technique de cartographie au PCTFE. Pour le PP cependant, les résultats expérimentaux disponibles dans l'étude de Wang *et al.* [5] couvrent de faibles gammes de vitesses de déformation et

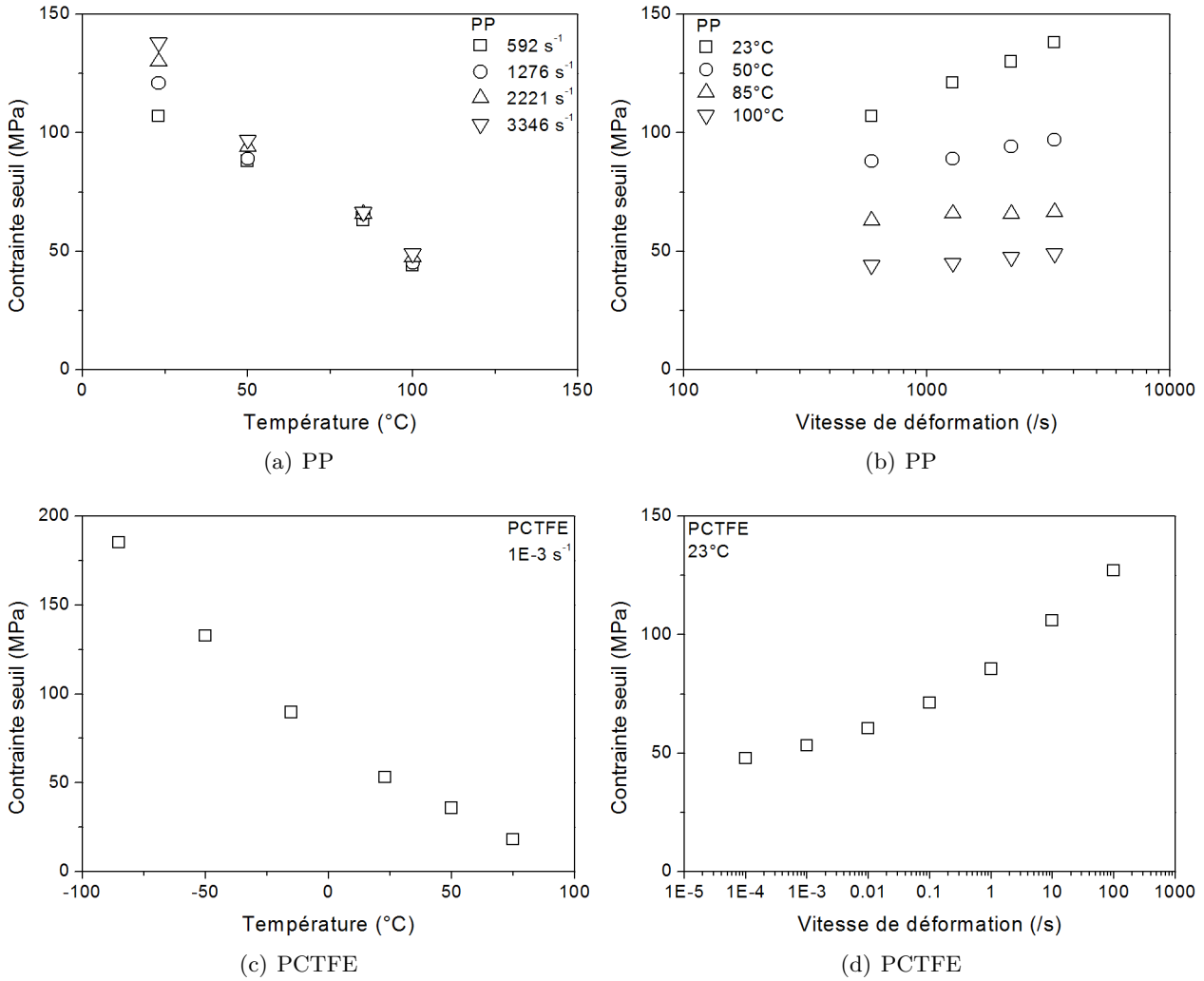


Figure 3.2 – Évolution de la contrainte seuil en fonction de la vitesse de déformation et de la température réalisée à partir des résultats expérimentaux de Wang *et al.* [5] et Brown *et al.* [134]. (a) - (b) PP [5] et (c) - (d) PCTFE [134].

de températures. Les effets de vitesse de déformation couvrent seulement le comportement dynamique du matériau (voir figure 3.2(b)) et les effets de température couvrent une gamme se situant autour de la transition vitreuse jusqu'à la région caoutchoutique (voir figure 3.2(a)). Ainsi, pour être en mesure d'utiliser la technique de cartographie pour le PP, nous avons utilisé les résultats décrivant les effets de la température à différentes vitesses de déformation (voir figure 3.2(a)) et les résultats décrivant les effets de la vitesse de déformation à différentes températures (voir figure 3.2(b)). La construction de la courbe maîtresse, décrivant la contrainte seuil en fonction de la température et provenant de la technique de cartographie, consiste à fournir la meilleure approximation entre les effets de la vitesse de déformation et les effets de la température. En fixant la vitesse de déformation et en utilisant les données expérimentales de la figure 3.2 et l'équation 3.8, nous avons été capables de construire la courbe maîtresse du PP et du PCTFE en convertissant des données dépendantes de la vitesse en une température d'essai équivalente. Pour le PP, la vitesse de déformation est fixée à 3346 s⁻¹ et la meilleure approximation est obtenue pour $D = 21$ K/décade (voir figure 3.3(a)). Pour le PCTFE, la vitesse de déformation est fixée à 10⁻³ s⁻¹ et $D = 13$ K/décade (voir figure 3.3(b)). Sur la figure 3.3(a), pour le PP, on peut voir une séparation de la dépendance linéaire des ensembles de données au-dessus de 70 °C. En effet, entre 80 °C et 100 °C et entre 100 °C et 120 °C, l'évolution de la contrainte seuil n'est pas significative due à l'état caoutchoutique du matériau. Ainsi, seuls les résultats obtenus à 23 °C et 50 °C sont présentés. À ces températures, le matériau est sollicité dans

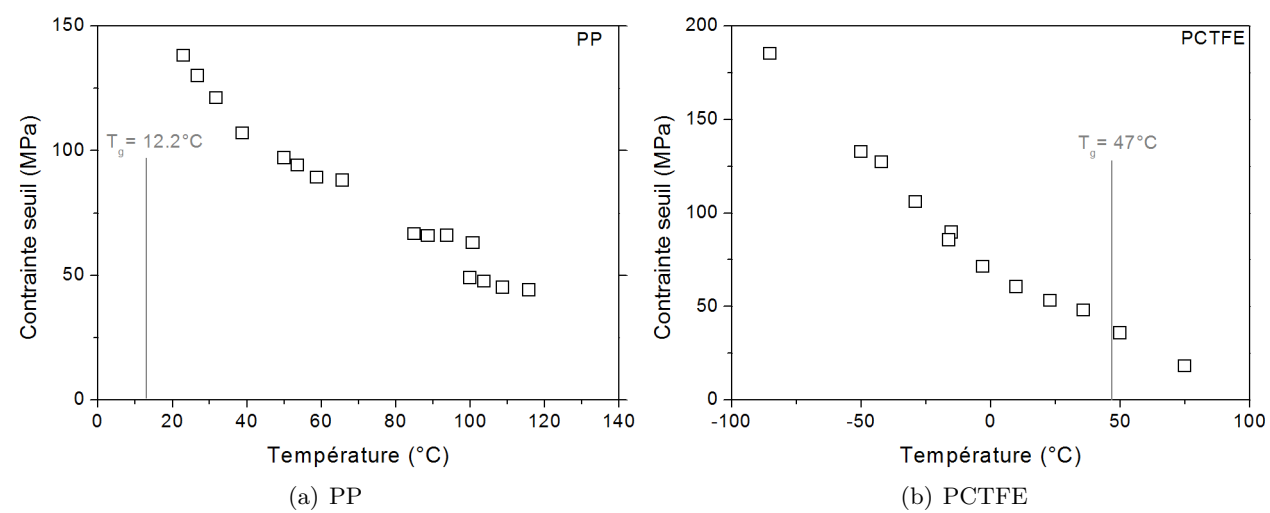


Figure 3.3 – Application de la technique de cartographie. Les données dépendant de la vitesse de déformation sont mises en correspondance avec les données dépendant de la température (a) pour le PP en utilisant $D = 21$ K/décade pour les données provenant de Wang *et al.* [5] et (b) pour le PCTFE en utilisant $D = 13$ K/décade pour les données provenant de Brown *et al.* [134].

sa région de transition vitreuse. Les propriétés matériau et les paramètres du modèle utilisés pour les simulations sont listés dans le tableau 3.1. Le module élastique E_0 et le coefficient de Poisson ν_0 sont identifiés sur la courbe de référence. Les paramètres A et B sont déterminés en approchant les données expérimentales.

		PP pure [5]	PCTFE [134]	Acier (www.matweb.com)
Propriétés matériau	ρ (kg m ⁻³)	900	2158	7800
	c_p (J kg ⁻¹ K ⁻¹)	1700	900	500
	Γ (W m ⁻¹ K ⁻¹)	0.220	0.380	54
	α (10 ⁻⁵ K ⁻¹)	9.05	7.00	1.00
	E_0 (GPa)	2	2.3	2100
	ν_0	0.40	0.39	0.33
Paramètres du modèle	A (°C)	95	90	
	B	1	1	
	D (°C/décade)	21	13	

Tableau 3.1 – Propriétés matériau et paramètres du modèle.

3.3.2 Modèle Éléments Finis

Les tests de compression numériques ont été réalisés sur un PP et un PCTFE en reproduisant comme procédure expérimentale le système des barres d’Hopkinson, utilisée par Wang *et al.* [5]. Le problème présente non-seulement un axe de révolution suivant $\vec{y}$ mais également un axe de symétrie suivant $\vec{x}$. Ainsi, seul un quart de la géométrie est représenté. Une vitesse de déplacement constante est imposée en un bord du solide. En se plaçant dans le cadre de l’hypothèse des petites perturbations, la vitesse de déformation est constante si la vitesse est constante. À l’interface entre les barres en acier et le matériau étudié, un champ de contrainte de cisaillement est appliqué afin de modéliser les effets de frottement entre les deux matériaux, comme le montre la figure 3.4(a). Le modèle éléments finis est maillé avec 736 éléments quadrilatères linéaires (384 pour les barres en acier, 320 pour le polymère

testé et 32 pour l'interface). L'auto-échauffement est seulement dû à la déformation plastique. Dans le but de quantifier les effets de frottement et d'échauffement adiabatique sur la réponse mécanique du matériau, deux études paramétriques ont été réalisées. Pour toutes les simulations numériques réalisées, les courbes de référence correspondent aux courbes expérimentales obtenues à 23 °C et à 3346 s⁻¹ (SR4) pour le PP, et à 23 °C et à 100 s⁻¹ pour le PCTFE.

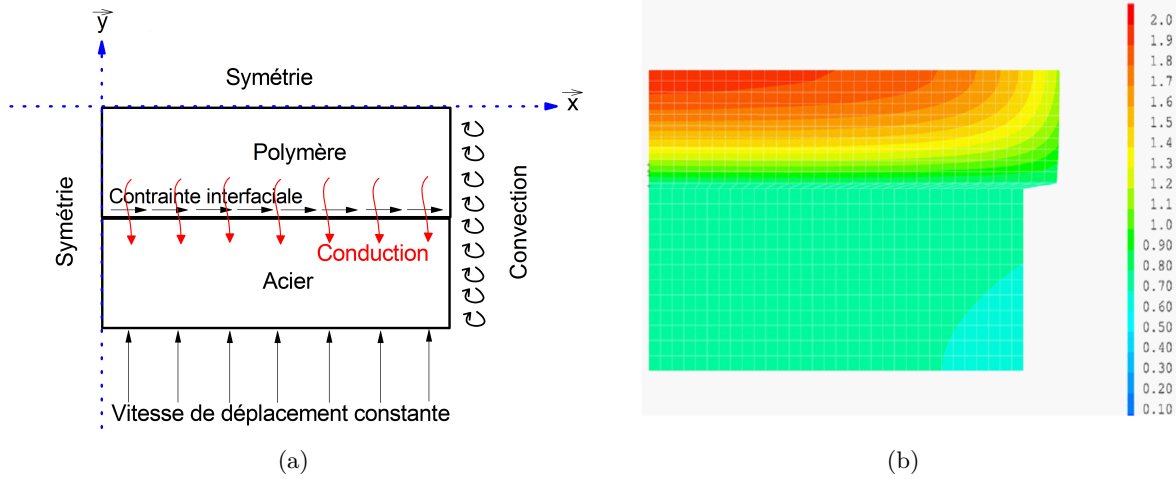


Figure 3.4 – (a) Conditions aux limites du problème de compression sur barres d'Hopkinson. Un quart de la géométrie est modélisé. (b) Carte de l'augmentation de température obtenue à 20 % de déformation pour un PCTFE sollicité en compression uniaxiale à 0.01 s⁻¹. La contrainte vraie équivalente à l'interface est supposée de 2.2 MPa. Le comportement de référence est supposé élastique-parfaitement plastique. La dissipation plastique est supposée maximale ($\beta = 1$).

La carte de température obtenue à 20 % de déformation pour le PCTFE sollicité à 0.01 s⁻¹ est présentée sur la figure 3.4(b). La comportement de référence est élastique-plastique parfait et la dissipation mécanique est supposée maximale. À $\varepsilon = 0.2$, une augmentation de température de 2 °C est observée au centre de l'échantillon. L'augmentation de température, calculée dans la barre en acier, due aux effets de convection et de conduction, est d'environ 1 °C. Ainsi, la température globale du polymère augmente de plus de 1 °C. Par conséquent, durant un essai quasi-statique dont la vitesse de déformation est supérieure à 10⁻³ s⁻¹, les conditions isothermes ne peuvent pas être considérées. En effet, l'augmentation de température due à l'auto-échauffement est plus importante que la diminution de température due aux échanges thermiques (conduction et convection).

3.3.3 Validation du modèle

Dans cette partie, dans le but de valider le modèle, nous introduisons plusieurs hypothèses simplificatrices basées sur l'utilisation d'une réponse mécanique de référence. Pour cela, nous négligeons les effets de frottement entre l'échantillon et les barres en acier. Puisque nous utilisons une courbe de comportement de référence comme donnée d'entrée, nous supposons que l'échauffement adiabatique est implicitement inclus dans la réponse mécanique. Ainsi, pour ces simulations, le facteur β est supposé nul. Le polymère et les barres en acier sont supposés à la même température au début de la simulation.

Les résultats numériques, représentés par des lignes, et les résultats expérimentaux, représentés par des symboles, sont comparés sur la figure 3.5. Pour le PP, deux températures et quatre vitesses de déformation sont simulées. Pour le PCTFE, les simulations ont été réalisées pour cinq vitesses de déformation à température ambiante. Pour les tests réalisés à température ambiante, la prévision numérique du comportement mécanique du PP est en accord avec les résultats expérimentaux excepté pour la plus basse vitesse de déformation (SR1) qui surestime légèrement le niveau de contrainte. À 50 °C, la prévision numérique du comportement mécanique du PP dévie fortement des résultats

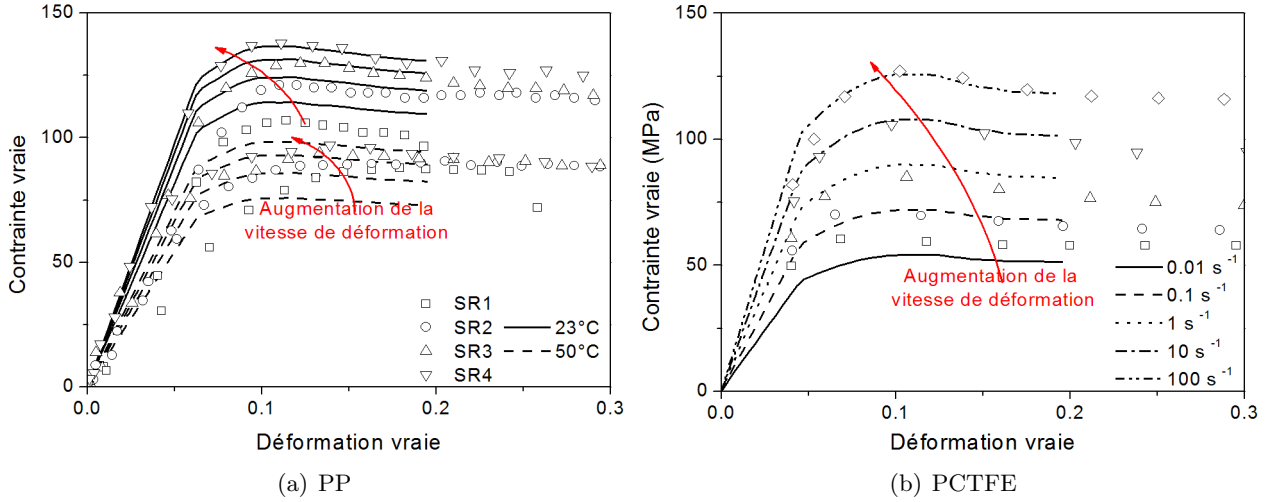


Figure 3.5 – Comparaison entre les données expérimentales (symboles) [5, 134] et les résultats numériques (lignes) en considérant un coefficient de Taylor-Quinney β nul. La contrainte vraie équivalente à l'interface est supposée de 0.55 MPa pour les deux matériaux.

expérimentaux pour la valeur la plus basse des vitesses de déformation étudiées (SR1). Pour les fortes vitesses de déformation, cependant, on trouve une adéquation plutôt satisfaisante entre les prévisions numériques et les résultats expérimentaux. Dans le cas du PCTFE, les prévisions numériques du comportement mécanique à température ambiante sont en accord avec les résultats expérimentaux malgré une légère sous-estimation du niveau de contrainte à 0.01 s^{-1} . Pour les deux matériaux, la sensibilité à la vitesse de déformation et à la température du module d'élasticité et de la contrainte seuil sont bien reproduits. Ainsi, on peut dire que l'hypothèse d'un auto-échauffement implicitement pris en compte à travers le comportement mécanique de la courbe de référence ne permet pas de représenter avec une grande rigueur le comportement mécanique à toutes les vitesses de déformation testées (voir figure 3.2). Par conséquent, en accord avec Rittel [123], il semblerait que le facteur β évolue en fonction de la vitesse de déformation. Ce phénomène peut expliquer, au moins partiellement, les différences observées entre les résultats expérimentaux et les prévisions numériques.

3.3.4 Influence du frottement

Il est communément admis qu'il existe un frottement non-négligeable entre les barres de compression et l'échantillon lors d'un essai sur les barres d'Hopkinson. Ainsi, un lubrifiant est généralement appliqué entre les barres de compression et l'échantillon. Cependant, ce dernier ne permet pas de réduire complètement les effets de frottement. Des études menées par Briscoe et Nosker [118], Trautmann *et al.* [119], Dai *et al.* [135] ont montré que le choix du lubrifiant affecte de manière sensiblement la réponse mécanique du matériau. Les effets de frottement ont été modélisés par l'application d'une contrainte de cisaillement à l'interface entre les barres de compression et l'échantillon comme illustré sur la figure 3.4(a). Pour la courbe de référence du PP et du PCTFE, l'influence de la valeur de la contrainte à l'interface sur le comportement thermomécanique a été étudiée. De plus, dans le but d'analyser l'influence des effets de frottement sur l'auto-échauffement du matériau, la fraction d'énergie plastique convertie en chaleur est maintenant supposée différente de zéro. Ainsi, nous choisissons un facteur β égal à 1. Dû à des résultats similaires pour les deux matériaux, seul le comportement thermomécanique du PP est présenté.

Pour chaque niveau de contrainte interfaciale, on mesure une contrainte vraie équivalente à l'interface du matériau. Sur la figure 3.6(a), la contrainte vraie équivalente à l'interface entre le matériau et les barres de compression est tracée, au temps final de la simulation, pour différents niveaux de contrainte interfaciale. La contrainte vraie équivalente calculée à l'interface est constante à la fin du test comme on peut le voir sur la figure 3.6(a). Elle est également constante au cours du test à chaque

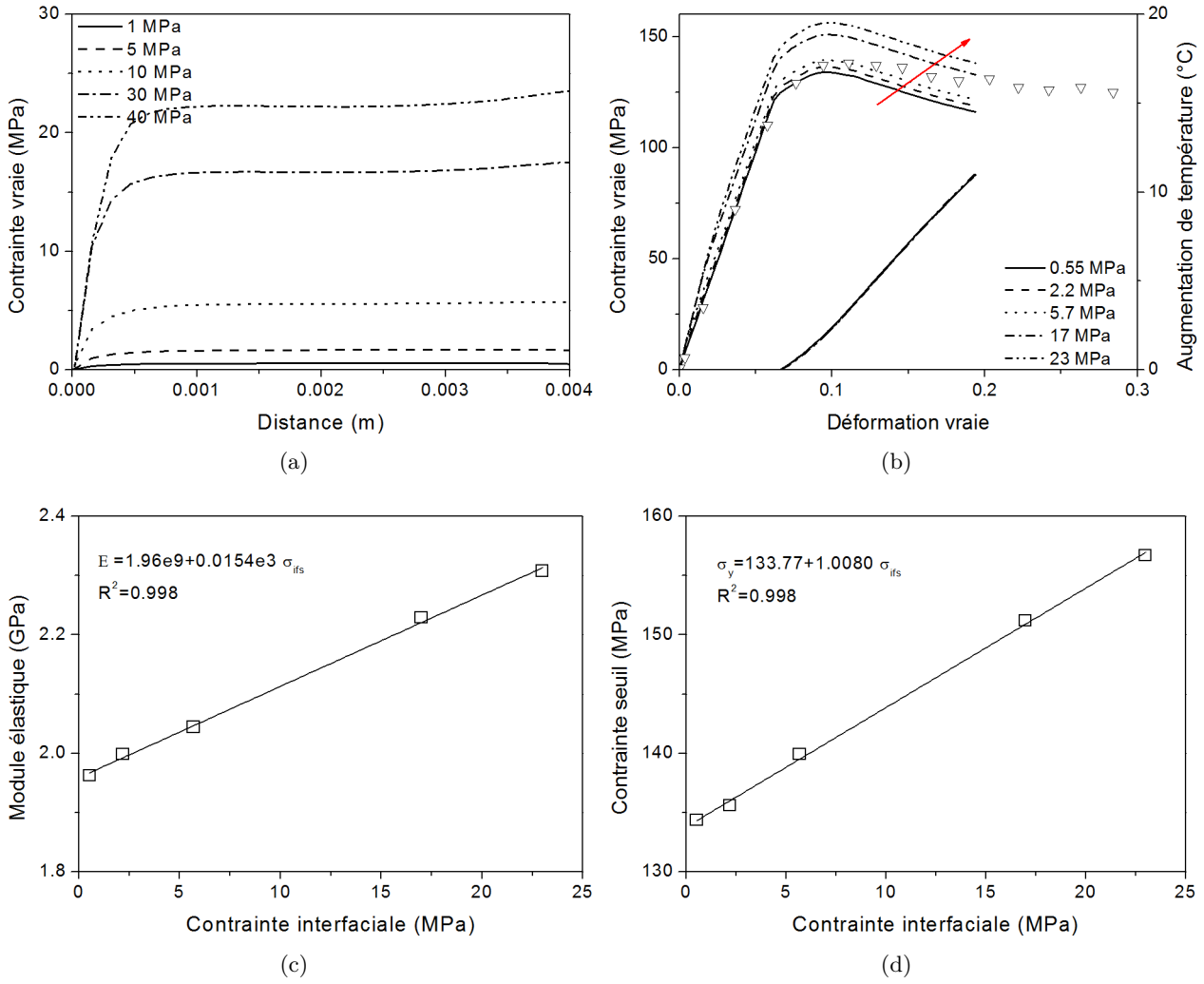


Figure 3.6 – (a) Contrainte le long de l'interface entre les barres de compression et le polymère à la fin du test pour différents niveaux de contrainte interfaciale. (b) Influence de la contrainte interfaciale sur le comportement thermomécanique comparée aux résultats expérimentaux du PP [5] (symboles). Évolution du (c) module élastique et de la (d) contrainte seuil en fonction de la contrainte interfaciale (σ_{ifs}).

pas de temps avec un niveau de contrainte différent. Pour chaque valeur de la contrainte vraie équivalente identifiée sur la figure 3.6(a) par la valeur du plateau, les réponses mécaniques et thermiques du polymère sont tracées sur la figure 3.6(b). L'augmentation du frottement à l'interface (augmentation de la contrainte interfaciale) a une importante influence sur le module élastique et la contrainte seuil comme le montre la figure 3.6(b). Cependant, l'augmentation de température n'est pas affectée par la variation de la contrainte interfaciale. Ainsi, on peut supposer que les effets de frottement n'affecte pas le travail plastique du matériau. L'influence du frottement sur les propriétés mécaniques (module d'élasticité et contrainte seuil) est décrite sur les figures 3.6(c)-(d). Elles montrent l'existence d'une relation linéaire entre ces propriétés et la contrainte vraie équivalente à l'interface. Une augmentation de 17 % est calculée pour la contrainte seuil et le module d'élasticité lorsque la contrainte mesurée à l'interface passe de 0.55 MPa à 23 MPa. En accord avec ces résultats, on peut en déduire une contrainte vraie équivalente optimale à l'interface dans le but d'obtenir la meilleure approximation du module élastique et de la contrainte seuil. La contrainte vraie équivalente à l'interface est estimée à 2.2 MPa sur les courbes contrainte vraie-déformation vraie de la figure 3.6(b) du PP. La même valeur est déterminée pour le PCTFE. Cette valeur correspond à un niveau de contrainte interfaciale de 5 MPa.

3.3.5 Influence de l'auto-échauffement

Il est bien connu que pour de grandes vitesses de déformation et des vitesses de déformation intermédiaires, une augmentation significative de la température est observée dans l'échantillon de polymère durant le test mécanique. Cette augmentation de température est due à la conversion du travail plastique en chaleur. Furmansky *et al.* [22] ont mis en évidence que le travail plastique est fortement influencé par l'auto-échauffement du matériau. En utilisant la courbe de référence du PP, le comportement mécanique et l'augmentation de température sont tracés sur la figure 3.7 pour différentes valeurs du coefficient de Taylor-Quinney, ou facteur β , variant de 0 à 1. Une importante augmentation de température conduit à une diminution de la contrainte d'écoulement, en particulier pour de fortes valeurs du facteur β (voir figure 3.7). Pour $\beta = 0.4$, la température augmente de 4 °C à 20 % de déformation (voir figure 3.7). Pour la même déformation, avec $\beta = 1$, la température augmente d'environ 11 °C (voir figure 3.7). L'augmentation de température affecte de manière significative le comportement mécanique des matériaux polymères puisque ces derniers sont fortement dépendants de la température. Ainsi, l'évolution de la température due à la déformation plastique joue un rôle important dans la réponse mécanique.

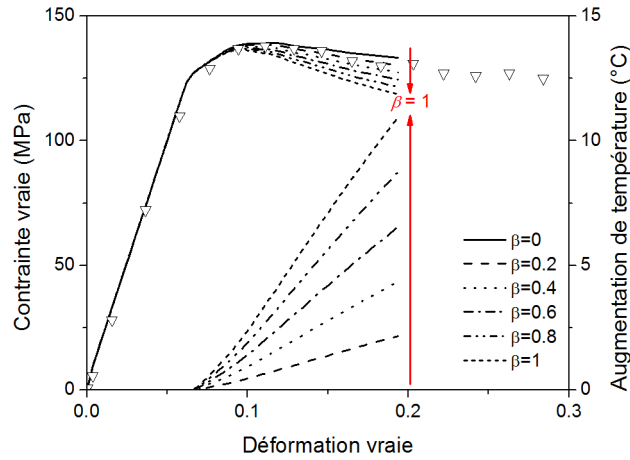


Figure 3.7 – Influence de l'auto-échauffement sur la réponse thermomécanique du PP. La contrainte vraie équivalente à l'interface a été précédemment déterminée à 2.2 MPa. Les symboles représentent la courbe de comportement expérimentale de référence. Les résultats données par les simulations numériques sont représentés par des lignes.

Pour le PP testé à $3346 \pm 4.3\% \text{ s}^{-1}$ et 23 s^{-1} et le PCTFE testé à 100 s^{-1} et 23 s^{-1} , on souhaite estimer la valeur du facteur β , et, par conséquent, évaluer l'augmentation de température durant la déformation plastique du matériau. Pour cela, on suppose que le comportement de référence du matériau est élastique-parfaitement plastique ($\beta = 0$). La réponse mécanique prévue par la simulation numérique est présentée sur la figure 3.8 pour différentes valeurs du facteur β . Cette figure présente également la comparaison avec les résultats expérimentaux du PP testé à $3346 \pm 4.3\% \text{ s}^{-1}$ et 23 s^{-1} et du PCTFE testé à 100 s^{-1} et 23 s^{-1} . La meilleure approximation pour le PP est obtenue pour $\beta = 0.7$ (voir figure 3.8(a)). Cela correspond à une augmentation de température de 7.5 °C à 20 % de déformation (voir figure 3.8(a)). Pour le PCTFE, la meilleure approximation est obtenue pour $\beta = 1$ (voir figure 3.8(b)). À 20 % de déformation, une augmentation de température de 8.5 °C est notée (voir figure 3.8(b)). Ainsi, d'après les prévisions numériques de notre modèle, l'adoucissement thermique semble partiellement dû à un auto-échauffement du matériau.

3.4 Conclusion

Un modèle phénoménologique simplifié, avec un faible nombre de paramètres (deux paramètres calibrés sur les courbes expérimentales et les propriétés matériaux), a été introduit dans le but de décrire le comportement thermomécanique des matériaux polymères. Ce modèle, basé sur une technique de cartographie pour déterminer la contrainte seuil, donne une bonne adéquation avec les résultats

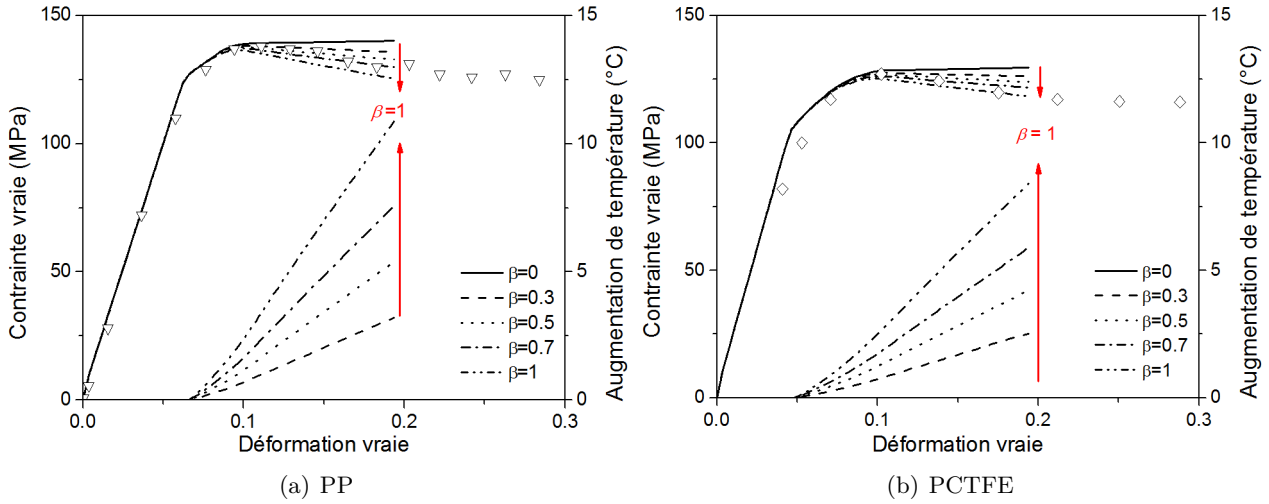


Figure 3.8 – Estimation du facteur β pour le PP testé à $3346 \pm 4.3\% \text{ s}^{-1}$ et 23 s^{-1} [5] et le PCTFE testé à 100 s^{-1} et 23 s^{-1} [134] (représentés par des symboles). Le comportement de référence des matériaux est supposé être élastique-parfaitement plastique (courbe numérique $\beta = 0$). La valeur de la contrainte vraie équivalente à l'interface a été précédemment déterminée à 2.2 MPa. Les résultats des simulations numériques sont représentés par des lignes.

expérimentaux pour les polymères définis dans la région vitreuse et dans la région de transition vitreuse. Les quelques différences observées peuvent être attribuées à une évolution du facteur β entre les différentes vitesses de déformation. Le chargement considéré dans cette étude est la compression uniaxiale. Pour généraliser cette analyse à tous types de chargement, il est nécessaire de prendre en compte l'endommagement du matériau ainsi que les effets de cavitation et les mécanismes de croissance du vide dans les matériaux polymères [136].

Les effets de frottement et d'auto-échauffement jouent un rôle important dans le comportement thermomécanique des polymères. Une augmentation de la contrainte interfaciale (augmentation de la contrainte vraie équivalente à l'interface) augmente la rigidité du matériau (module d'Young et contrainte seuil). Cependant, le travail plastique apparaît indépendant des effets de frottement à l'interface. Ce modèle nous permet d'estimer les effets de frottement à l'interface échantillon/barre de compression en déterminant une valeur approximative de la contrainte vraie équivalente à l'interface. L'auto-échauffement, dû à la déformation plastique, affecte considérablement l'écoulement plastique du matériau. En considérant que le matériau est élastique-parfaitement plastique sous condition isotherme ($\beta = 0$), on a montré qu'une augmentation du facteur β induisait un adoucissement thermique dans la réponse thermomécanique du matériau. Ainsi, en comparant les pentes numériques de l'adoucissement thermique avec les courbes contrainte vraie-déformation vraie expérimentales, une bonne approximation du facteur β peut être déterminée.

Le modèle phénoménologique proposé, peu coûteux en temps de calcul, décrit convenablement le comportement thermomécanique des matériaux polymères sur de larges gammes de températures et de vitesses de déformation. Il permet également une évaluation de la contrainte vraie équivalente à l'interface entre l'échantillon et les barres lors d'essais de compression dynamique, ainsi qu'une estimation du facteur β lors d'échauffement adiabatique. Cependant, il ne permet pas d'étudier le comportement des polymères en grandes déformations. Ainsi, une autre loi de comportement, basée sur plusieurs modèles physiques, est introduite dans la suite, permettant ainsi de modéliser le comportement des matériaux polymères durant leur mise en forme.

Chapitre 4

Modélisation du comportement élasto-viscoplastique des polymères amorphes : Formulation et intégration numérique

De nos jours, la modélisation de problèmes mécaniques est très utilisée d'un point de vue industriel car celle-ci permet de réduire les coûts de fabrication et de production tout en optimisant la structure des systèmes. Un modèle Éléments Finis qui consiste en une discrétisation spatiale et temporelle du problème mécanique est réalisé.

Il existe sur le marché de nombreux logiciels de simulation par Éléments Finis (NASTRAN, ABAQUS, LS-DYNA, RADIOSS ...). Les lois de comportement matériau pré-intégrées dans ces logiciels ne permettent pas de modéliser correctement le comportement complexe des matériaux polymères sur de larges gammes de vitesses de déformation et de températures. Cependant, ils offrent tous la possibilité à l'utilisateur d'intégrer ses propres lois de comportement, de chargement ..., à travers des sous-programmes utilisateurs.

Au cours de ses dernières années, de nombreux modèles permettant de capturer le comportement des matériaux polymères sur de larges gammes de températures et de vitesses de déformation ont été développés [24, 92, 129, 137, 138]. Ces modèles tiennent compte de la sensibilité à la vitesse de déformation et à la température des propriétés matériau, du module d'élasticité, de la contrainte d'écoulement, de l'adoucissement plastique et du durcissement structural.

Dans cette étude, nous proposons d'introduire dans un logiciel de calcul par Éléments Finis, une loi constitutive permettant de décrire le comportement thermomécanique des polymères amorphes. Pour cela, nous avons choisi le modèle développé par Richeton *et al.* [24] au sein de notre équipe de recherche. Quelques modifications ont également été apportées au modèle.

Dans une première partie, nous rappellerons le formalisme employé pour décrire le problème mécanique en transformations finies en grandes déformations et grands déplacements ainsi que les différentes lois de comportement utilisées. La seconde partie sera consacrée à la discrétisation et à l'introduction de la loi de comportement dans le logiciel de simulation par Éléments Finis ABAQUS/Explicit. Pour finir, nous validerons l'intégration numérique de la loi de comportement sur un et plusieurs éléments en simulant des essais de traction et de compression uniaxiaux isothermes ou adiabatiques.

4.1 Formulation du problème mécanique

4.1.1 Cinématique

La cinématique du solide déformable permet de suivre une particule au cours du temps depuis sa configuration initiale $\mathcal{D}_0$ jusqu'à sa configuration actuelle $\mathcal{D}_t$. Soit $d\vec{X}$ et $d\vec{x}$, deux vecteurs reliant deux particules infiniment voisines, respectivement dans la configuration initiale et actuelle. L'état déformé de la configuration actuelle est défini par la relation qui fait intervenir le gradient de déformation $\mathbb{F}$:

$$d\vec{x} = \mathbb{F}d\vec{X}. \quad (4.1)$$

En suivant l'évolution d'un milieu continu au cours du temps, Lee et Liu [139] mettent en évidence l'existence de configurations intermédiaires relâchées de la contrainte. Ainsi, ils proposent une décomposition multiplicative du gradient de déformation $\mathbb{F}$:

$$\mathbb{F} = \mathbb{F}^e \cdot \mathbb{F}^{th} \cdot \mathbb{F}^p, \quad (4.2)$$

où $\mathbb{F}^p$ décrit la transformation plastique entre la configuration initiale $\mathcal{D}_0$ et la première configuration intermédiaire $\mathcal{D}_{t_1}$, $\mathbb{F}^{th}$ décrit la transformation thermique entre la première configuration intermédiaire $\mathcal{D}_{t_1}$ et la seconde configuration intermédiaire $\mathcal{D}_{t_2}$, et $\mathbb{F}^e$ décrit la transformation élastique entre la seconde configuration intermédiaire $\mathcal{D}_{t_2}$ et la configuration actuelle $\mathcal{D}_t$. Une schématisation de la décomposition multiplicative du gradient de déformation est proposée sur la figure 4.1.

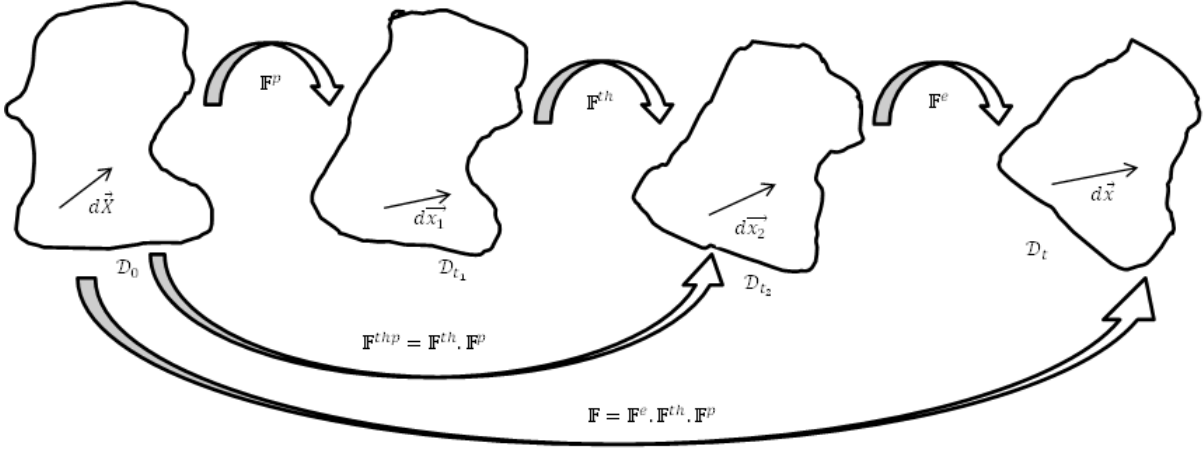


Figure 4.1 – Décomposition multiplicative du gradient de déformation $\mathbb{F}$ et mise en évidence des différents états intermédiaires.

Étant donné que le passage de la configuration initiale $\mathcal{D}_0$ à la configuration actuelle, déformée $\mathcal{D}_t$ d'un milieu continu fait intervenir des déformations mais également des mouvements de corps rigide, il existe une multitude d'états intermédiaires où la contrainte est relâchée. Cependant, Boyce [140] montre que la solution du problème mécanique est indépendante de la configuration intermédiaire choisie.

En utilisant la décomposition polaire d'un tenseur d'ordre 2, le gradient de déformation $\mathbb{F}$ peut se mettre sous la forme :

$$\mathbb{F} = \mathbb{R} \cdot \mathbb{U} = \mathbb{V} \cdot \mathbb{R} \quad (4.3)$$

avec $\mathbb{R}$ le tenseur des rotations pures et, $\mathbb{U}$ et $\mathbb{V}$, respectivement, le tenseur des déformations pures droit et gauche. La décomposition polaire, appliquée ici au gradient de déformation $\mathbb{F}$, est également valable pour les gradients de déformation élastique $\mathbb{F}^e$, plastique $\mathbb{F}^p$ et thermoplastique $\mathbb{F}^{th}$. On obtient :

$$\begin{cases} \mathbb{F}^e &= \mathbb{R}^e \cdot \mathbb{U}^e &= \mathbb{V}^e \cdot \mathbb{R}^e \\ \mathbb{F}^{th} &= \mathbb{R}^{th} \cdot \mathbb{U}^{th} &= \mathbb{V}^{th} \cdot \mathbb{R}^{th} \\ \mathbb{F}^p &= \mathbb{R}^p \cdot \mathbb{U}^p &= \mathbb{V}^p \cdot \mathbb{R}^p \end{cases} \quad (4.4)$$

La vitesse de la particule, dont la position est définie par le vecteur $d\vec{x}$, est déterminée en dérivant l'équation 4.1 par rapport au temps :

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(d\vec{x}) &= \frac{\partial}{\partial t}(\mathbb{F}d\vec{X}) \\ &= \dot{\mathbb{F}}d\vec{X} + \underbrace{\mathbb{F} \frac{\partial}{\partial t}(d\vec{X})}_0 \end{aligned} \quad (4.5)$$

En remplaçant $d\vec{X}$ par son expression donnée par l'équation 4.1, on peut introduire le gradient de vitesse $\mathbb{L}$ définit par :

$$\mathbb{L} = \dot{\mathbb{F}} \cdot \mathbb{F}^{-1}. \quad (4.6)$$

En remplaçant dans l'équation 4.6 le gradient de déformation par son expression donnée par l'équation 4.2, on peut écrire :

$$\mathbb{L} = \mathbb{L}^e + \mathbb{F}^e \cdot \left(\mathbb{L}^{th} + \mathbb{F}^{th} \cdot \mathbb{L}^p \cdot \mathbb{F}^{th-1} \right) \cdot \mathbb{F}^{e-1} \quad (4.7)$$

avec

$$\begin{cases} \mathbb{L}^e &= \dot{\mathbb{F}}^e \cdot \mathbb{F}^{e-1} \\ \mathbb{L}^{th} &= \dot{\mathbb{F}}^{th} \cdot \mathbb{F}^{th-1} \\ \mathbb{L}^p &= \dot{\mathbb{F}}^p \cdot \mathbb{F}^{p-1} \end{cases} \quad (4.8)$$

Le gradient de vitesse $\mathbb{L}$ peut se décomposer en une partie symétrique $\mathbb{D}$, appelée tenseur des taux de déformation, et antisymétrique $\mathbb{W}$, appelée tenseur des taux de rotation, où :

$$\mathbb{L} = \underbrace{\frac{1}{2}(\mathbb{L} + \mathbb{L}^T)}_{\mathbb{D}} + \underbrace{\frac{1}{2}(\mathbb{L} - \mathbb{L}^T)}_{\mathbb{W}}. \quad (4.9)$$

La décomposition du gradient de vitesse en une partie symétrique et antisymétrique peut également être réalisée sur les gradients de vitesse élastique, plastique et thermique. Ainsi, on obtient :

$$\begin{cases} \mathbb{L}^e &= \mathbb{D}^e + \mathbb{W}^e \\ \mathbb{L}^{th} &= \mathbb{D}^{th} + \mathbb{W}^{th} \\ \mathbb{L}^p &= \mathbb{D}^p + \mathbb{W}^p \end{cases} \quad (4.10)$$

Deux hypothèses sont faites concernant l'écoulement irréversible du polymère. Premièrement, on suppose que l'écoulement est incompressible, ainsi :

$$\begin{cases} \det \mathbb{F}^p &= 1 \\ \det \mathbb{F}^{th} &= 1 \end{cases} \quad (4.11)$$

Deuxièmement, on suppose que l'écoulement est irrotationnel, ainsi :

$$\begin{cases} \mathbb{W}^p &= 0 \\ \mathbb{W}^{th} &= 0 \end{cases} \quad (4.12)$$

Ainsi, on trouve que $\mathbb{L}^p = \mathbb{D}^p$ et $\mathbb{L}^{th} = \mathbb{D}^{th}$ et, par conséquent :

$$\begin{cases} \dot{\mathbb{F}}^p &= \mathbb{D}^p \cdot \mathbb{F}^p \\ \dot{\mathbb{F}}^{th} &= \mathbb{D}^{th} \cdot \mathbb{F}^{th} \end{cases} \quad (4.13)$$

Dans la suite, on notera $\mathbb{F}^{thp}$ le gradient de déformation thermoplastique définit dans la seconde configuration intermédiaire $\mathcal{D}_{t_2}$ par :

$$\mathbb{F}^{thp} = \mathbb{F}^{th} \cdot \mathbb{F}^p. \quad (4.14)$$

4.1.2 Loi de comportement

Les matériaux polymères étant sensibles à la température et à la vitesse de déformation, la loi de comportement utilisée pour les décrire doit pouvoir prendre en compte ces deux influences. Par conséquent, nous avons choisi d'utiliser une loi élasto-viscoplastique pour modéliser le comportement de ces matériaux.

4.1.2.1 Comportement élastique

Les travaux de Anand [141, 142] ont montré que le tenseur des contraintes de Cauchy pouvait s'écrire en fonction du tenseur des déformations de Hencky en grandes déformations. Les différents états de contraintes étudiés (compression, traction, cisaillement et torsion simples) ont permis de valider le modèle élastique proposé. Ainsi, le tenseur des contraintes de Cauchy $\mathbb{T}$ est défini par :

$$\mathbb{T} = \frac{1}{J} \mathbb{C}^e \ln \mathbb{V}^e, \quad (4.15)$$

où $J = \det \mathbb{F}^e$ et $\mathbb{C}^e$ le tenseur des rigidités. En considérant un matériau isotrope, les composantes du tenseur de rigidités sont données par :

$$\mathbb{C}_{ijkl}^e = \frac{E}{1+\nu} \left[\frac{1}{2} (\delta_{ik}\delta_{jl} + \delta_{il}\delta_{jk}) + \frac{\nu}{1-2\nu} \delta_{ij}\delta_{kl} \right] \quad (4.16)$$

avec δ_{ij} le symbole de Kronecker, E et ν , respectivement le module d'élasticité et le coefficient de Poisson. Sous forme matricielle, le tenseur des rigidités s'écrit :

$$\mathbb{C}^e = \frac{E}{(1+\nu)(1-2\nu)} \begin{pmatrix} 1-\nu & \nu & \nu & 0 & 0 & 0 \\ \nu & 1-\nu & \nu & 0 & 0 & 0 \\ \nu & \nu & 1-\nu & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1-2\nu & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1-2\nu & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1-2\nu \end{pmatrix}. \quad (4.17)$$

La dépendance à la vitesse de déformation et à la température du module d'élasticité est donnée par Richeton *et al.* [44] dont nous rappelons la formulation ci-dessous :

$$E(T, \dot{\epsilon}) = (E_1(\dot{\epsilon}) - E_2(\dot{\epsilon})) \exp \left(- \left(\frac{T}{T_\beta(\dot{\epsilon})} \right)^{m_1} \right) + (E_2(\dot{\epsilon}) - E_3(\dot{\epsilon})) \exp \left(- \left(\frac{T}{T_g(\dot{\epsilon})} \right)^{m_2} \right) + E_3(\dot{\epsilon}) \exp \left(- \left(\frac{T}{T_f(\dot{\epsilon})} \right)^{m_3} \right), \quad (4.18)$$

où

$$\begin{cases} E_i(\dot{\epsilon}) &= E_i^{ref} \left(1 + s_i \log \left(\dot{\epsilon} / \dot{\epsilon}^{ref} \right) \right) \\ \frac{1}{T_\beta(\dot{\epsilon})} &= \frac{1}{T_\beta^{ref}} + \frac{R}{\Delta H_\beta} \ln \left(\dot{\epsilon}^{ref} / \dot{\epsilon} \right) \\ T_g(\dot{\epsilon}) &= T_g^{ref} - \frac{c_2^g \log \left(\dot{\epsilon}^{ref} / \dot{\epsilon} \right)}{c_1^g + \log \left(\dot{\epsilon}^{ref} / \dot{\epsilon} \right)} \\ T_f(\dot{\epsilon}) &= T_f^{ref} \left(1 + 0.01 \log \left(\dot{\epsilon} / \dot{\epsilon}^{ref} \right) \right) \end{cases} \quad (4.19)$$

avec T la température absolue, $\dot{\epsilon}$ la vitesse de déformation, R la constante des gaz parfaits, ΔH_β l'énergie d'activation de la transition β , E_i les modules d'élasticité instantanés, s_i les paramètres de sensibilité à la vitesse de déformation des différents modules, T_β , T_g et T_f , respectivement les températures de relaxation β , de transition vitreuse et d'écoulement du matériau; m_i les paramètres de Weibull représentant la probabilité de rupture des liaisons secondaires durant le processus de relaxation [42, 43] et E_i^{ref} et T_i^{ref} les modules instantanés et températures déterminés à la vitesse de déformation de référence $\dot{\epsilon}^{ref}$ choisie arbitrairement.

En accord avec les travaux de Greaves *et al.* [84], Mott *et al.* [83], Pandini et Pegoretti [82] le coefficient de Poisson est sensible à la vitesse de déformation et à la température dans la zone de transition vitreuse. Dans la région vitreuse et au-delà de la température de transition vitreuse, le coefficient de Poisson est supposé constant et égal à, respectivement, ν_0 et ν_c (avec $\nu_c = 0.4999$).

L'évolution en fonction de la température du coefficient de Poisson est corrélée à l'évolution du facteur de perte $\tan \delta$ au voisinage de la transition vitreuse. Sur la figure 4.2, on peut noter que la forme des courbes $\tan \delta$ et du coefficient de Poisson en fonction de la température sont similaires dans la gamme de température allant de la région vitreuse à la température de transition vitreuse. Ainsi, le coefficient de Poisson augmente fortement dès le début de la région de transition vitreuse. Une légère diminution du coefficient de Poisson est toutefois observée au passage des régions vitreuse et de transition vitreuse. On observe également un décalage en température des courbes du coefficient de Poisson en fonction de la température lorsque l'on augmente la vitesse de déformation. Ainsi, Pandini et Pegoretti [82] propose la construction d'une courbe maîtresse pour le coefficient de Poisson.

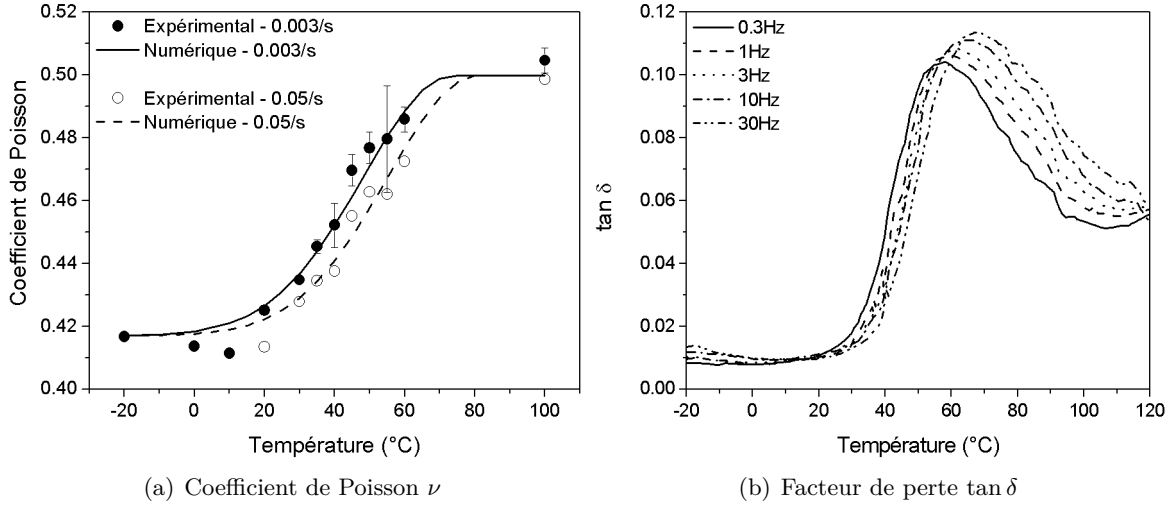


Figure 4.2 – (a) Comparaison entre les données expérimentales, pour un poly(téréphtalate de butylène) (PBT) semi-cristallin, issu des travaux de Pandini et Pegoretti [82] et le modèle proposé pour les deux vitesses de déformation. ($\nu_0 = 0.417$, $\nu_c = 0.4999$, $w = 26$, $\Delta T = 20$ °C, $T_g(0.003) = 54$ °C et $T_g(0.05) = 61$ °C). (b) Évolution expérimentale du facteur de perte $\tan \delta$ en fonction de la température pour quatre fréquences pour le PBT semi-cristallin. Résultats expérimentaux provenant de [82].

Nous cherchons à modéliser simplement la dépendance à la vitesse de déformation et à la température du coefficient de Poisson au passage de la température de transition vitreuse. Pour cela, on choisit d'utiliser une loi gaussienne au voisinage de la transition vitreuse :

$$\nu(T, \dot{\epsilon}) = \begin{cases} \nu_0 + (\nu_c - \nu_0) \exp\left(-\frac{(T - (T_g(\dot{\epsilon}) + \Delta T))^2}{2w^2}\right) & \text{si } T < T_g + \Delta T \\ \nu_c & \text{si } T \geq T_g + \Delta T \end{cases}, \quad (4.20)$$

où $2w = w_1/\sqrt{\ln 4}$ avec w_1 la largeur du pic à mi-hauteur et ΔT un paramètre ajusté sur les courbes expérimentales. Le paramètre ΔT peut être interprété comme étant égal à la moitié de la gamme de températures sur laquelle s'étend la région de transition vitreuse. Les différents paramètres associés à ce modèle sont illustrés sur la figure 4.3.

L'évolution du coefficient de Poisson en fonction de la vitesse de déformation est prise en compte à travers l'expression de la température de transition vitreuse. De manière générale, l'évolution du coefficient de Poisson aux environs de la température de transition vitreuse n'est pas étudiée. Seul le coefficient de Poisson dans la région vitreuse est usuellement déterminé. Cependant, étant donné l'analogie que l'on a pu faire entre l'évolution du coefficient de Poisson et le facteur de perte $\tan \delta$ en fonction de la température, le paramètre w peut être déterminé à partir d'un essai de DMA, essai plus communément utilisé pour les matériaux polymères.

La validation du modèle est présentée sur la figure 4.2(a). On peut noter une bonne adéquation entre les résultats numériques et expérimentaux. On remarque toutefois, que la diminution du

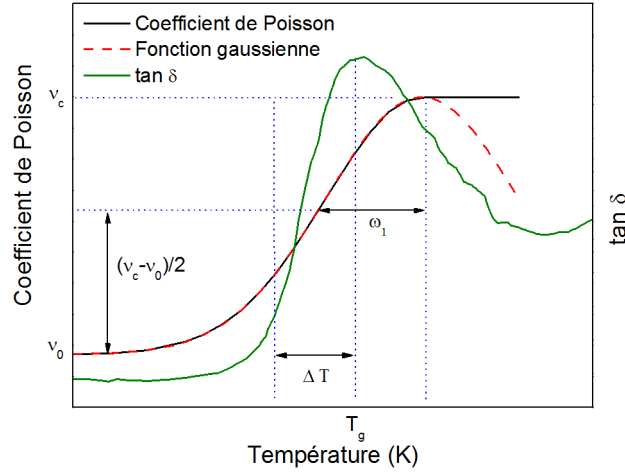


Figure 4.3 – Identification des différents paramètres associés au modèle décrivant l'évolution du coefficient de Poisson.

coefficient de Poisson au début de la région de transition vitreuse n'est pas prise en compte. Les températures de transition vitreuse ont été extrapolées à partir des essais de DMA effectués par Pandini et Pegoretti [82]. Le paramètre w a été calculé à partir des courbes du facteur de perte en fonction de la température. Ainsi, en l'absence de données expérimentales concernant l'évolution du coefficient de Poisson en fonction de la température, le paramètre ΔT peut être ajusté sur les courbes du facteur de perte $\tan \delta$ en fonction de la température.

4.1.2.2 Comportement viscoplastique

En grandes déformations, les matériaux polymères vont subir un important durcissement structural. Ce durcissement structural est dû à l'alignement des segments de chaînes polymères dans une même direction. Les effets entropiques sont communément décrits par la théorie de l'élasticité caoutchoutique. Plusieurs modèles permettant de modéliser ce comportement sont décrits dans le chapitre 2. Nous choisissons, ici, d'utiliser le modèle 8-chaînes [40] qui permet de décrire la mobilité des chaînes polymères suivant 8 directions. Dans les directions principales, le tenseur des contraintes de $\mathbb{B}$ s'écrit :

$$\mathbb{B}_i = C_R \frac{\sqrt{N}}{3} \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda_{chain}}{\sqrt{N}} \right) \frac{\lambda_i^2 - \lambda_{chain}^2}{\lambda_{chain}} \quad \text{pour } i = 1, 2, 3 \quad (4.21)$$

avec C_R le module caoutchoutique, N le nombre de liens rigides entre enchevêtrements, déterminés à partir d'essais de traction/compression uniaxiales, λ_i les valeurs des élongations des chaînes dans le repère principal, λ_{chain} l'étirement équivalent subi par chacune des 8 chaînes du modèle considéré et $\mathcal{L}^{-1}$ l'inverse de la fonction de Langevin. Les élongations λ_i sont les composantes principales du tenseur des déformations plastiques pures $\mathbb{V}^p$ tel que :

$$\mathbb{V}^p = \left[\mathbb{F}^p \cdot \mathbb{F}^{pT} \right]^{1/2}. \quad (4.22)$$

L'étirement équivalent subi par les chaînes polymères est donné par :

$$\lambda_{chain}^2 = \frac{\lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2}{3} \quad (4.23)$$

et la fonction inverse de Langevin est approchée par l'approximation de Padé [143]

$$\mathcal{L}^{-1}(x) \sim x \frac{3 - x^2}{1 - x^2}. \quad (4.24)$$

Dû à un changement de comportement avant et après la température de transition vitreuse, Richeton *et al.* [24] ont proposé une loi phénoménologique pour décrire la dépendance à la température

de C_R :

$$C_R = \begin{cases} C_R(0) - aT & \text{si } T \leq T_g \\ \frac{C_R(0) - aT_g}{T_g} T & \text{si } T \geq T_g \end{cases}, \quad (4.25)$$

et de N :

$$N = \begin{cases} N(0) + bT & \text{si } T \leq T_g \\ N(0) + bT_g & \text{si } T \geq T_g \end{cases}, \quad (4.26)$$

où $C_R(0)$ est le module caoutchoutique, $N(0)$ représente le nombre de liaisons entre enchevêtrements à 0 K et a et b sont des constantes matériaux.

On définit le tenseur des contraintes effectives $\mathbb{T}^*$ dans la configuration intermédiaire correspondant à $\mathbb{F}^{thp}$ par :

$$\mathbb{T}^* = \mathbb{R}^{e^T} \mathbb{T} \mathbb{R}^e - \mathbb{B}. \quad (4.27)$$

L'écoulement du matériau est un processus thermiquement activé. Celui-ci ne se produit qu'une fois la contrainte seuil τ_y atteinte. Elle est calculée à partir de l'expression du modèle coopératif [65, 66] :

$$\tau_y = \begin{cases} \tau_i(T) + \frac{2kT}{V} \sinh^{-1} \left(\frac{\dot{\varepsilon}(T)}{\dot{\varepsilon}_0 \exp \left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT} \right)} \right)^{1/n} & \text{si } T < T_g \\ \frac{2kT}{V} \sinh^{-1} \left(\frac{\dot{\varepsilon}(T)}{\dot{\varepsilon}_0 \exp \left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT_g} \right) \exp \left(\frac{\ln 10 c_1^g (T - T_g)}{c_2^g + T - T_g} \right)} \right)^{1/n} & \text{si } T \geq T_g \end{cases}, \quad (4.28)$$

avec τ_i la contrainte interne, τ la contrainte effective équivalente en cisaillement, k la constante de Boltzmann, V le volume d'activation en cisaillement, $\dot{\gamma}_0$ une constante pré-exponentielle du taux de déformation et c_1^g et c_2^g les constantes de la loi WLF. Lorsque le matériau se déforme de manière plastique, Richeton *et al.* [24, 65, 66] proposent de définir l'évolution du taux de déformation plastique équivalente $\dot{\gamma}^p$ par les relations :

$$\dot{\gamma}^p = \begin{cases} 0 & \text{si } \tau < \tau_y \\ \dot{\gamma}_0 \exp \left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT} \right) \sinh^n \left(\frac{(\tau - \tau_i)V}{2kT} \right) & \text{si } \tau \geq \tau_y \text{ et } T < T_g \\ \dot{\gamma}_0 \exp \left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT_g} \right) \exp \left(\frac{\ln 10 c_1^g (T - T_g)}{c_2^g + T - T_g} \right) \sinh^n \left(\frac{\tau V}{2kT} \right) & \text{si } \tau \geq \tau_y \text{ et } T \geq T_g \end{cases}. \quad (4.29)$$

La contrainte interne τ_i est dépendante de la température du matériau et de la pression hydrostatique P . Au seuil d'écoulement, la contrainte interne τ_{i_y} est défini par :

$$\tau_{i_y}(T) = \tau_i(0 \text{ K}) - mT + \alpha_p P \quad \text{où} \quad P = -\frac{1}{3} \text{trace}(\mathbb{T}) \quad (4.30)$$

avec $\tau_i(0 \text{ K})$ la contrainte interne à 0 K, m une constante matériau approximativement égale à $\tau_i(0 \text{ K})/T_g$ et α_p un paramètre de sensibilité à la pression. Au-delà du seuil d'écoulement, la contrainte interne τ_i évolue considérablement pour permettre l'adoucissement plastique du matériau. En accord avec Boyce *et al.* [39], l'adoucissement plastique dépend du taux de déformation plastique, de la température et de la structure du matériau. Boyce *et al.* [39, 52] proposent une loi d'évolution phénoménologique pour décrire la diminution de la contrainte interne au cours de la déformation irréversible du matériau :

$$\dot{\tau}_i = h \left(1 - \frac{\tau_i}{\tau_{ps}} \right) \dot{\gamma}^p \quad (4.31)$$

avec $\dot{\tau}_i$ le taux de contrainte interne, τ_i la contrainte interne actuelle, h la pente de la chute de la contrainte seuil et τ_{ps} est une propriété matériau correspondant à la valeur de la contrainte interne lorsque le matériau est dans son état structural privilégié. τ_{ps} dépend de la température et de la vitesse de déformation. En accord avec Richeton *et al.* [24], le rapport τ_{ps}/τ_{iy} est constant.

En utilisant le formalisme de Boyce *et al.* [52], le tenseur des taux de déformation plastique est donné par :

$$\mathbb{D}^p = \dot{\gamma}^p \mathbb{N} = \frac{\dot{\gamma}^p}{\sqrt{2}\tau} \mathbb{T}^{*'} \text{ où } \mathbb{N} = \frac{1}{\sqrt{2}\tau} \mathbb{T}^{*'} \quad (4.32)$$

où $\mathbb{N}$, tenseur normalisé de la partie déviatorique du tenseur des contraintes effectives $\mathbb{T}^{*'}$, est exprimé en fonction de la contrainte effective équivalente τ . $(\)'$ désigne la partie déviatorique d'un tenseur donné. L'expression de $\mathbb{N}$ permet de suivre l'évolution de la déformation plastique, supposée isochore. La contrainte effective équivalente est calculée à partir de la partie déviatorique du tenseur des contraintes effectives par la relation :

$$\tau = \left[\frac{1}{2} \mathbb{T}^{*'} : \mathbb{T}^{*'} \right]^{1/2}. \quad (4.33)$$

Le tenseur des taux de déformation thermoplastique $\mathbb{D}^{thp}$ est donné par :

$$\mathbb{D}^{thp} = \mathbb{D}^p + \beta_{dil}(T) \dot{T} \mathbb{I} \quad (4.34)$$

avec β_{dil} le coefficient de dilatation thermique. Ce coefficient dépend de la température et est donné par Bicerano [144] si $T_g \geq 298$ K par :

$$\beta_{dil} \sim \begin{cases} \beta_{dil}(298 \text{ K}) & \text{si } T < T_g \text{ et } T_g \geq 298 \text{ K} \\ \beta_{dil}(298 \text{ K}) + \frac{0.113}{3} \frac{T}{T_g} & \text{si } T \geq T_g \geq 298 \text{ K} \end{cases}, \quad (4.35)$$

et $\beta_{dil}(298 \text{ K})$ la dilatation thermique du matériau à 298 K.

Dans un état de déformations/contraintes tridimensionnelles, on définit la vitesse de déformation équivalente $\dot{\epsilon}^{eq}$ par :

$$\dot{\epsilon}^{eq} = \left[\frac{2}{3} \text{trace}(\mathbb{D}' : \mathbb{D}') \right]^{1/2} \quad (4.36)$$

où $\mathbb{D}'$ est la partie déviatorique du taux de déformation. La contrainte vraie équivalente σ_{eq} est défini par :

$$\sigma^{eq} = \left[\frac{3}{2} \text{trace}(\mathbb{T}' : \mathbb{T}') \right]^{1/2}, \quad (4.37)$$

avec $\mathbb{T}'$ la partie déviatorique du tenseur de Cauchy-Green.

4.1.2.3 Modélisation de l'auto-échauffement

La déformation du polymère va générer de la chaleur. Les travaux expérimentaux de Arruda *et al.* [40] et de Rittel [123] ont permis de mettre en évidence une augmentation de la température du matériau lorsque celui-ci se déforme de manière irréversible, aussi bien lors d'essais quasi-statiques que dynamiques.

Au cours de la déformation élastique du matériau, la température de l'échantillon ne va pas augmenter de manière significative comme on peut le noter sur la figure 4.4. En revanche, dès le début de la déformation irréversible et en particulier dans le domaine d'adoucissement plastique, on observe une augmentation quasi-linéaire de la température pouvant atteindre 20°C pour des essais quasi-statiques comme on peut le noter sur la figure 4.4(a). Sur la figure 4.4(b), pour des essais dynamiques, on observe une brusque augmentation de la température au début de la zone d'adoucissement plastique du matériau. Cette augmentation de température est due aux mouvements moléculaires des chaînes polymères entre elles lors de leurs réorientations.

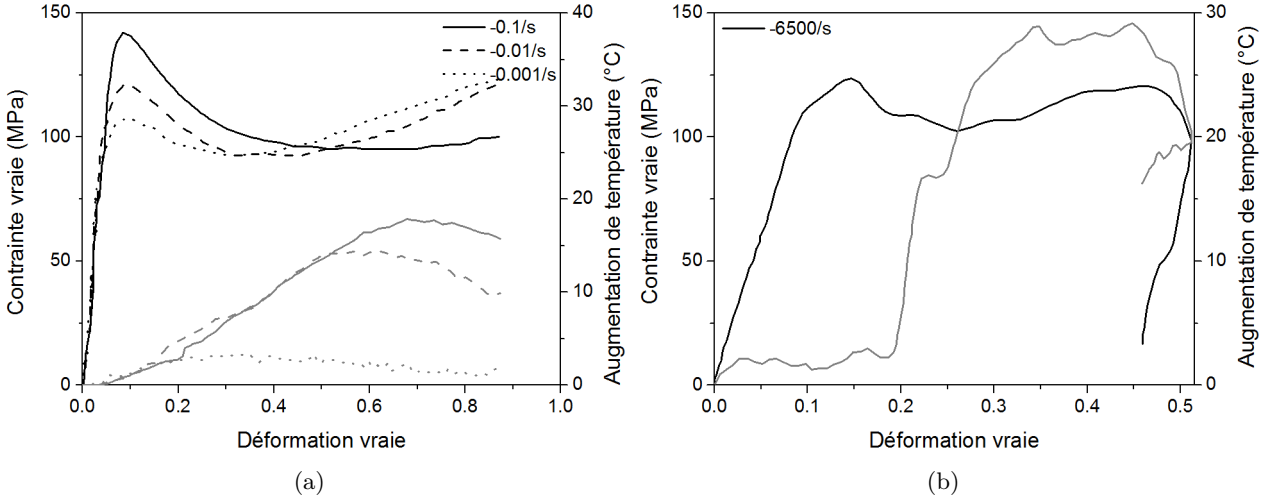


Figure 4.4 – Courbes expérimentales contrainte vraie-déformation vraie et augmentation de température-déformation vraie lors d’essais de compression uniaxiaux à température ambiante (a) pour du PMMA, en quasi-statique, reproduites d’après les travaux de Arruda *et al.* [40] et (b) pour du PC, en dynamique, reproduites d’après les travaux de Rittel [123].

Pour prendre en compte ce phénomène d’auto-échauffement, on réalise un bilan énergétique dont la forme générale s’écrit :

$$\rho(T)c_p(T)\dot{T} - \text{div} \left(\Gamma(T) \overrightarrow{\text{grad}} T \right) = \dot{q}, \quad (4.38)$$

avec ρ la masse volumique, c_p la chaleur spécifique, Γ la conductivité thermique et $\dot{q}$ le taux de chaleur. À l’instar de la dilatation thermique, la masse volumique, la chaleur spécifique et la conductivité thermique sont dépendantes de la température et en particulier de la température de transition vitreuse. Bicerano [144] et van Krevelen et te Nijenhuis [145] ont mis en évidence des relations pour la dépendance à la température des propriétés matériau de différents polymères. Pour un polymère dont la température de transition vitreuse est supérieure à 298 K, la dépendance de la masse volumique à la température est définie par :

$$\rho(T) \sim \begin{cases} \rho(298 \text{ K}) \frac{1.42T_g + 44.7}{1.42T_g + 0.15T} & \text{si } T \leq T_g \text{ et } T_g \geq 298 \text{ K} \\ \rho(298 \text{ K}) \frac{1.42T_g + 44.7}{1.57T_g + 0.30(T - T_g)} & \text{si } T \geq T_g \geq 298 \text{ K} \end{cases}. \quad (4.39)$$

La dépendance à la température de la conductivité thermique pour un polymère amorphe est donnée par l’expression :

$$\Gamma(T) \sim \begin{cases} \Gamma(T_g) \left(\frac{T}{T_g} \right)^{0.22} & \text{si } T \leq T_g \\ \Gamma(T_g) \left(1.2 - 0.2 \frac{T}{T_g} \right) & \text{si } T \geq T_g \end{cases} \quad \text{avec } \Gamma(T_g) \sim \Gamma(298 \text{ K}) \left(\frac{T_g}{298} \right)^{0.22}. \quad (4.40)$$

La dépendance à la température de la chaleur spécifique est exprimée suivant :

$$c_p(T) \sim \begin{cases} c_p^s(298 \text{ K}) (0.106 + 3 \times 10^{-3}T) & \text{si } T \leq T_g \\ c_p^l(298 \text{ K}) (0.61 + 1.3 \times 10^{-3}T) & \text{si } T \geq T_g \end{cases}. \quad (4.41)$$

4.2 Résolution numérique du problème thermomécanique

Afin de prévoir le comportement des matériaux soumis à des sollicitations complexes, nous sommes amenés à discrétiser le problème et à résoudre un système d'équations non linéaires. La résolution numérique du problème est réalisée grâce à une discrétisation spatiale et temporelle du problème. Chacune de ces deux approches sera décrite ici, ainsi que l'implémentation de la loi de comportement dans un logiciel Éléments Finis, et les tests qui ont permis de valider la bonne intégration de la loi.

4.2.1 Discrétisation temporelle

Étant donné le caractère non linéaire du problème, une discrétisation temporelle est utilisée. L'approche incrémentale permet de suivre une particule au cours du temps à partir de sa configuration initiale qui est connue. Ainsi, la position de la particule dans la configuration initiale $\mathcal{D}_0$ constitue les conditions initiales du problème. Pour chaque pas de temps, on va déterminer la position de la particule à partir de sa position dans la configuration précédente. Autrement dit, le problème se résume à déterminer la position de la particule à l'instant $t + \Delta t$ connaissant sa position à l'instant t .

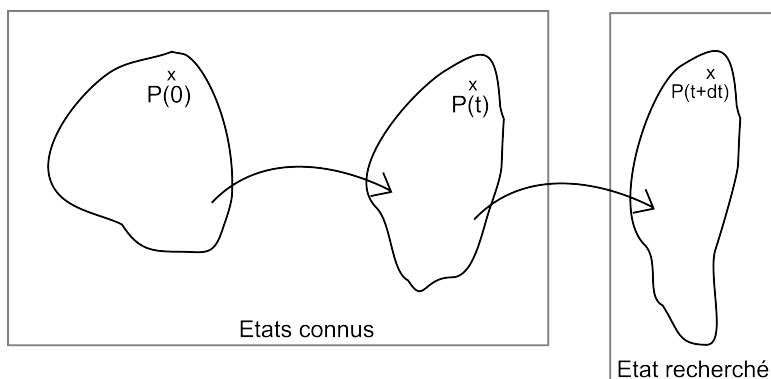


Figure 4.5 – Cadre général du problème mécanique non linéaire : description lagrangienne du mouvement.

Une bonne représentation de l'évolution du solide (contraintes, déformations, température...) nécessite qu'à chaque instant, l'équilibre soit respecté. Étant donné qu'il est impossible d'intégrer exactement les lois constitutives, on utilise des schémas d'intégration implicite, semi-implicite ou explicite pour approcher la solution du problème non linéaire au temps $t + \Delta t$ à partir des données obtenues au pas précédent. La convergence de la solution dépend de l'approximation qui est faite sur l'ensemble du problème.

4.2.2 Discrétisation spatiale : les Éléments Finis

L'équilibre énergétique du système doit être vérifié non seulement à chaque instant mais également pour chaque point matériel P de la structure. La méthode des Éléments Finis consiste à rechercher une solution approchée d'un système d'équations généralement non linéaires. Le problème initial est discrétisé et une solution est déterminée pour chaque élément du maillage.

4.2.3 Intégration numérique de la loi de comportement

L'évolution de la position de chaque particule du solide au cours du temps dépend des conditions aux limites et des conditions initiales (données du problème). Cependant, sans l'utilisation d'une loi de comportement adaptée au matériau, la modélisation ne permettra pas de prévoir correctement l'évolution de la structure étudiée. La loi de comportement utilisée est celle développée au paragraphe 4.1.2. Cependant, avant même de l'introduire, il est nécessaire de fixer le choix d'un logiciel Éléments Finis offrant la possibilité d'intégrer des lois de comportement et de prendre connaissance des entrées/sorties

fournies. Le cheminement suivi dans l'écriture de la loi de comportement est similaire à celui employé par Boyce [146].

4.2.3.1 Choix du logiciel Éléments Finis

Comme évoqué dans l'introduction du chapitre 4, de nombreux logiciels de simulation par Éléments Finis offrent la possibilité à l'utilisateur d'intégrer des lois extérieures. Notre choix s'est porté sur le logiciel ABAQUS/Explicit 6.9-1. En effet, les problèmes de contact étant efficacement gérés par ABAQUS/Explicit, le solveur explicite d'ABAQUS est largement utilisé pour des problèmes de laminage et de mise en forme des matériaux.

Dans ABAQUS/Explicit, un sous-programme *VUMAT* écrit en Fortran 77 permet d'utiliser une loi de comportement définie par l'utilisateur [147]. À chaque incrément, le sous-programme utilisateur *VUMAT* est appelé pour des blocs d'éléments. À l'issue du programme, le sous-programme *VUMAT* doit actualiser les contraintes au sens de Cauchy, ainsi qu'un certain nombre de variables internes qui seront nécessaires au bon déroulement du programme au pas suivant. L'utilisateur peut également définir l'énergie interne et l'énergie de dissipation inélastique pour chaque point matériel et à chaque incrément de temps. Leurs définitions par l'utilisateur permettent d'obtenir une plus grande rigueur sur les autres données qui sont calculées par la suite par le solveur. Pour pouvoir fournir les sorties demandées, des grandeurs mécaniques sont arguments d'appel du sous-programme *VUMAT* [148]. On trouve entre autre :

- le pas de temps Δt ,
- les propriétés matériau,
- la température T , au temps t et $t + \Delta t$,
- le gradient de déformation total $\mathbb{F}$ au temps $t + \Delta t$,
- le tenseur des incréments de déformation $\Delta \varepsilon$
- le tenseur des déformations pures droit $\mathbb{U}$ au temps $t + \Delta t$,
- l'énergie interne $E_t^{interne}$ et l'énergie de déformation inélastique E_t^{def} au temps t ,
- l'ensemble des variables internes au temps t ,
- le tenseur des contraintes de Cauchy $\mathbb{T}$ au temps t .

4.2.3.2 Problème discrétisé : intégration numérique dans ABAQUS/Explicit

Le logiciel ABAQUS stocke les différentes composantes de ces tenseurs et gradients de manière vectorielle. Par conséquent, le programmeur doit tenir compte des conventions d'ABAQUS dans les arguments d'entrées/sorties du sous-programme *VUMAT*. Ces conventions indispensables au bon déroulement du sous-programme sont disponibles dans le manuel d'utilisation d'ABAQUS [148] concernant la *VUMAT* et répertoriées en Annexe A.

Le codage de la loi de comportement conjugue l'utilisation d'une méthode itérative et d'un schéma implicite. L'introduction de la loi de comportement décrite au paragraphe 4.1.2 dans ABAQUS/Explicit est présentée ici. Dans un premier temps, cette loi de comportement a été introduite dans le cas isotherme.

Tout d'abord, on pose les hypothèses initiales sur les grandeurs mécaniques. Au temps $t = 0$,

- le matériau a une température initiale,
- le matériau est élastique (en effet, ABAQUS/Explicit impose d'initialiser le sous-programme *VUMAT* par une déformation élastique),
- les gradients de déformation plastique et thermoplastique, respectivement $\mathbb{F}^p$ et $\mathbb{F}^{thp}$, sont égaux au tenseur identité.

Étant donné que la loi de comportement utilisée dépend de la température et de la vitesse de déformation, il est nécessaire de calculer cette dernière afin de déterminer les propriétés matériaux. Le taux de déformation équivalent ou vitesse de déformation équivalente s'écrit donc :

$$\dot{\varepsilon}_{t+\Delta t}^{eq} = \frac{1}{\Delta t} \sqrt{\frac{2}{3} \Delta \varepsilon' : \Delta \varepsilon'}, \quad (4.42)$$

où $\Delta\varepsilon'$ est la partie déviatorique du tenseur des incréments de déformation $\Delta\varepsilon$. La connaissance de la vitesse de déformation équivalente et de la température du matériau, nous permet de calculer les différentes propriétés matériau (densité, chaleur spécifique, coefficient de Poisson, module d'élasticité...) et, par conséquent, le tenseur des rigidités $\mathbb{C}_{t+\Delta t}^e$.

Ensuite, connaissant le gradient de déformation $\mathbb{F}$ au temps $t + \Delta t$, fourni par ABAQUS/Explicit, on peut calculer une première approximation du gradient de déformation élastique :

$$\mathbb{F}_{t+\Delta t}^e = \mathbb{F}_{t+\Delta t} \cdot \mathbb{F}_t^{thp^{-1}}. \quad (4.43)$$

Grâce à cette première approximation de $\mathbb{F}_{t+\Delta t}^e$, on calcule le tenseur des contraintes de Cauchy :

$$\mathbb{T}_{t+\Delta t} = \frac{1}{\det \mathbb{F}_{t+\Delta t}^e} \mathbb{C}_{t+\Delta t}^e \ln \mathbb{V}_{t+\Delta t}^e \quad (4.44)$$

avec

$$\mathbb{V}_{t+\Delta t}^e = \left[\mathbb{F}_{t+\Delta t}^e \cdot \mathbb{F}_{t+\Delta t}^{eT} \right]^{1/2} \quad (4.45)$$

le tenseur des déformations élastiques pures gauche au temps $t + \Delta t$. De plus, connaissant $\mathbb{V}_{t+\Delta t}^e$ et $\mathbb{F}_{t+\Delta t}^e$, on peut calculer le tenseur des rotations élastiques pures $t + \Delta t$, $\mathbb{R}_{t+\Delta t}^e$.

On calcule une première approximation du tenseur des contraintes de rappel $\mathbb{B}$ à l'aide du gradient de déformation plastique $\mathbb{F}^p$ calculé au pas précédent. Les contraintes principales au temps t sont données par :

$$\mathbb{B}_{i_t} = C_R \frac{\sqrt{N}}{3 \lambda_{chain_t}} \mathcal{L}^{-1} \left(\frac{\lambda_{chain_t}}{\sqrt{N}} \right) (\lambda_{i_t}^2 - \lambda_{chain_t}^2), \quad (4.46)$$

avec λ_i élongations plastiques principales calculées à partir du tenseur des déformations plastiques pures gauche $\mathbb{V}^p$:

$$\begin{cases} \mathbb{V}_t^p &= \left[\mathbb{F}_t^p \cdot \mathbb{F}_t^{pT} \right]^{1/2} \\ \lambda_{chain_t} &= \sqrt{\frac{\lambda_{1_t}^2 + \lambda_{2_t}^2 + \lambda_{3_t}^2}{3}} \end{cases} \quad (4.47)$$

On calcule ensuite le tenseur des contraintes effectives et la contrainte effective équivalente :

$$\begin{cases} \mathbb{T}_{t+\Delta t}^* &= \mathbb{R}_{t+\Delta t}^{eT} \cdot \mathbb{T}_{t+\Delta t} \cdot \mathbb{R}_{t+\Delta t}^e - \mathbb{B}_t \\ \tau_{t+\Delta t} &= \left[\frac{1}{2} \mathbb{T}_{t+\Delta t}^* \cdot \mathbb{T}_{t+\Delta t}^* \right]^{1/2} \end{cases} \quad (4.48)$$

À chaque pas de temps et tant que le matériau est dans son domaine de comportement élastique, la contrainte seuil est calculée à partir de la formulation du modèle coopératif par :

$$\tau_{y_{t+\Delta t}}(T_{t+\Delta t}) = \begin{cases} \tau_{i_{t+\Delta t}}(T_{t+\Delta t}) + \frac{2kT_{t+\Delta t}}{V} \sinh^{-1} \left(\frac{\dot{\varepsilon}_{t+\Delta t}^{eq}}{\dot{\gamma}_0 \exp \left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT_{t+\Delta t}} \right)} \right)^{1/n} & \text{si } T < T_g \\ \frac{2kT_{t+\Delta t}}{V} \sinh^{-1} \left(\frac{\dot{\varepsilon}_{t+\Delta t}^{eq}}{\dot{\gamma}_0 \exp \left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT_g} \right) \exp \left(\frac{\ln 10}{c_2^g + T_{t+\Delta t} - T_g} \right)} \right)^{1/n} & \text{si } T \geq T_g \end{cases} \quad (4.49)$$

La dépendance en temps de la contrainte interne est faite non seulement à travers la température mais également à travers la pression hydrostatique. On suppose que le matériau se déforme de manière irréversible lorsque la contrainte effective équivalente τ devient égale ou supérieure à la contrainte seuil

τ_y . Le taux de déformation plastique équivalent $\dot{\gamma}^p$ est alors calculé à partir du modèle coopératif par :

$$\dot{\gamma}_{t+\Delta t}^p(T_{t+\Delta t}) = \begin{cases} \dot{\gamma}_0 \exp\left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT_{t+\Delta t}}\right) \sinh^n\left(\frac{(\tau_{t+\Delta t} - \tau_{i_{t+\Delta t}})V}{2kT_{t+\Delta t}}\right) & \text{si } T < T_g \\ \dot{\gamma}_0 \exp\left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT_g}\right) \exp\left(\frac{\ln 10}{c_2^g + T_{t+\Delta t} - T_g}\right) \sinh^n\left(\frac{\tau_{t+\Delta t}V}{2kT_{t+\Delta t}}\right) & \text{si } T \geq T_g \end{cases} \quad (4.50)$$

La contrainte interne $\tau_{i_{t+\Delta t}}$, qui intervient dans la formulation du modèle coopératif, permet de prendre en compte la résistance intermoléculaire des chaînes polymères lors de la déformation irréversible du matériau quand celui-ci est à une température en deçà de la température de transition vitreuse. En accord avec les travaux de Boyce *et al.* [39, 52] sur le modèle d'Argon, l'évolution de la contrainte interne durant l'adoucissement plastique du matériau est décrite par l'évolution de $\dot{\tau}_i$ donnée par l'expresssion 4.31. La contrainte interne est alors calculée de manière itérative par :

$$\begin{cases} \tau_{i_y} = \tau_{i_{t=0}} & = \tau_i(0 \text{ K}) - mT - \alpha_P P \\ \tau_{i_{t+\Delta t}} & = \tau_{i_t} + \dot{\tau}_i \Delta t \\ \dot{\tau}_i & = h \left(1 - \frac{\tau_{i_{t+\Delta t}}}{\tau_{ps}}\right) \dot{\gamma}_{t+\Delta t}^p \end{cases}, \quad (4.51)$$

avec τ_{i_y} la contrainte interne déterminée au seuil plastique, $m \sim \tau_i(0 \text{ K})/T_g$ une constante matériau, α_P le coefficient de sensibilité à la pression déterminé à partir d'essais de traction et de compression uniaxiaux et P la pression hydrostatique.

Les expressions des tenseurs du taux de déformation plastique et thermoplastique au temps $t + \Delta t$ s'écrivent :

$$\begin{cases} \mathbb{D}_{t+\Delta t}^p & = \frac{\dot{\gamma}_{t+\Delta t}^p}{\sqrt{2}\tau_{t+\Delta t}} \mathbb{T}_{t+\Delta t}^{*'} \\ \mathbb{D}_{t+\Delta t}^{thp} & = \mathbb{D}_{t+\Delta t}^p + \beta(T_{t+\Delta t}) \frac{T_{t+\Delta t} - T_t}{\Delta t} \mathbb{I} \end{cases} \quad (4.52)$$

On peut alors exprimer les gradients de déformation plastique et thermoplastique en utilisant un schéma semi-implicite :

$$\begin{cases} \bar{\mathbb{F}}_{t+\Delta t}^p & = \mathbb{F}_t^p \cdot (\mathbb{I} - \mathbb{D}_{t+\Delta t}^p \Delta t)^{-1} \\ \bar{\mathbb{F}}_{t+\Delta t}^{thp} & = \mathbb{F}_t^{thp} \cdot (\mathbb{I} - \mathbb{D}_{t+\Delta t}^{thp} \Delta t)^{-1} \end{cases} \quad (4.53)$$

Les déformations plastiques et thermoplastiques ne devant pas engendrer de variation de volume du solide, on s'assurera que le déterminant des gradients de déformation plastique et thermoplastique décrivent bien une transformation isochore pour chaque élément. Ainsi, on s'assurera que $\det \mathbb{F}^p = 1$ et $\det \mathbb{F}^{thp} = 1$:

$$\begin{cases} \mathbb{F}_{t+\Delta t}^p & = \frac{\bar{\mathbb{F}}_{t+\Delta t}^p}{(\det \bar{\mathbb{F}}_{t+\Delta t}^p)^{1/3}} \\ \mathbb{F}_{t+\Delta t}^{thp} & = \frac{\bar{\mathbb{F}}_{t+\Delta t}^{thp}}{(\det \bar{\mathbb{F}}_{t+\Delta t}^{thp})^{1/3}} \end{cases} \quad (4.54)$$

On a vu à l'équation 4.43 que le gradient de déformation élastique n'est pas calculé exactement au temps $t + \Delta t$. De plus, le tenseur des contraintes de rappel $\mathbb{B}$ qui décrit le durcissement structural du matériau est défini au temps t dans l'équation 4.46. Dans le cas où le matériau est élastique, les gradients de déformation plastique et thermoplastique restent inchangés d'un incrément de temps à l'autre. Par conséquent, définir $\mathbb{F}^e$ et $\mathbb{B}$ au temps t ou au temps $t + \Delta t$ ne change en rien le résultat. En revanche, lorsque le matériau commence à se déformer de manière irréversible, on fait une erreur initiale sur $\mathbb{F}^e$. Pour diminuer cette erreur, on va remplacer, dans les équations 4.43 et 4.46, $\mathbb{F}_t^{thp}$ et $\mathbb{F}_t^p$ par les données obtenues dans l'équation 4.54. Ainsi, en procédant de manière itérative, on tend à diminuer l'erreur faite sur le tenseur des contraintes de Cauchy $\mathbb{T}$ au temps $t + \Delta t$. Pour savoir si

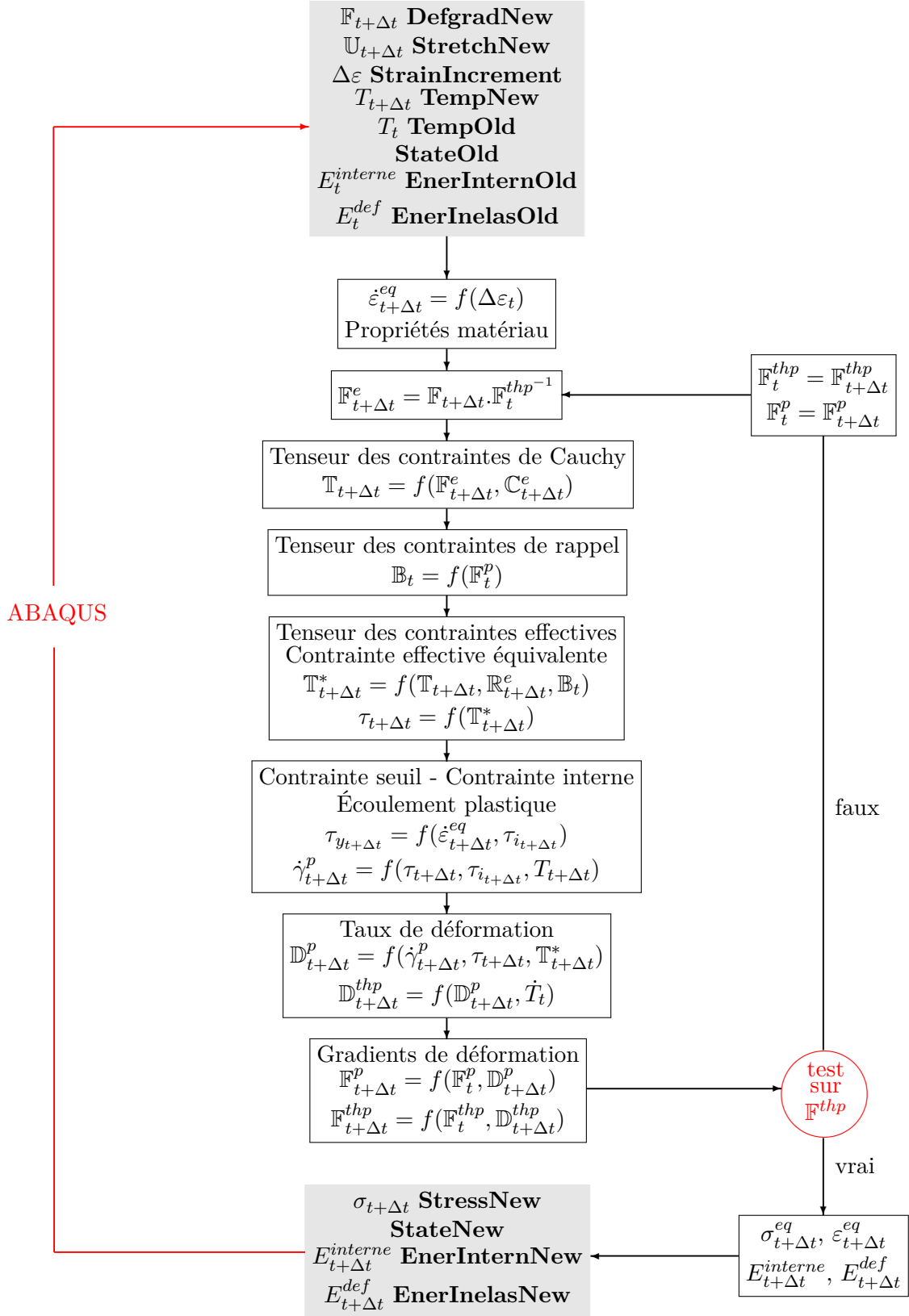


Figure 4.6 – Algorithme de la loi de comportement introduite dans ABAQUS/Explicit. Les mots en **gras** correspondent aux noms des différentes variables dans l’environnement ABAQUS/Explicit.

l'erreur faite sur l'ensemble des variables est faible entre deux itérations, on choisit de vérifier que la différence entre deux gradients de déformation thermoplastique calculés successivement est faible. Si cette condition est remplie ou que le nombre maximal d'itérations (pour éviter les boucles trop longues ou infinies) est atteint, on sort de la boucle itérative et on calcule la déformation équivalente, la contrainte équivalente, et les énergies (interne et de déformation inélastique) :

$$\begin{cases} \varepsilon_{t+\Delta t}^{eq} &= \varepsilon_t^{eq} + \dot{\varepsilon}^{eq} \Delta t \\ \sigma_{t+\Delta t}^{eq} &= \left[\frac{2}{3} \text{trace}(\mathbb{T}' : \mathbb{T}') \right]^{1/2} \end{cases} \quad (4.55)$$

et

$$\begin{cases} E_{t+\Delta t}^{interne} &= E_t^{interne} + \frac{1}{2\rho} \left((\sigma_t^{eq} + \sigma_{t+\Delta t}^{eq}) : \Delta \varepsilon \right) \\ E_{t+\Delta t}^{def} &= E_t^{def} + \tau_{t+\Delta t} \dot{\gamma}_{t+\Delta t}^p \Delta t \end{cases} \quad (4.56)$$

où $\mathbb{T}'$ désigne la partie déviatorique du tenseur de Cauchy.

L'intégration numérique de la loi de comportement est schématisée sur la figure 4.6. Elle reprend l'ensemble des données utilisées en entrée/sortie. Les termes en **gras** correspondent aux noms utilisés par l'environnement ABAQUS.

4.3 Validation des résultats : tests préliminaires - Cas isotherme

Une fois la loi de comportement introduite dans ABAQUS/Explicit, des tests élémentaires, dont les résultats sont connus, permettent de confirmer que celle-ci a été correctement implémentée. Ces tests, effectués sur des géométries simples dont la section est constante (carré et cube), permettent de valider que le modèle Éléments Finis est en accord avec les données expérimentales. Pour ces essais de validation, le raffinement du maillage ne doit en principe pas avoir d'incidence.

Étant donné la double dépendance du matériau (en vitesse de déformation et en température), on choisit de valider l'implémentation de la loi de comportement en deux temps. Tout d'abord, elle sera validée en ne tenant compte que des effets de la vitesse de déformation. La validation du cas isotherme est présentée ici. Dans une seconde partie, les effets de température seront introduits en considérant l'auto-échauffement du matériau.

Les essais de validation ont été simulés à vitesse de déformation constante pour les géométries 2D et 3D présentées sur les figures 4.7(a) et (b). Pour cela, on impose une vitesse de déplacement aux nœuds

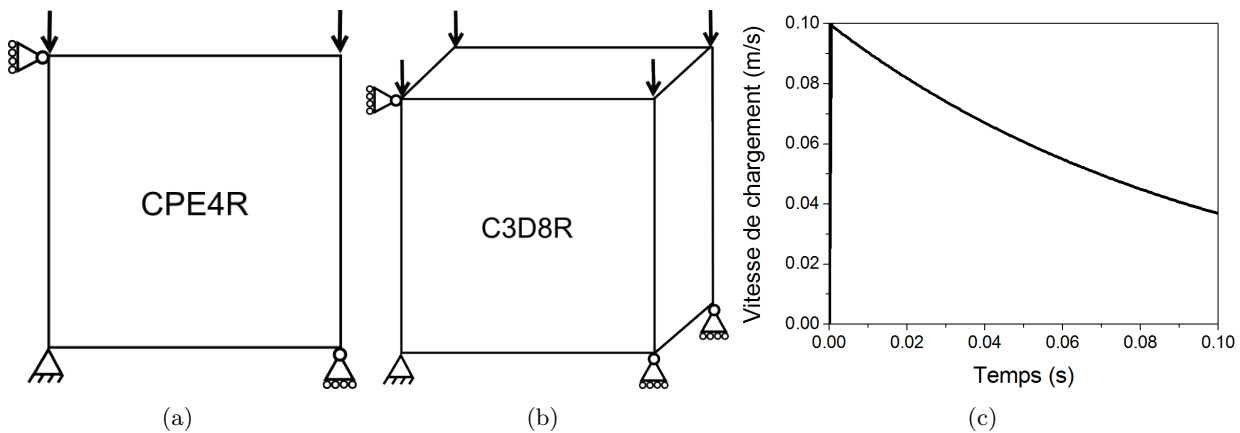


Figure 4.7 – Géométrie et conditions imposées pour simuler un essai de compression uniaxiale, dans le cas d'un (a) essai de déformation plane homogène, (b) tridimensionnel. (c) Évolution de la vitesse de chargement imposée.

supérieurs du solide de telle sorte que la vitesse de déformation équivalente est constante pendant tout l'essai. Pour obtenir une vitesse de déformation constante, la vitesse de déplacement varie au cours du temps. Ainsi, pour une vitesse de déformation de 10 s^{-1} , l'amplitude du déplacement au cours du temps est présentée sur la figure 4.7(c). Pour mailler notre solide, on choisit des éléments quadrilatères à intégration réduite avec un contrôle de l'« hourglass », notés CPE4R pour les éléments 2D et C3D8R pour les éléments 3D. Les conditions aux limites et de chargement imposées sont schématisées sur les figures 4.7(a) et (b) pour chacune des deux géométries.

Les tests de validation du sous-programme *VUMAT* ont été effectués sur un poly(carbonate) (PC) testé à 25°C et à 10 s^{-1} par Richeton *et al.* [24]. Les propriétés matériau utilisées sont celles identifiées par Richeton *et al.* [24].

4.3.1 Essais de validation - 1 élément

La validation de la loi de comportement est tout d'abord effectuée sur 1 élément, en 2D et en 3D, pour un essai de compression uniaxiale.

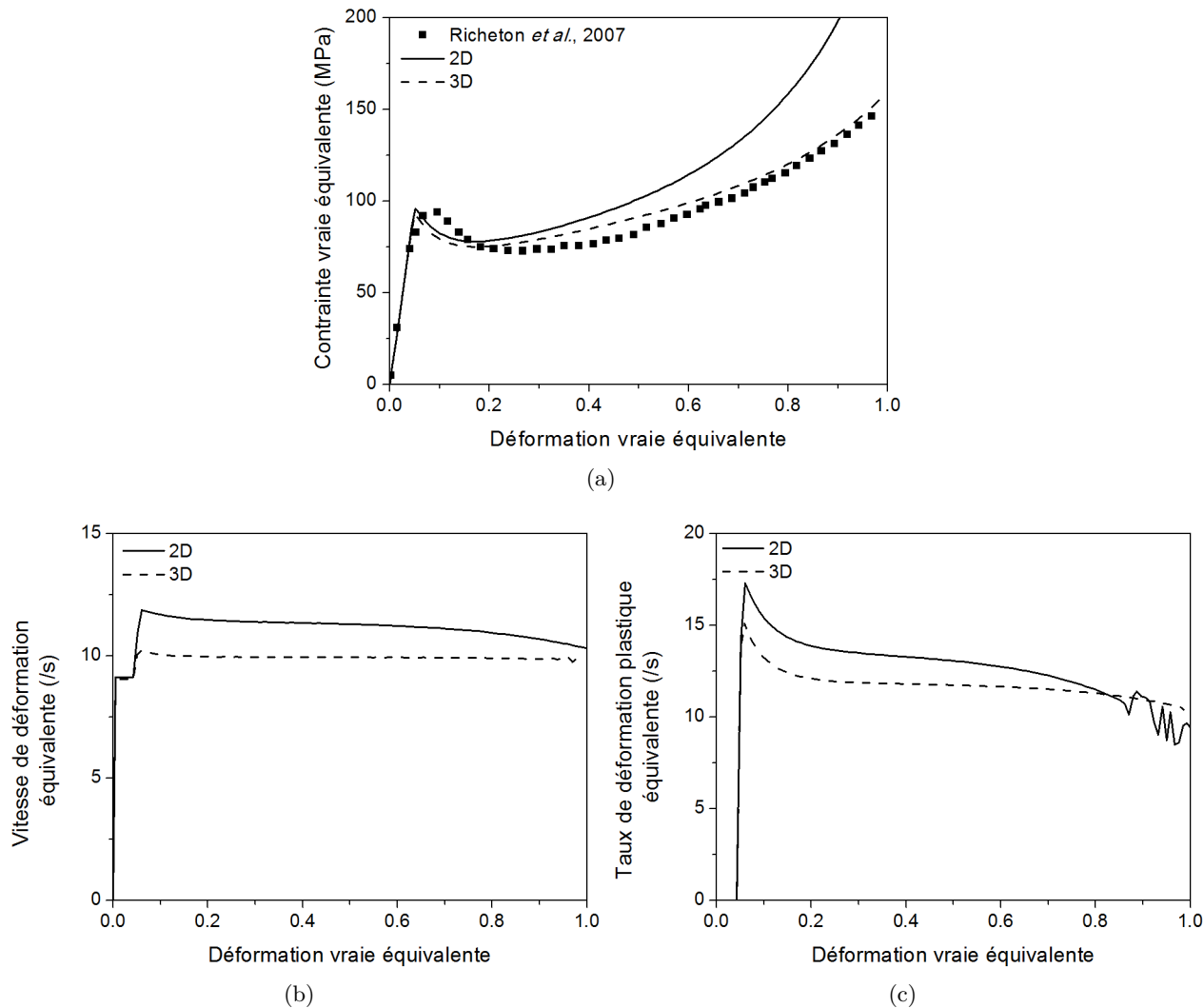


Figure 4.8 – Validation de la loi de comportement introduit dans ABAQUS/Explicit pour 1 élément avec (a) contrainte vraie équivalente, (b) vitesse de déformation équivalente et (c) taux de déformation plastique équivalent en fonction de la déformation vraie équivalente.

Ainsi, sur la figure 4.8(a), on constate, que pour un élément, le modèle Éléments Finis est en

adéquation avec l'expérience menée par Richeton *et al.* [24]. Les figures 4.8(b) et (c) permettent de vérifier que les vitesses de déformation équivalente sont numériquement stables. La validation du modèle sur un élément est une première étape. Cependant, pour pouvoir utiliser la loi de comportement que nous avons introduit dans ABAQUS/Explicit sur des problèmes complexes, il est nécessaire que celle-ci soit valable quelque soit le nombre d'éléments.

4.3.2 Essais de validation sur 10×10 ($\times 10$) éléments

Un premier test de validation sur un problème de plus grande dimension est réalisé. Le solide est alors discrétisé avec 10 éléments par arêtes et un essai de compression uniaxiale et un essai de traction uniaxiale sont simulés. On s'intéresse au comportement du matériau ainsi qu'à l'évolution, en fonction du temps, des vitesses de déformation totale et plastique. Dans le cas 3D, on va s'intéresser à trois zones du solide, donc à trois éléments illustrés sur la figure 4.9. L'élément 1 se situe au niveau de l'encastrement. L'élément 1000 est l'élément diamétralement opposé à l'élément 1 dans le cube. Enfin, l'élément 455 est un élément situé au centre du solide.

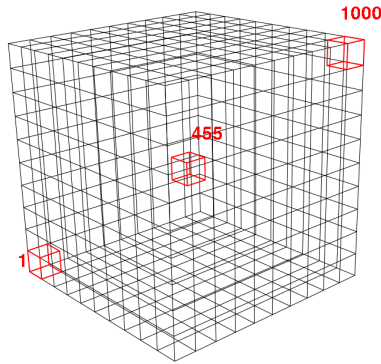


Figure 4.9 – Maillage 3D du cube et identification des trois éléments analysés.

Lors d'un essai de compression uniaxiale, on peut noter sur les figures 4.10(b) et (c) de fortes instabilités de la vitesse de déformation équivalente et du taux de déformation plastique. Cependant, après examen, bien qu'instable, la vitesse de déformation équivalente oscille autour d'une valeur moyenne qui correspond à 10 s^{-1} , vitesse de déformation équivalente obtenue avec 1 élément. Dues à ces instabilités numériques, on peut noter, sur la figure 4.10(a) que le comportement du matériau diffère d'un élément à l'autre. Ces instabilités vont davantage influencer le comportement des éléments se trouvant au cœur du solide que ceux se trouvant en surface.

Les résultats obtenues pour la modélisation d'un cube sollicité en traction uniaxiale sont présentés sur la figure 4.11. Des instabilités numériques dans le calcul de la vitesse de déformation équivalente au début de l'essai sont identifiées sur la figure 4.11(b). Ces instabilités sont dues à une augmentation soudaine de la vitesse de déformation, puisque celle-ci passe de 0 à 10 s^{-1} . Cependant, malgré ces instabilités, le calcul de la vitesse de déformation équivalente converge rapidement. On remarque, sur la figure 4.11(a), que le comportement d'un élément à l'autre diffère peu en traction uniaxiale contrairement à la compression uniaxiale (figure 4.10(a)). On notera que le comportement de l'élément 1 et de l'élément 1000 est confondu.

Dans le cas d'un calcul isotherme et d'une géométrie 3D, à vitesse de déformation constante, la loi de comportement utilisée permet d'obtenir des résultats plus stables en traction qu'en compression dus à une forte instabilité de la vitesse de déformation équivalente en compression.

Des essais de traction uniaxiale et de compression uniaxiale en déformation plane ont également été simulés. La déformée du maillage 2D obtenue au cours d'un essai de compression uniaxiale est présentée sur la figure 4.12. On peut noter une distorsion du maillage. Ce phénomène est dû à des instabilités de la vitesse de déformation qui diverge rapidement. Pour trois éléments repérés sur la figure 4.12, on trace l'évolution de la vitesse de déformation équivalente en fonction du temps. Pour

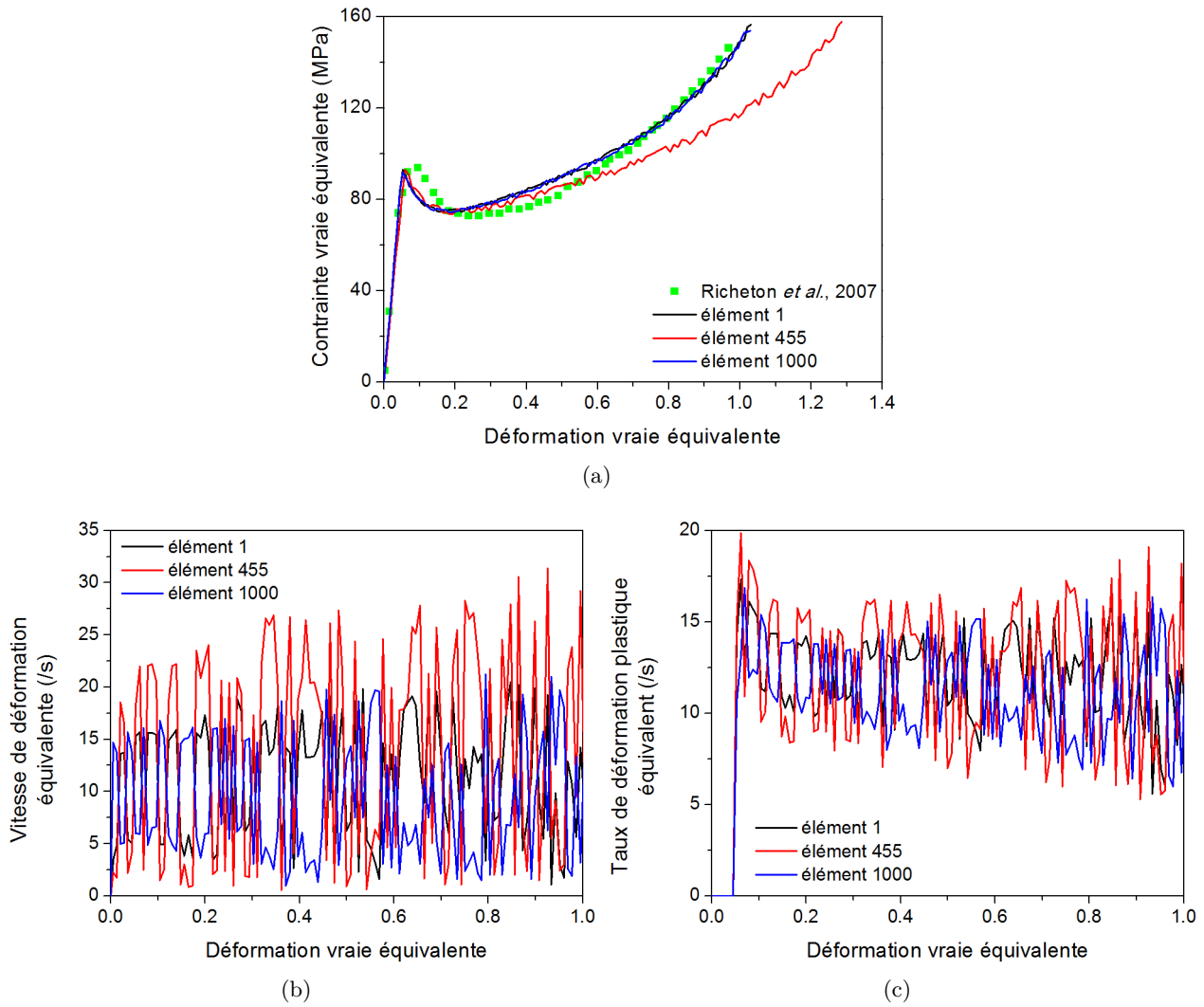


Figure 4.10 – Validation de la loi de comportement introduite dans ABAQUS/Explicit pour un essai de compression uniaxiale avec $10 \times 10 \times 10$ éléments avec (a) contrainte vraie équivalente, (b) vitesse de déformation équivalente et (c) taux de déformation plastique équivalent en fonction de la déformation vraie équivalente.

ces trois éléments, on peut noter une légère instabilité de la vitesse de déformation d'un pas de temps à l'autre. Au cours du temps, l'accumulation de ces instabilités augmente la vitesse de déformation équivalente jusqu'à ce que celle-ci diverge (autour de 5.8 ms). Un constat similaire peut être fait pour l'essai de traction uniaxiale.

Les instabilités que l'on a pu observer au travers du cas 3D, mais qui sont également très présentes dans le cas 2D, ont plusieurs origines. Une part des instabilités est propre à ABAQUS/Explicit et à l'algorithme utilisé pour déterminer le gradient de déformation au temps $t + \Delta t$, $\mathbb{F}_{t+\Delta t}$, et l'incrément de déformation $\Delta \varepsilon$. Une autre part des instabilités est liée au fait que la loi de comportement que nous avons choisi d'utiliser est très sensible à la vitesse de déformation. Ainsi, un fort gradient de la vitesse de déformation entre deux pas de temps influence fortement les propriétés mécaniques et, par conséquent, le tenseur des contraintes dont ABAQUS/Explicit va se servir pour calculer les nouveaux gradients, tenseurs, scalaires que nous utilisons comme données d'entrée du sous-programme *VUMAT*. De plus, un fort gradient de la vitesse de déformation entre deux éléments voisins peut provoquer une distorsion des éléments, phénomène que nous avons observé dans le cas d'un essai de traction et compression plane.

Aux vues des résultats présentés sur les figures 4.10 et 4.11, on constate qu'un grand nombre d'élé-

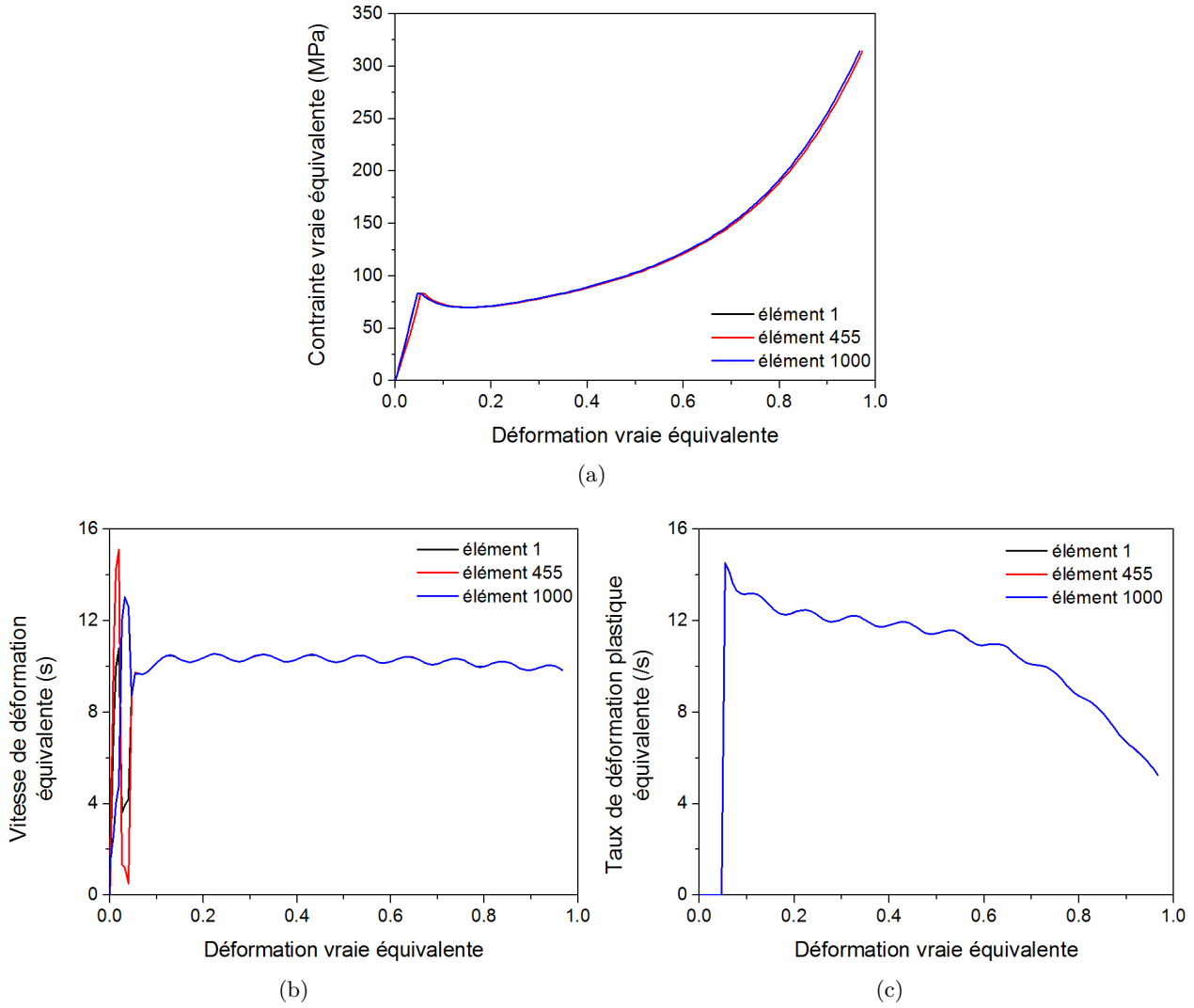


Figure 4.11 – Validation de la loi de comportement introduite dans ABAQUS/Explicit pour un essai de traction uniaxiale avec $10 \times 10 \times 10$ éléments avec (a) contrainte vraie équivalente, (b) vitesse de déformation équivalente et (c) taux de déformation plastique équivalente en fonction de la déformation vraie équivalente.

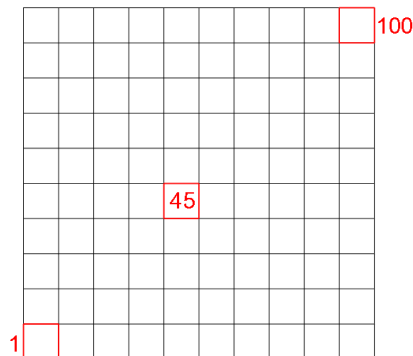


Figure 4.12 – Maillage 2D déformé du cube obtenu à $t = 8.27$ ms au cours d'un essai de compression uniaxiale et identification des trois éléments analysés.

ments va introduire des perturbations dans la loi de comportement en raison d'une non-homogénéité de la vitesse de déformation dans le solide. Ces perturbations vont faire diverger la vitesse de déforma-

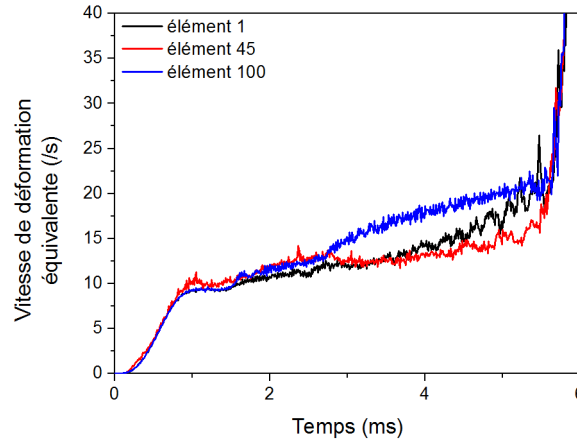


Figure 4.13 – Évolution de la vitesse de déformation équivalente en fonction du temps pour 3 éléments, identifiés sur la figure 4.12, lors d'un essai de compression uniaxiale sur une géométrie 2D.

tion équivalente, et par conséquent, faire diverger le modèle. Pour réduire l'impact de ces instabilités numériques, on est amené à homogénéiser la vitesse de déformation. Pour cela, deux solutions existent :

- homogénéisation par rapport à la géométrie,
- homogénéisation par rapport au temps.

Après les avoir exposés, les résultats de ces deux homogénéisations seront comparés tant en termes de comportement mécanique (courbe contrainte-déformation équivalente) qu'en termes de temps de calcul.

4.3.2.1 Homogénéisation sur la géométrie

On appelle épaisseur, l'ensemble des éléments ayant une même coordonnée (abscisse ou ordonnée) et étant situé dans le sens de l'effort appliqué comme exposé sur la figure 4.14.

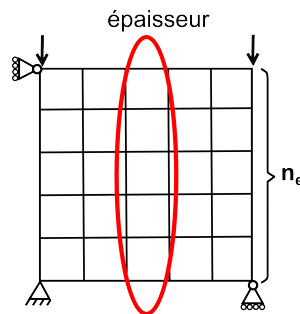


Figure 4.14 – Schéma pour l'homogénéisation sur la géométrie.

Dans le cas d'une géométrie plane et 3D, nous avons constaté que, à un temps donné, la vitesse de déformation oscille en fonction de la position de l'élément (voir les figures 4.10(b) et 4.11(b)). De plus, en réalisant, pour chaque épaisseur, une moyenne des vitesses de déformation des éléments associés, nous avons remarqué que la vitesse de déformation moyenne était relativement constante d'une épaisseur à l'autre et qu'elle correspondait à celle que nous avons imposé.

En tenant compte des observations qui ont été faites ci-dessus, nous avons eu l'idée d'homogénéiser la vitesse de déformation sur la géométrie. Pour cela, deux hypothèses sont faites :

- le solide est à section constante,
- la vitesse de déformation est uniforme dans toute l'épaisseur du matériau.

Ainsi, on définit la vitesse de déformation homogénéisée sur la géométrie $\dot{\varepsilon}_{HG}^{eq}$ par la relation :

$$\dot{\varepsilon}_{HG}^{eq} = \frac{1}{n_e} \sum_{i=1}^{n_e} \dot{\varepsilon}_i^{eq}, \quad (4.57)$$

avec n_e le nombre d'éléments constituant l'épaisseur, illustré sur la figure 4.14.

Cette méthode d'homogénéisation présente l'avantage d'obtenir une vitesse de déformation équivalente relativement homogène pour tous les éléments du solide. Cependant, on peut déjà noter qu'elle risque d'être très coûteuse en temps de calcul et en stockage mémoire puisque avant de pouvoir calculer la vitesse de déformation homogénéisée d'un élément, on doit calculer et stocker sa vitesse de déformation équivalente ainsi que celle de tous les éléments associés à son épaisseur. Ce procédé doit être réalisé pour tous les éléments du solide.

4.3.2.2 Homogénéisation sur le temps

Une autre solution pour stabiliser la vitesse de déformation est d'homogénéiser indépendamment chaque élément en fonction du temps.

À chaque pas de temps, ABAQUS/Explicit nous fournit l'incrément de déformation $\Delta\varepsilon$ et le pas de temps Δt . Ainsi, nous pouvons calculer la vitesse de déformation équivalente en utilisant l'équation 4.42. Cependant, le gradient en vitesse de déformation entre deux incréments de temps pouvant être important, nous choisissons de lisser l'évolution de la vitesse de déformation. La figure 4.15 présente les domaines d'homogénéisation de la vitesse de déformation par rapport au temps pour les temps t_3 et t_N .

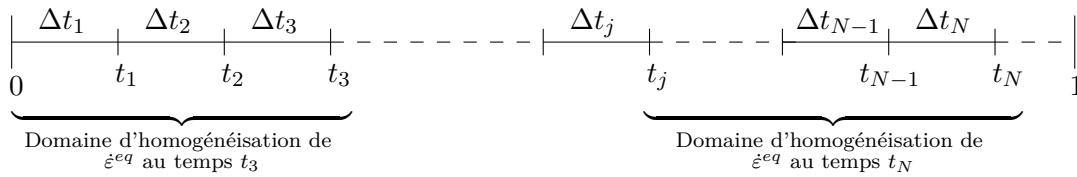


Figure 4.15 – Schématisation de la méthode d'homogénéisation sur le temps.

Pour les trois premiers pas de temps, la vitesse de déformation homogénéisée par rapport au temps $\dot{\varepsilon}_{HT}^{eq}$ est :

$$\begin{cases} \dot{\varepsilon}_{HT}^{eq}(t_1) &= \dot{\varepsilon}_{t_1}^{eq} \\ \dot{\varepsilon}_{HT}^{eq}(t_2) &= \frac{\dot{\varepsilon}_{HT}^{eq}(t_1) * \Delta t_1 + \dot{\varepsilon}_{t_2}^{eq} * \Delta t_2}{\Delta t_1 + \Delta t_2} \\ \dot{\varepsilon}_{HT}^{eq}(t_3) &= \frac{\dot{\varepsilon}_{HT}^{eq}(t_1) * \Delta t_1 + \dot{\varepsilon}_{HT}^{eq}(t_2) * \Delta t_2 + \dot{\varepsilon}_{t_3}^{eq} * \Delta t_3}{\Delta t_1 + \Delta t_2 + \Delta t_3} \end{cases} \quad (4.58)$$

Ainsi, on définit la vitesse de déformation homogénéisée sur le temps $\dot{\varepsilon}_{HT}^{eq}$ au temps t_N par la relation :

$$\dot{\varepsilon}_{HT}^{eq}(t_N) = \frac{\sum_{i=j}^{N-1} \dot{\varepsilon}_{HT_i}^{eq} * \Delta t_i + \dot{\varepsilon}_{t_N}^{eq} * \Delta t_N}{\sum_{i=j}^N \Delta t_i}, \quad (4.59)$$

où $t_N - t_j$ représente l'intervalle de temps sur lequel l'homogénéisation est faite, et t_N représente le temps actuel. Dans le cadre de cette homogénéisation, il est nécessaire de déterminer le nombre de pas de temps utilisé pour réaliser l'approximation de la vitesse de déformation. De plus, pour éviter que le calcul ne diverge trop rapidement, on suppose que l'évolution de la vitesse de déformation ne peut pas excéder une erreur critique noté ε_{crit} .

4.3.2.3 Résultats des homogénéisations

Des essais de traction et de compression uniaxiaux ont été simulés pour trois vitesses de déformation (1 s^{-1} , 10 s^{-1} et 100 s^{-1}) en utilisant les deux techniques d'homogénéisation. Dans le cas 2D, le solide est maillé avec 100 éléments CPE4R (10×10 éléments). Dans le cas 3D, on a pris 512 éléments C3D8R ($8 \times 8 \times 8$ éléments). En effet, on a remarqué que dans son appel au sous-programme *VUMAT*, ABAQUS/Explicit ne considérait que des blocs de 136 éléments par 136 éléments. Par conséquent, si l'on souhaite avoir, pour chaque élément, toute l'information nécessaire au calcul de la vitesse de déformation homogénéisée sur la géométrie, le nombre d'éléments dans l'épaisseur du matériau devra être un diviseur de 136.

Seuls les résultats des simulations 2D, pour l'élément 45, élément se trouvant au centre du solide, en comparant les deux techniques d'homogénéisation, seront présentés ici. Afin de pouvoir comparer les deux techniques d'homogénéisation en termes de temps de calcul, pour chacune des simulations réalisées, le matériau atteindra le même niveau de déformation, 100 % de déformation.

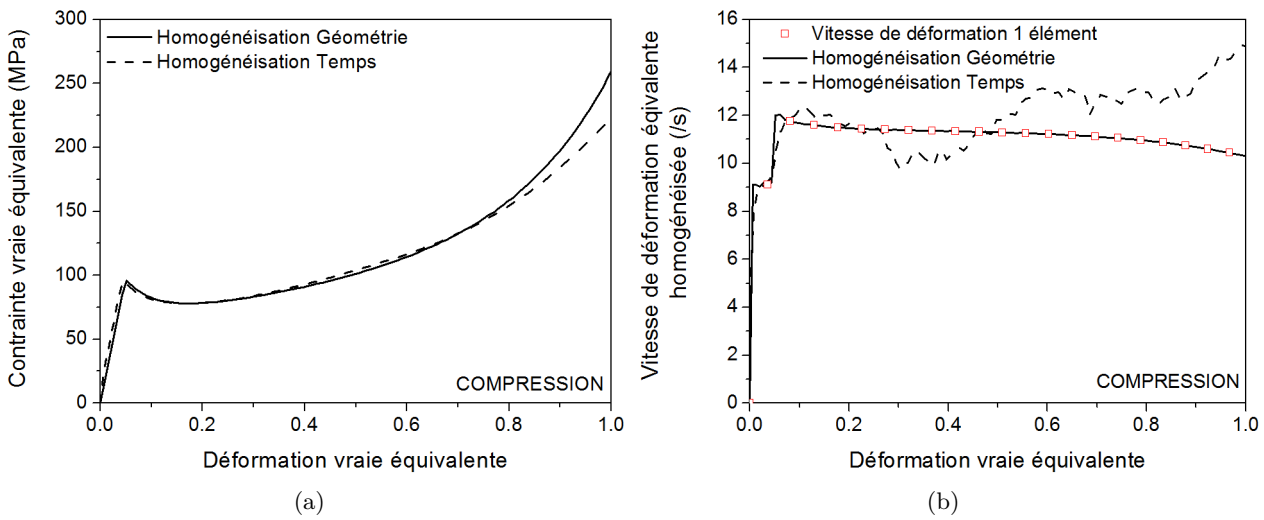


Figure 4.16 – Validation de la loi de comportement introduite dans ABAQUS/Explicit pour un essai de compression uniaxiale avec 10×10 éléments en comparant les deux techniques d'homogénéisation avec (a) contrainte vraie équivalente en fonction de la déformation vraie équivalente et (b) vitesse de déformation équivalente.

Lors des essais de compression sans homogénéisation, on a pu remarquer sur la figure 4.10(b) que la vitesse de déformation était numériquement instable. Lorsque l'on a cherché à stabiliser cette vitesse de déformation par rapport à la géométrie, on a constaté que les instabilités se compensaient sur l'épaisseur comme on peut le constater sur la figure 4.16(b), où la vitesse de déformation est égale à celle obtenue lors d'un essai de compression avec un seul élément. En revanche, lorsque l'on homogénéise la vitesse de déformation par rapport au temps, les instabilités sont atténuées, mais ne disparaissent pas. La présence d'instabilités peut expliquer la différence de comportement entre les deux techniques d'homogénéisation qui a été observée sur les courbes contrainte vraie-déformation vraie de la figure 4.16(a).

En revanche, lors d'un essai de traction 2D, on peut noter que les deux techniques d'homogénéisation permettent d'obtenir des résultats similaires comme on peut le voir sur les courbes contrainte vraie-déformation vraie présentées sur la figure 4.17(a). Cependant, on peut noter quelques instabilités de la vitesse de déformation équivalente homogénéisée, visible sur la figure 4.17(b), qui apparaissent vers 80 % de déformation dans le cas de l'homogénéisation par rapport au temps.

En comparant les figures 4.16 et 4.17, on s'aperçoit que le comportement mécanique est plus stable pour un essai de traction uniaxiale qu'en compression uniaxiale. De plus, la méthode d'homogénéisation de la vitesse de déformation sur la géométrie permet d'atténuer plus efficacement les instabilités numériques que la méthode d'homogénéisation de la vitesse de déformation sur le temps.

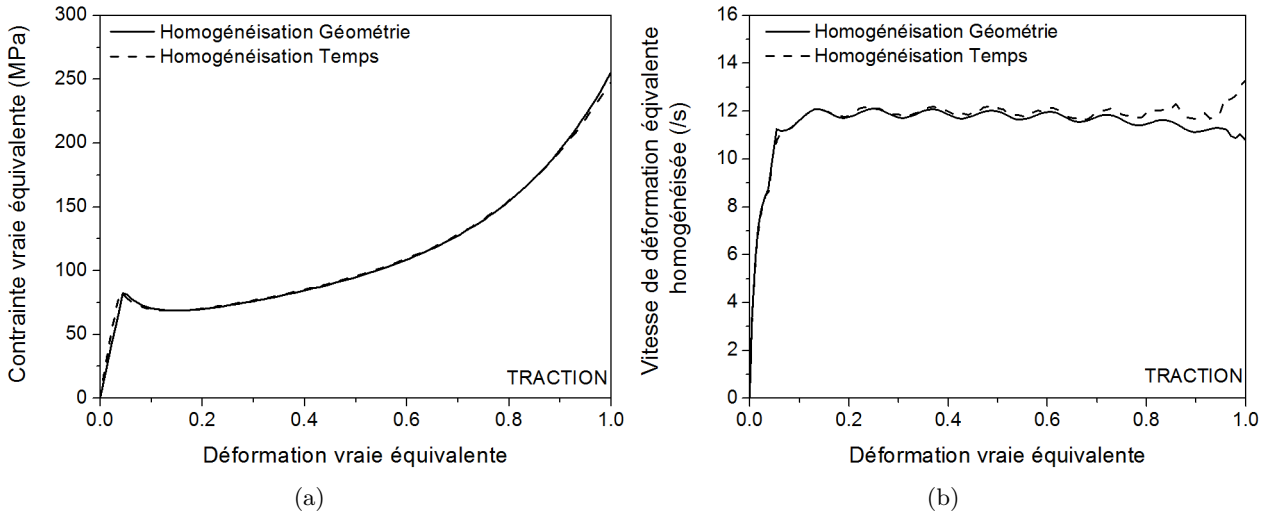


Figure 4.17 – Validation de la loi de comportement introduite dans ABAQUS/Explicit pour un essai de traction uniaxiale avec 10×10 éléments en comparant les deux techniques d’homogénéisation avec (a) contrainte vraie équivalente en fonction de la déformation vraie équivalente et (b) vitesse de déformation équivalente.

Les techniques d’homogénéisation ont été comparées en termes de comportement mécanique mais également en termes de temps de calcul. Pour cela, des essais de traction uniaxiale et de compression uniaxiale ont été simulés pour trois vitesses de déformation équivalente jusqu’à 100 % de déformation. On a ainsi pu tracer l’évolution du temps de calcul en fonction de la vitesse de déformation pour les deux techniques d’homogénéisation.

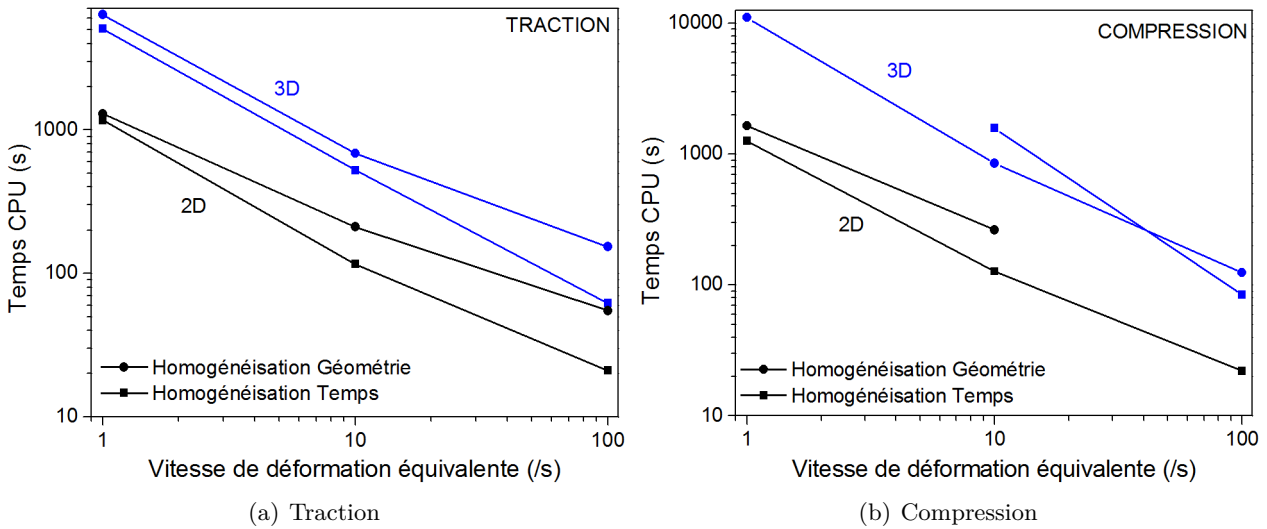


Figure 4.18 – Comparaison entre les deux techniques d’homogénéisation en termes de temps de calcul pour des essais (a) de traction uniaxiale et (b) de compression uniaxiale pour trois vitesses de déformation.

Sur la figure 4.18, on constate que les temps de calcul des simulations effectuées en homogénéisant la vitesse de déformation par rapport au temps sont plus faibles que celle réalisées en homogénéisant sur la géométrie. Cependant, pour l’essai de compression 3D à 10 s^{-1} la vitesse de déformation est très instable. Afin de pouvoir la stabiliser, un intervalle de temps conséquent a été nécessaire pour que la méthode d’homogénéisation par rapport au temps soit efficace. Ainsi, un temps de calcul plus important a été noté pour cette simulation. De plus, on constate que, pour les essais 2D et les essais

de traction 3D, l'évolution du temps de calcul en fonction de la vitesse de déformation est linéaire en double échelle logarithmique, pour l'homogénéisation par rapport au temps.

4.3.2.4 Avantages-inconvénients des deux méthodes d'homogénéisation

Chacune de ces deux techniques d'homogénéisation présente certains avantages mais également plusieurs inconvénients.

Comme on peut le voir sur les figures 4.16(b) et 4.17(b), la vitesse de déformation est plus stable en effectuant une homogénéisation sur la géométrie. En effet, les instabilités rencontrées pour l'homogénéisation sur le temps sont dues au fait que l'on choisit directement d'influencer un paramètre du modèle : le temps.

L'homogénéisation sur la géométrie présente l'avantage de donner des résultats plus stables que l'homogénéisation sur le temps. Cependant, pour pouvoir utiliser cette homogénéisation dans un autre contexte que celui de la validation de la loi de comportement sous ABAQUS/Explicit, il est nécessaire de s'assurer que certains paramètres soient respectés :

- Le solide est à section constante.
- Il faut que l'épaisseur du matériau soit dans le même sens que l'effort appliqué.
- Le nombre d'éléments dans l'épaisseur est un multiple de 136, et n'excède pas 136. En effet, pour l'analyse, ABAQUS/Explicit considère des blocs de 136 éléments par 136 éléments. Or, il est nécessaire de connaître toute l'information sur l'épaisseur pour effectuer cette homogénéisation.
- Une attention particulière devra être apportée à la numérotation des éléments.

Ainsi, seuls des essais de traction/compression sur des éprouvettes à section constante pourront être envisagés avec cette technique d'homogénéisation. Par conséquent, si l'on souhaite effectuer des essais de flexion, cisaillement ou si l'on a des géométries plus complexes, cette technique d'homogénéisation ne pourra pas être utilisée. Par conséquent, la technique d'homogénéisation sur le temps, bien que moins stable, est préférable dans la majorité des problèmes qui pourront être rencontrés. De plus, cette technique d'homogénéisation nécessite un temps de calcul moins important dans la majorité des cas.

Dans le cas de l'homogénéisation par rapport au temps, on s'affranchit de la géométrie. Par conséquent, toutes les géométries et configurations peuvent être envisagées. De plus, cette méthodologie demande moins de vérification à l'utilisateur puisqu'il n'est plus nécessaire de contrôler la numérotation des éléments, ni de s'assurer que le nombre d'éléments dans l'épaisseur soit un multiple de 136, du fait qu'il n'est plus nécessaire de connaître, à chaque instant et pour chaque élément, toute l'information des éléments constituant son épaisseur.

4.4 Validation des résultats : tests préliminaires - Cas adiabatique

La dépendance à la vitesse de déformation du matériau ayant été validée au paragraphe 4.3, on peut maintenant introduire la dépendance à la température. Pour cela, on considère que l'évolution de la température est uniquement due à l'auto-échauffement que subit le matériau lorsqu'il plastifie. Aucun autre effet thermique (convection, conduction, radiation) ne sera pris en compte ici. On suppose que 90% du travail plastique est converti en chaleur.

La prise en compte des effets de température nécessite la réalisation de quelques changements dans le modèle ABAQUS. Tout d'abord, dans le module "Step", la procédure, initialement "Dynamic, Explicit", devient "Dynamic, Temp-disp, Explicit". Cela permet de prendre en compte les effets de température (auto-échauffement, convection, conduction, radiation) dans le calcul réalisé par Abaqus. Il est également primordial d'ajouter la température comme degré de liberté aux éléments de notre objet. Ainsi dans le module "Mesh", on choisit des éléments avec un couplage température-déplacement. Ainsi, les éléments 2D et 3D sont à présent respectivement notés CPE4RT et C3D8RT.

Étant donné ce qui a été remarqué au paragraphe 4.3 sur la nature restrictive de la procédure d'homogénéisation par rapport à la géométrie, on ne réalisera ces tests qu'en homogénéisant la vitesse de déformation sur le temps.

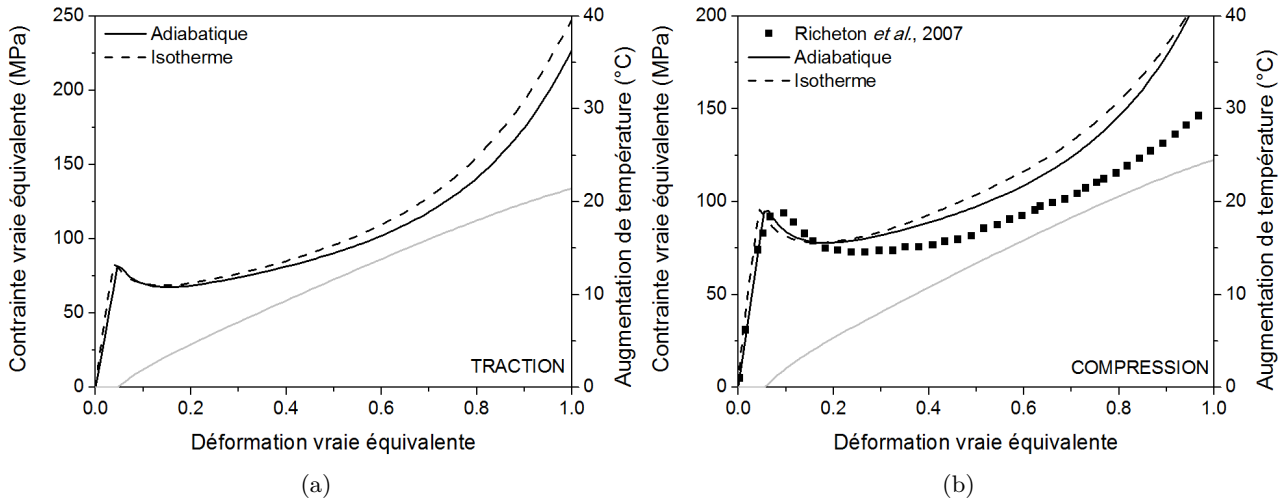


Figure 4.19 – Comparaison entre les simulations isotherme et adiabatique d'un essai 2D de (a) traction uniaxiale et de (b) compression uniaxiale en homogénéisant la vitesse de déformation par rapport au temps.

On peut noter sur la figure 4.19 que les effets d'auto-échauffement sont correctement pris en compte par ABAQUS/Explicit grâce au calcul, dans le sous-programme *VUMAT*, de l'énergie de dissipation inélastique. On remarque, que contrairement aux expériences de Arruda *et al.* [40] et Rittel [123], où la température augmente fortement durant la phase de réarrangement des chaînes polymères et diminue par la suite dans le cas d'essais quasi-statique, comme observée sur la figure 4.4, l'évolution de la température est ici progressive et se fait tout au long de la déformation irréversible du matériau. La diminution de la température, dans la phase de durcissement structural, laisse présager des effets de convection non négligeable dans le cas d'essais quasi-statique. Il sera donc important d'en tenir compte lors de la modélisation de ce type d'essai.

4.5 Conclusion

Une loi de comportement spécifique aux matériaux polymères a été introduite avec succès dans ABAQUS/Explicit à travers l'utilisation d'un sous-programme utilisateur *VUMAT*. Cette loi de comportement tient compte des dépendances à la vitesse de déformation et à la température des différentes propriétés mécaniques du matériau considéré (module d'Young, contrainte seuil, adoucissement plastique, durcissement structural...).

Dans un premier temps, les effets de température ont été négligés et seul le cas isotherme a été traité. On a pu voir qu'une discrétisation fine du solide provoquait des instabilités dans les incréments de déformations et, par conséquent, dans le calcul de la vitesse de déformation équivalente. Une instabilité sur cette donnée va entraîner une instabilité de toute la loi de comportement puisque les différentes propriétés dépendent de la vitesse de déformation. Afin de réduire ces instabilités on a proposé d'homogénéiser la vitesse de déformation équivalente en fonction de la géométrie ou en fonction du temps. Les deux cas ont été étudiés. On s'est rendu compte que, bien que la technique d'homogénéisation sur la géométrie permette d'obtenir une plus grande stabilité des résultats, elle est également extrêmement restrictive du point de vue du nombre d'éléments, de la numérotation de ces éléments, mais aussi des géométries et des essais qui peuvent être modélisés. La technique d'homogénéisation sur le temps, bien que moins stable, mais plus rapide, permet de simuler des problèmes plus complexes sans que l'utilisateur n'apporte une attention particulière à la numérotation et au nombre

d'éléments dans l'épaisseur du matériau.

Par la suite, les effets de température ont été pris en compte à travers l'auto-échauffement du matériau. Bien que l'augmentation de la température ne soit pas exactement conforme aux données expérimentales de Arruda *et al.* [40] et Rittel [123], elle permet d'avoir une estimation correcte de l'augmentation de la température au cours de la déformation plastique.

Étant donné le caractère restrictif de la méthode d'homogénéisation sur la géométrie, les prochaines simulations seront réalisées en effectuant une homogénéisation de la vitesse de déformation en fonction du temps.

Chapitre 5

Sollicitations des matériaux polymères en grandes déformations : confrontation prévisions numériques - résultats expérimentaux

La loi de comportement décrite au chapitre 4 a été introduite avec succès dans ABAQUS/Explicit à travers un sous-programme utilisateur *VUMAT*. Elle a été validée sur des géométries 2D et 3D simples pour des essais de traction et compression uniaxiales à vitesse de déformation constante.

La modélisation de procédés de mise en forme, de sollicitations de structures..., est d'un grand intérêt aussi bien pour les chercheurs que pour les industriels. Le principal enjeu de la simulation numérique est de prévoir le comportement d'un système et sa tenue lorsque celui-ci est soumis à une sollicitation ou à un ensemble de sollicitations. Ainsi, la déformation du système, les contraintes, l'élévation de température, l'énergie emmagasinée par le système..., sont autant de paramètres qui devront être analysés pour s'assurer que les prévisions numériques sont en accord avec les résultats expérimentaux.

Dans ce chapitre, nous proposons de valider les capacités prévisionnelles du modèle que nous avons introduit dans ABAQUS/Explicit en le confrontant à deux types d'essais représentatifs issus de la littérature [149, 150]. Après avoir identifié les propriétés mécaniques relatives au polymère utilisé par Ames et ses collaborateurs [149, 150], un essai d'impact et un essai de mise en forme cruciforme à froid seront simulés. Une étude de sensibilité à quelques paramètres (mécanique, thermique, géométrique et mathématique) sera également présentée pour chacun de ces essais. Les différentes simulations ont été effectuées avec ABAQUS/Explicit.

5.1 Propriétés du matériau étudié

Le matériau considéré dans cette étude est un polycarbonate (PC) présent dans les travaux de Ames *et al.* [149] avec lequel ils ont réalisé des essais d'impact et de mise en forme cruciforme. Afin de caractériser ce matériau, ils ont effectué des tests de compression à plusieurs vitesses de déformation constantes (0.001 s^{-1} , 0.01 s^{-1} , 0.1 s^{-1} , 0.5 s^{-1} et 3400 s^{-1}) et à quatre températures (25°C , 70°C , 105°C et 130°C). Les courbes contrainte vraie-déformation vraie, fournies dans les travaux de Ames *et al.* [149], nous ont permis de déterminer les différents paramètres de la loi et les propriétés matériau nécessaire à l'utilisation de notre modèle.

Les paramètres du modèle ont été identifiés en ajustant les résultats numériques avec les courbes expérimentales contrainte vraie-déformation vraie fournies par Ames *et al.* [149]. La partie élastique des courbes contrainte vraie-déformation vraie a été utilisée pour identifier les différents paramètres élastiques et calibrer les paramètres de Weibull. La dépendance à la vitesse de déformation et à la température du seuil d'écoulement du PC a été obtenue en calibrant les paramètres du modèle coopératif [65] sur les données expérimentales. Les propriétés matériau et les paramètres du modèle nécessaire à l'utilisation de la loi de comportement sont listés dans le tableau 5.1.

Chapitre 5. Sollicitations des matériaux polymères en grandes déformations : confrontation prévisions numériques - résultats expérimentaux

		Issus des courbes expérimentales Ames <i>et al.</i> [149]	Identifiés à partir des essais de compression	Calibrés sur les données expérimentales
Propriétés matériau	ρ (kg m ⁻³)	1200		
	Γ_0 (W m ⁻¹ K ⁻¹)	0.187		
	Γ_1	0.22		
	c_0 (J kg ⁻¹ K ⁻¹)	1630		
	c_1 (J kg ⁻¹ K ⁻²)	3.6		
	α (K ⁻¹)	6.50×10^{-5}		
	ν_0	0.37		
	ν_c			0.4999
	w			11
	ΔT (°C)			10
	β	0.8		
Comportement élastique	$\dot{\varepsilon}^{ref}$ (s ⁻¹)		1	
	E_1^{ref} (MPa)		3400	
	E_2^{ref} (MPa)		920	
	E_3^{ref} (MPa)		20	
	T_1^{ref} (K)		195	
	T_2^{ref} (K)		421	
	T_3^{ref} (K)		436	
	m_1			1
	m_2			125
	m_3			5
	s		0.011	
Loi d'écoulement	ΔH_β (J mol ⁻¹)	87923		
	α_p	0.116		
	n		6.5	
	V_a (m ³)		5.32×10^{-28}	
	$\tau_i(0)$ (MPa)		76.59	
	m (MPa K ⁻¹)		0.133	
	$\dot{\gamma}_0$ (s ⁻¹)		3.32×10^{16}	
	c_1^g			16.19
	c_2^g (°C)			55.6
Adoucissement plastique	τ_{ps}/τ_i		0.45	
	h (MPa s ⁻¹)		120	
Durcissement structural	$C_R(0)$ (MPa)			44.208
	a (MPa K ⁻¹)			0.0968
	$N(0)$			1.949
	b (K ⁻¹)			2.51×10^{-3}

Tableau 5.1 – Propriétés matériau et paramètres du modèle utilisés pour décrire le comportement thermomécanique du polycarbonate (PC) étudié par Ames *et al.* [149].

Certaines propriétés matériau du PC utilisé dans cette étude ainsi que quelques propriétés mécaniques ont été déterminées par Ames *et al.* [149]. Ces dernières concernent la masse volumique, les propriétés thermiques du PC (chaleur spécifique, conductivité thermique, coefficient d'expansion thermique, le coefficient de Taylor-Quinney β en d'autres termes le taux de travail converti en chaleur) ainsi que le coefficient de Poisson dans la région vitreuse, l'énergie d'activation de la relaxation β et le paramètre de sensibilité à la pression du PC.

La chaleur spécifique et la conductivité thermique dépendent de la température. Pour des températures T inférieures à la température de transition vitreuse T_g et en accord avec van Krevelen [145] et Bicerano [144], la conductivité thermique Γ et la chaleur spécifique c_p suivent les relations empiriques :

$$\begin{cases} c_p = c_0 - c_1(T - T_g) & \text{si } T < T_g \\ \Gamma = \Gamma_0 \left(\frac{T}{T_g} \right)^{\Gamma_1} & \text{si } T < T_g \end{cases} \quad (5.1)$$

La comparaison entre les données expérimentales de Ames *et al.* [149] et le modèle numérique est présentée sur la figure 5.1 pour une gamme de températures comprises entre 25 °C et 130 °C et une gamme de vitesses de déformation comprises entre 10^{-3} s^{-1} et 10^{-1} s^{-1} . Pour les essais de compression quasi-statique, on peut noter une bonne adéquation entre les résultats expérimentaux et les prévisions numériques.

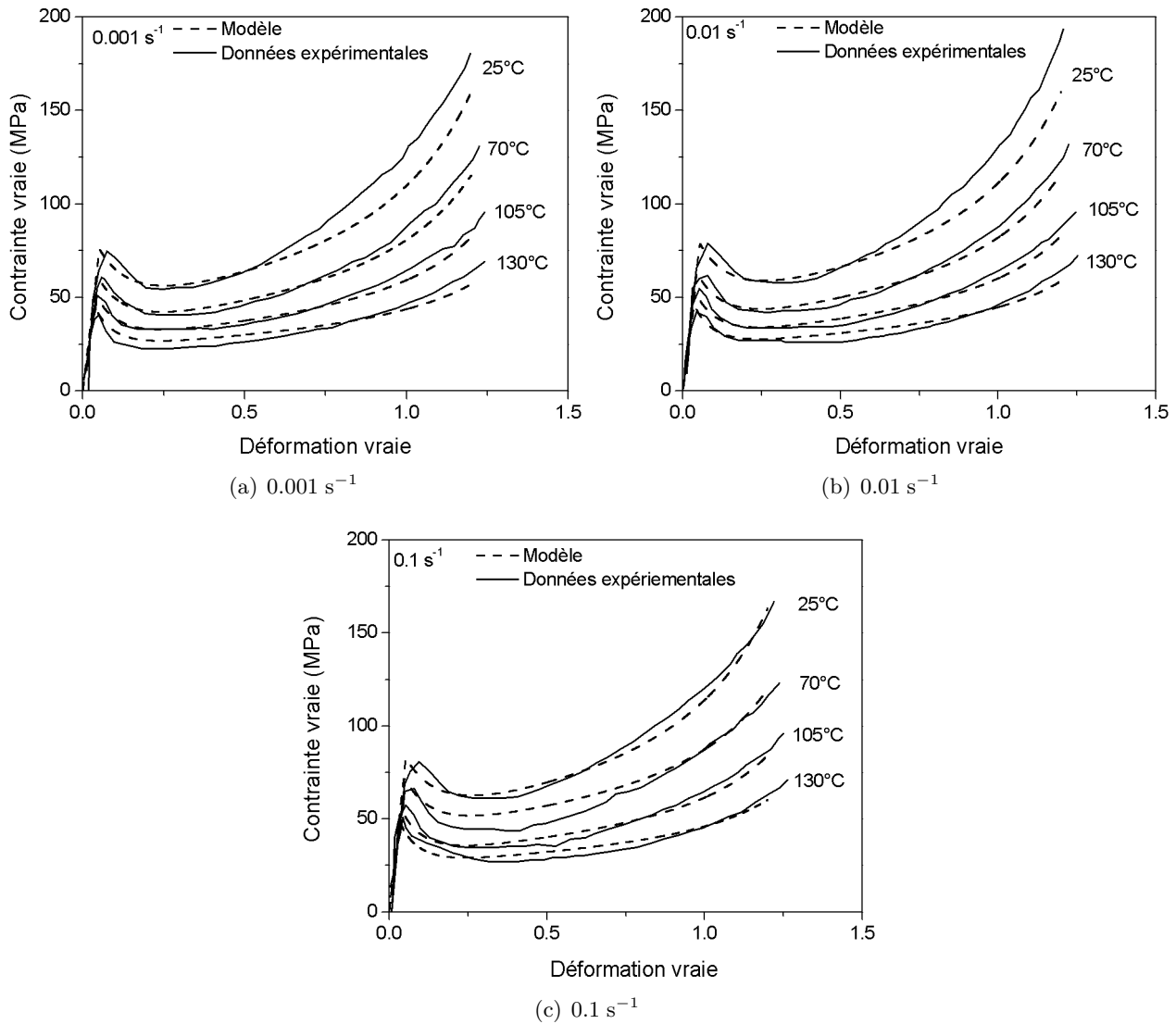


Figure 5.1 – Comparaison entre le modèle constitutif et les données expérimentales de Ames *et al.* [149] pour une gamme de températures allant de 25 °C à 130 °C et une gamme de vitesses de déformation allant de 10^{-3} s^{-1} à 10^{-1} s^{-1} .

Au cours d'essais effectués à de grandes vitesses de déformation, une forte augmentation de la température est observée. Garg *et al.* [151] ont réalisé des essais sur un PC à moyennes et grandes

vitesse de déformation en enregistrant l'élévation de température générée au cours de la déformation plastique du matériau. La figure 5.2(a) présente les résultats de l'ajustement du modèle sur les courbes contrainte vraie-déformation vraie du PC étudié par Garg *et al.* [151] à des vitesses de déformation de 0.5 s^{-1} et 3400 s^{-1} et à une température initiale de 25°C . L'augmentation de la température de surface de ces essais est présentée sur la figure 5.2(b). On peut noter, sur la figure 5.2(b), une forte différence entre l'augmentation de température expérimentale et celle prévue numériquement. Ainsi, une valeur de 0.8 du facteur de Taylor-Quinney est peut-être sous estimée.

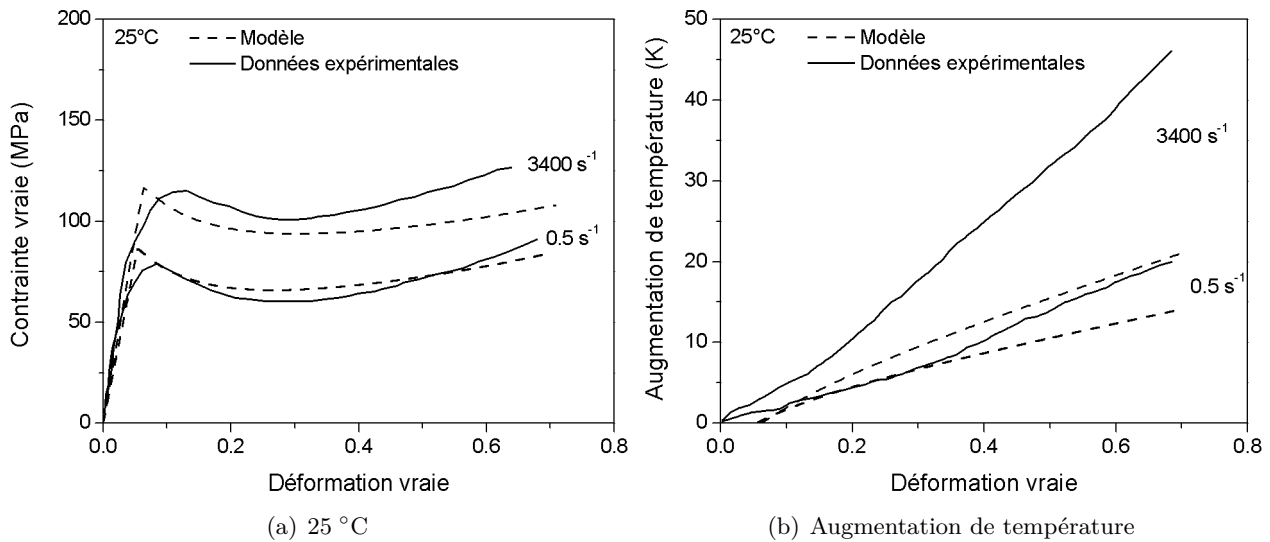


Figure 5.2 – (a) Comparaison entre le modèle constitutif et les données expérimentales de Garg *et al.* [151] à une vitesse de déformation de 0.5 s^{-1} et 3400 s^{-1} et une température initiale de 25°C . (b) Augmentation de la température de surface correspond aux deux essais de compression.

On peut noter, sur la figure 5.1, que le modèle utilisé décrit convenablement le comportement thermomécanique en grandes déformations du PC pour de larges gammes de températures et de vitesses de déformation. Cependant, sur la figure 5.2, on peut noter qu'il existe une disparité dans la prévision numérique de la réponse thermomécanique du PC pour de grandes déformations. Un résultat similaire a été obtenu par Richeton *et al.* [24] et Ames *et al.* [149] étant donné que le modèle a été calibré sur les données expérimentales obtenues en quasi-statique. Le modèle reproduit convenablement les principales caractéristiques de la réponse mécanique macroscopique des matériaux polymères :

- la dépendance à la vitesse de déformation et à la température du module élastique,
- la dépendance à la vitesse de déformation et à la température de la contrainte seuil,
- l'adoucissement plastique qui est dû à une réorganisation des segments de chaînes polymères,
- l'important durcissement structural du matériau dû à un alignement des segments de chaînes polymères en grandes déformations,
- l'augmentation de température due à la déformation plastique.

Cependant, bien que correct, l'identification des paramètres n'est pas optimale. En effet, il a été noté des disparités dans la prévision de la réponse mécanique du PC à 3400 s^{-1} . De plus, comme on a pu le voir sur la figure 5.2, le modèle sous estime de 50 % l'augmentation de température pour une vitesse de déformation de 3400 s^{-1} . D'autre part, le comportement mécanique du matériau n'a pas été validé pour des températures supérieures à la température de transition vitreuse T_g .

5.2 Simulation de l'essai d'impact normal d'une plaque circulaire de polycarbonate par un projectile cylindrique à pointe sphérique

Nous proposons, tout d'abord, de valider les capacités de prévision de notre modèle sur un essai d'impact normal d'une plaque circulaire de polycarbonate (PC) par un projectile à géométrie cylindrique à pointe sphérique. Cet essai, issu de la littérature [149], a été réalisé sur le PC dont les paramètres matériau ont été déterminés au paragraphe 5.1. Le test d'impact correspond à un essai sollicitant le matériau à de grandes vitesses de déformation.

5.2.1 Procédure expérimentale de Ames *et al.* [149]

Ames *et al.* [149] ont réalisé un test d'impact normal sur une plaque polycarbonate circulaire de 203.2 mm de diamètre et 5.334 mm d'épaisseur. La plaque est fixée dans une tour de chute Instron-Dynatup à l'aide de plusieurs boulons métalliques fixés à espaces réguliers à la périphérie de la plaque. La plaque est ensuite soumise à un impact normal à l'aide d'un projectile cylindrique à pointe sphérique en acier. Le projectile, d'une masse de 80 kg, impacte la plaque polymère à une vitesse de 3.6 m s^{-1} . La vitesse d'impact du projectile est définie par sa hauteur de chute. Celle-ci a été choisie par les auteurs de telle sorte qu'aucune fracture de la surface de la plaque polymère ne soit observée à la fin de l'essai d'impact. Ainsi, en grandes déformations, la plaque se déforme plastiquement sans aucune fracture de sa surface.

L'enregistrement de la force du projectile durant l'essai ainsi que l'analyse de la déformée à l'issue du test d'impact vont nous permettre de comparer les résultats de nos simulations numériques avec les données expérimentales de Ames *et al.* [149].

5.2.2 Géométrie et hypothèses de la simulation

Le problème que l'on cherche à modéliser (impact normal d'une plaque polymère circulaire par un projectile cylindrique à pointe sphérique) présente une symétrie de révolution. Ainsi, l'essai d'impact sera modélisé par une géométrie axisymétrique comme illustré sur la figure 5.3. En accord avec l'expérience menée par Ames *et al.* [149], le temps d'analyse de la simulation comprend la chute du projectile sur la plaque polymère ainsi que le retour de celle-ci à un état d'équilibre après le retrait du projectile.

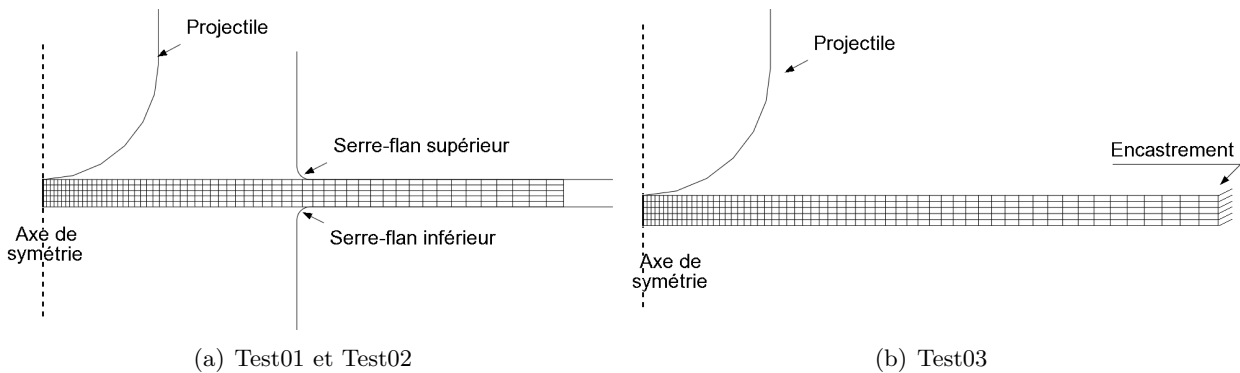


Figure 5.3 – Modèles Éléments Finis utilisés lors de l'analyse thermomécanique de l'essai normal d'impact d'une plaque circulaire par un projectile à géométrie sphérique.

En accord avec les expériences, la plaque, définie comme étant un objet déformable, mesure 5.334 mm d'épaisseur et 101.6 mm de rayon. Cette longueur correspond au rayon de la plaque en accord avec les conditions d'axisymétrie. Elle est maillée avec 300 éléments CAX4RT, disponibles dans la bibliothèque d'éléments d'ABAQUS/Explicit. Les éléments CAX4RT sont des éléments axisymétriques à 4 nœuds à intégration réduite avec un contrôle du phénomène de sablier permettant un couplage thermomécanique. Le maillage de la plaque est également visible sur la figure 5.3.

Le projectile à géométrie cylindrique à pointe sphérique est modélisé par un corps rigide d'une masse de 80 kg. On suppose que la base du projectile a un rayon de 22.5 mm. Il impacte la plaque à une vitesse de 3.6 m s^{-1} . Le contact projectile/polymère est supposé sans frottement.

Lors de l'expérience, des boulons métalliques ont été utilisés pour maintenir en place la plaque dans la machine d'essai. N'ayant aucune donnée sur les conditions de serrage, nous étudierons trois conditions aux limites. Tout d'abord, on suppose que les boulons sont modélisés par deux serre-flans, inférieur et supérieur comme l'illustre la figure 5.3(a). Les serre-flans sont définis comme étant des surfaces rigides. Dans un premier test, noté "Test01", les deux serre-flans sont encastrés. Ainsi, la plaque est maintenue serrée sans aucune possibilité de mouvement. Dans un second test, noté "Test02", le serre-flan inférieur est encastré et on applique une force de 7 kN sur le serre-flan supérieur. Cette valeur a été déterminée arbitrairement au vue des différentes simulations effectuées. L'application d'une force sur le serre-flan supérieur octroie à la plaque polymère une liberté de mouvement lui permettant un léger mouvement de rotation dans le plan $(O, \vec{x}, \vec{y})$. Le contact entre les serre-flans, représentés par des surfaces rigides, et la plaque PC est modélisé en utilisant un fort coefficient de frottement de Coulomb de 0.75. Ainsi, sous l'effet de l'impact du projectile, le glissement de la plaque sous les serre-flans reste limité. Dans un troisième modèle, noté "Test03", nous choisissons de modéliser les boulons de serrage par l'encastrement du bord de la plaque. Ainsi, les serre-flans disparaissent. Le modèle Éléments Finis associé au modèle "Test03" est représenté sur la figure 5.3(b).

Le principal intérêt de réaliser ces trois simulations est de comprendre comment les différentes façons de modéliser le serrage de la feuille par des boulons influencent la déformée de la plaque, la répartition et le niveau d'efforts, de contraintes, de température... Une coupe de la forme déformée de la plaque après l'impact est présentée sur la figure 5.4.

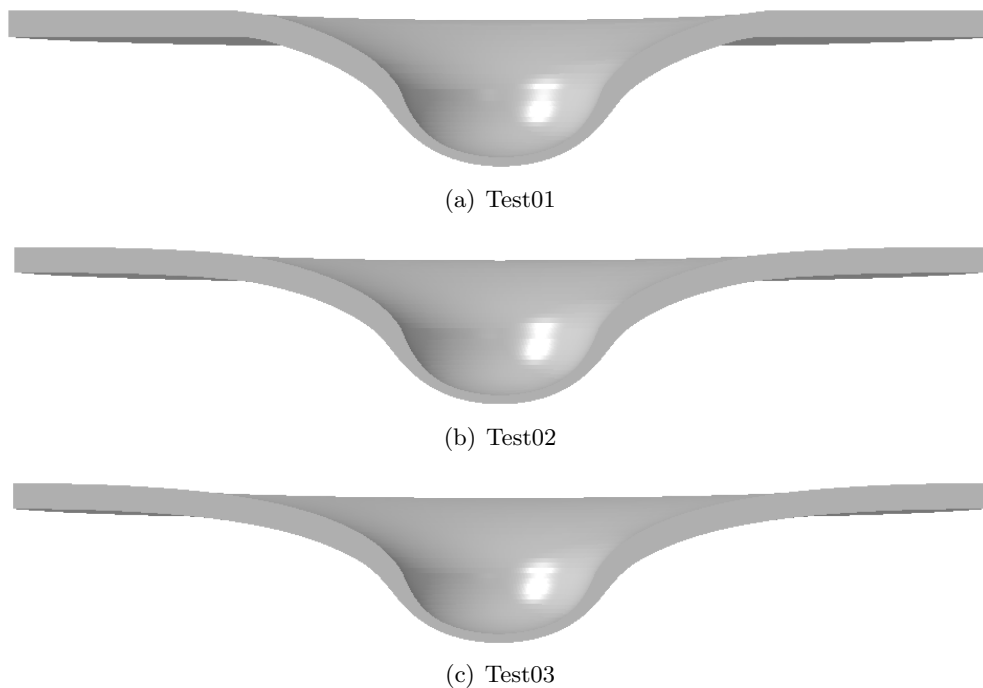


Figure 5.4 – Prévisions numériques de la forme finale de la plaque après impact pour chacune des trois conditions aux limites.

On peut noter, sur la figure 5.4(b), une légère inclinaison de la plaque sous les serre-flans pour le Test02, contrairement au Test01 où la plaque n'a subi aucun mouvement de rotation entre les serre-flans. Pour la simulation Test03, on peut noter que l'inclinaison de la plaque est beaucoup plus importante due à la présence d'un encastrement en remplacement des serre-flans.

Des tests préliminaires, réalisés sans homogénéisation de la vitesse de déformation, ont montré qu'une distorsion excessive des éléments apparaissait sous le poinçon, au bout d'un certain temps. De

plus, nous avons pu noter que, localement, la vitesse de déformation dépassait 10000 s^{-1} ce qui nous a paru irréaliste. Ainsi, afin de stabiliser le calcul, nous homogénéisons la vitesse de déformation par rapport au temps. L'intervalle de temps sur lequel la méthode d'homogénéisation est réalisée est de deux pas de temps (en se référant à l'équation 4.59, $N = j + 2$).

5.2.3 Réponse mécanique du projectile

La réponse mécanique du projectile obtenue à l'issue des différentes simulations numériques est comparée à celle mesurée expérimentalement par Ames *et al.* [149]. Les résultats de cette comparaison sont visibles sur la figure 5.5.

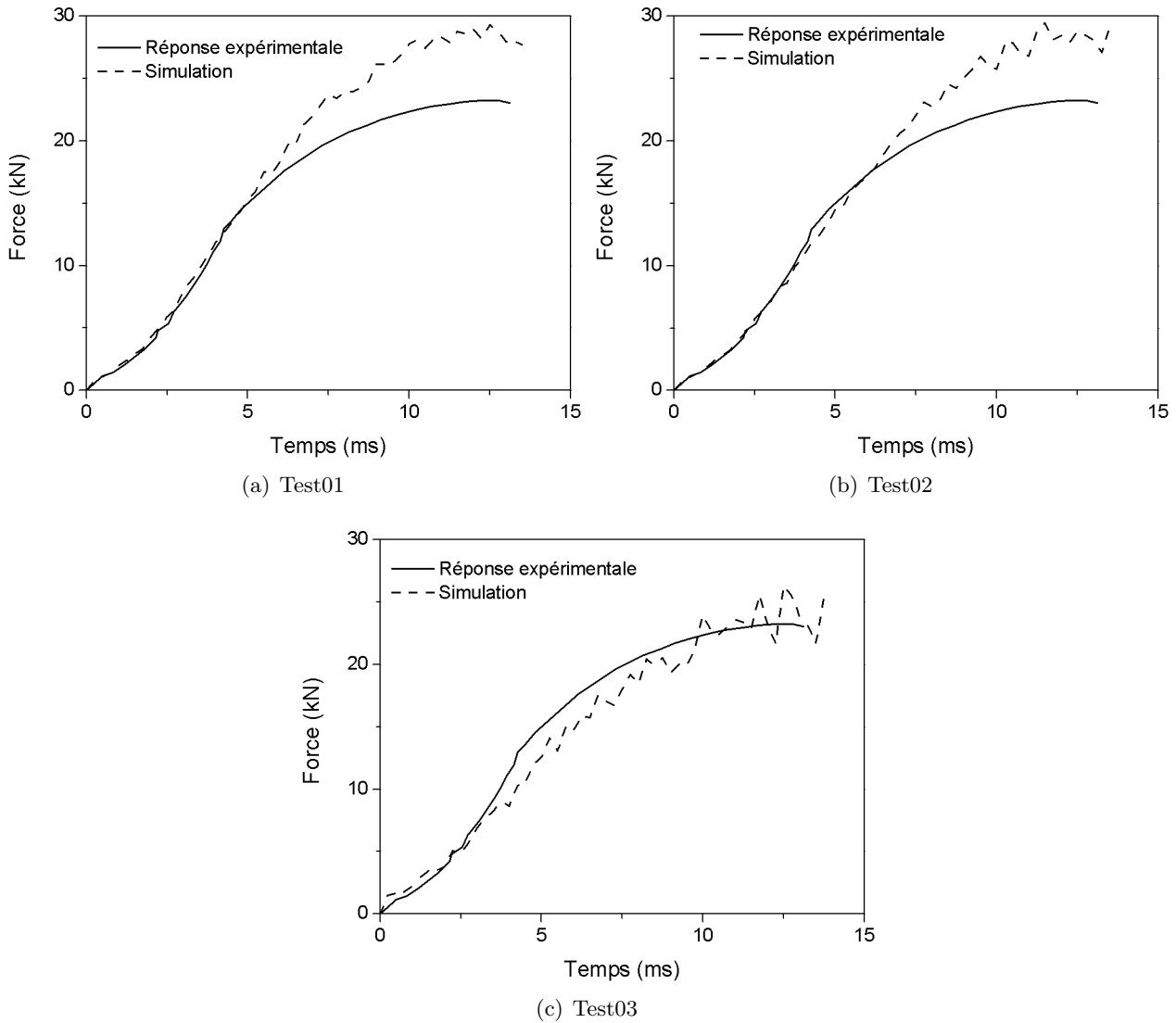


Figure 5.5 – Courbes Force-Temps correspondant à la réponse mécanique du projectile. Comparaison entre les réponses numériques prévues par les simulations numériques et la réponse expérimentale mesurée par Ames *et al.* [149].

La réponse mécanique du projectile, entre les simulations numériques Test01 et Test02, est similaire. On constate qu'au début de l'essai les réponses numériques et expérimentale concordent. Cependant, vers 6 ms, la réponse numérique devient supérieure à la réponse expérimentale. Le projectile s'est alors déplacé d'environ 24 mm (le déplacement maximal du projectile est de 36 mm), soit les deux-tiers de son déplacement maximal. À cet instant, le projectile a une vitesse de 2.7 ms^{-1} , soit 75 % de sa vitesse d'impact initiale. À 13 ms, à la fin de l'impact du projectile, on observe une différence de 3 kN entre

les réponses mécaniques numériques et expérimentale.

La courbe force-temps de la simulation Test03 présente une meilleure concordance avec la réponse expérimentale du projectile. Ainsi, la réponse mécanique du projectile au centre de la plaque est fortement dépendante des conditions de maintien de la plaque dans la machine d'essai. Au vue des résultats des courbes force-temps présentées sur la figure 5.5, il semblerait que la modélisation des boulons de serrage s'apparente d'avantage à un encastrement du bord de la plaque qu'au maintien de la plaque sur une large portion.

5.2.4 Étude de la déformée de la plaque

Le profil déformé de la plaque polycarbonate, prévu par la simulation numérique, a été tracé et comparé aux résultats expérimentaux provenant des travaux de Ames *et al.* [149]. Deux instants sont considérés. Tout d'abord, on s'intéresse à la déformation de la plaque à la fin de l'impact du projectile. Ensuite, en considérant que le matériau se décharge de manière élastique linéaire, on analysera le profil déformé de la plaque à la fin de la recouvrance, lorsque l'énergie élastique emmagasinée pendant l'impact sera totalement restituée.

Sur la figure 5.6, on compare le profil déformé, obtenu à la fin de l'impact du projectile, avec le profil expérimental.

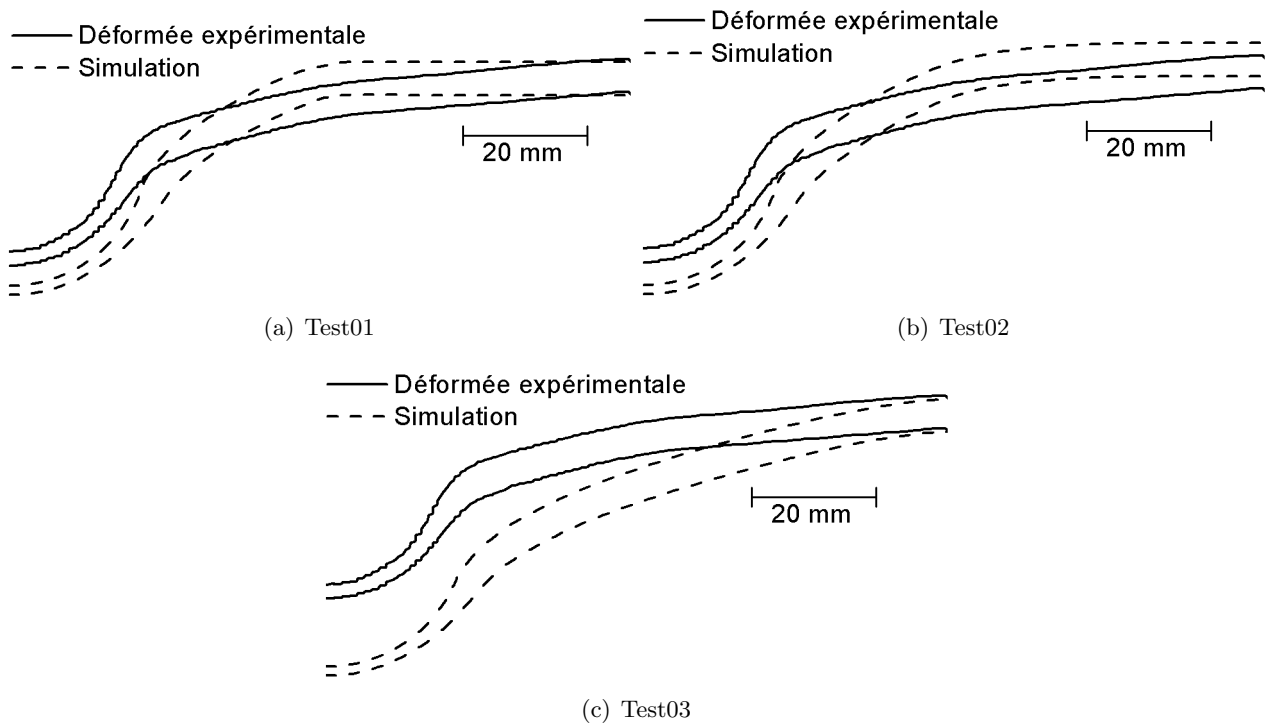


Figure 5.6 – Comparaison entre le profil déformé expérimental issu des travaux de Ames *et al.* [149] et le profil déformé prévu par les simulations numériques à la fin de l'impact du projectile.

On constate que la déformation est très importante sous le projectile. On peut noter que les différentes conditions aux limites utilisées pour modéliser les boulons de serrage jouent un rôle important sur le déplacement de la plaque. Elles influencent non seulement le déplacement au centre de la plaque mais aussi le déplacement du brin libre. Ce phénomène est d'autant plus visible que la surface de plaque restreinte par les outillages (serre-flans) est faible. Ainsi, moins les outillages (serre-flans) restreignent la plaque, plus son déplacement vertical, dû à l'impact du projectile, sera important. Au vue des résultats de la comparaison des profils déformés présentés sur la figure 5.6, il n'est pas incohérent de penser que le profil déformé, mesuré par Ames *et al.* [149], a été obtenu à l'issue de la recouvrance

5.2 Simulation de l'essai d'impact normal d'une plaque circulaire de polycarbonate par un projectile cylindrique à pointe sphérique

du matériau suite au retrait du projectile. Ainsi, afin de pouvoir comparer la prévision numérique avec les résultats expérimentaux, on considère que le matériau se décharge de manière élastique linéaire. La comparaison entre la prévision numérique des profils déformés, pour les trois simulations effectuées, et le profil déformé expérimental est présenté sur la figure 5.7.

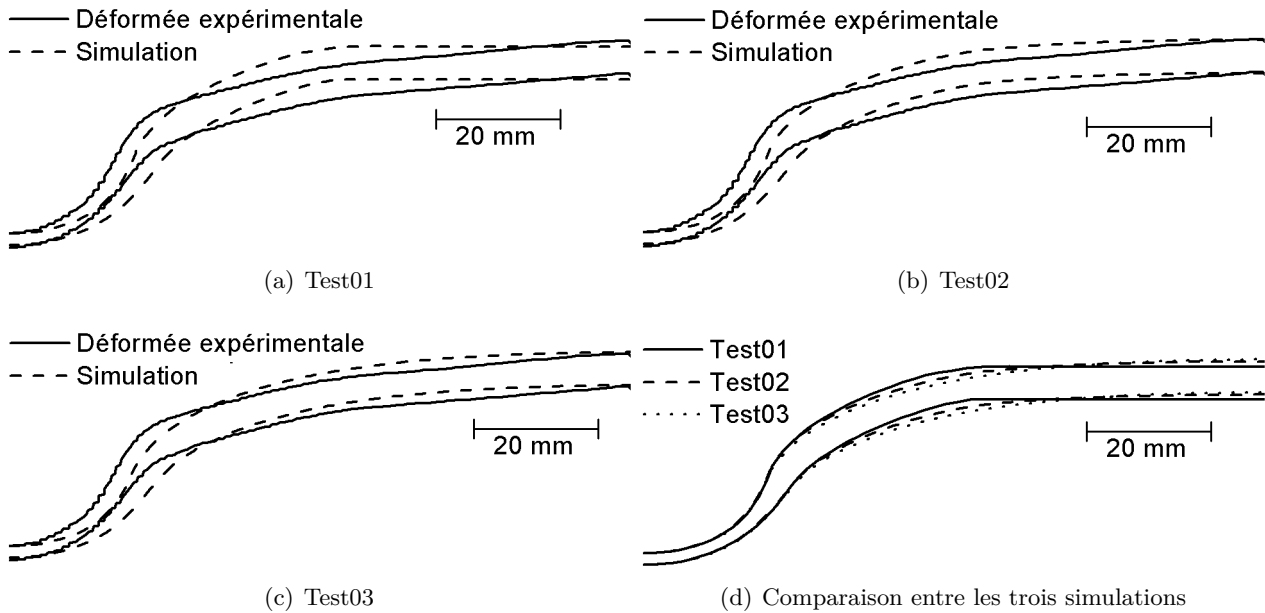


Figure 5.7 – Comparaison entre le profil déformé expérimental issu des travaux de Ames *et al.* [149] et le profil déformé prévu par les simulations numériques à la fin de la recouvrance de la plaque.

Un important retour élastique de la plaque peut être identifié sous le projectile et au niveau du brin libre si l'on compare les figures 5.6 et 5.7. La prévision numérique obtenue à l'issue de la recouvrance du matériau (figure 5.7) présente une meilleure adéquation avec les résultats expérimentaux provenant des travaux de Ames *et al.* [149] que les résultats présentés à la fin de l'impact du projectile (figure 5.6).

Les profils déformés obtenus à l'issue des simulations numériques et le profil expérimental sont comparés sur les figures 5.7(a), (b) et (c). Pour les trois simulations numériques, une concordance acceptable est trouvée entre simulations numériques et résultat expérimental. Pour le Test01, on constate, sur la figure 5.7(a), que, entre les serre-flans, la plaque est bloquée sans aucune possibilité de mouvement. Or, si on étudie le profil déformé expérimental, on constate une inclinaison de la plaque entre les serre-flans. Ainsi, la condition d'encastrement du serre-flan supérieur ne correspond pas à la réalité expérimentale. Dans le cas où une force de 7 kN est appliquée sur le serre-flan supérieur (figure 5.7(b)) ou dans le cas où on remplace les serre-flans par un encastrement du bord de la plaque (figure 5.7(c)), on constate que celle-ci acquiert une liberté de mouvement entre les serre-flans lui permettant ainsi de s'incliner sous l'effet de l'impact du projectile. Le profil déformé des trois simulations est comparé sur la figure 5.7(d). La principale différence entre les trois simulations numériques, pour le profil déformé, se situe sous les serre-flans et au niveau du brin libre de la plaque. Sous le projectile, les trois profils déformés se superposent.

5.2.5 Déformation plastique de la plaque

La distribution de la déformation plastique équivalente de la plaque déformée est présentée sur la figure 5.8 pour les trois simulations numériques effectuées.

Pour les trois tests, la plaque déformée présente un champ de déformation plastique similaire : une forte déformation plastique sous le projectile et une déformation plastique nulle entre les serre-flans

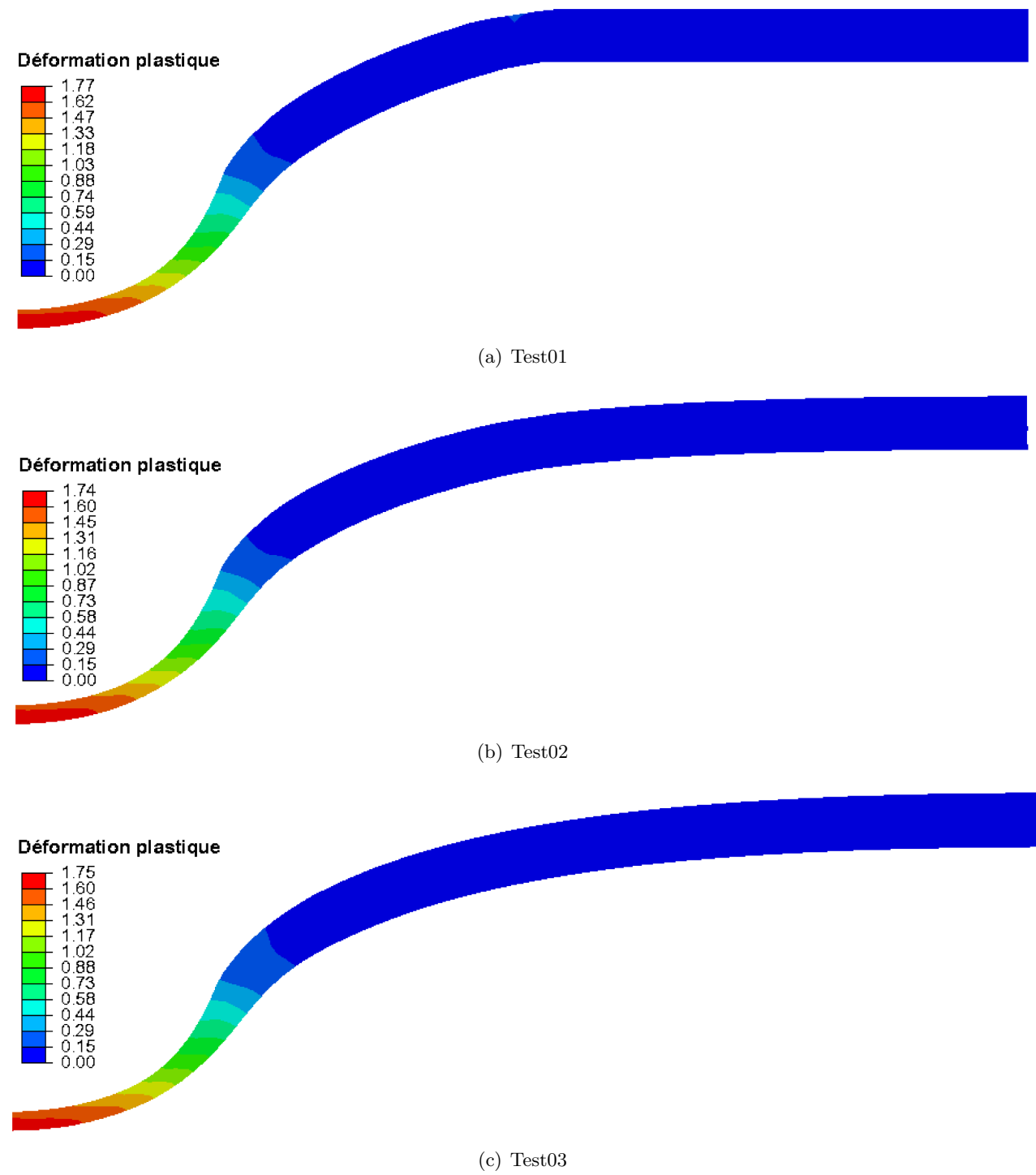


Figure 5.8 – Carte des déformations plastiques de la plaque déformée obtenue à la fin de la recouvrance.

et au niveau de l'encastrement de la plaque. Pour la simulation Test01, on notera toutefois une légère déformation plastique, au niveau de la fibre supérieure, à la fin du contact plaque/serre-flan. Pour les trois simulations numériques, le niveau de déformation plastique est similaire. Cependant, on pourra noter que lorsque la plaque n'est pas encastree, une plus faible déformation plastique de la plaque est notée sous le projectile.

5.2.6 Profil de température dans l'épaisseur de la plaque

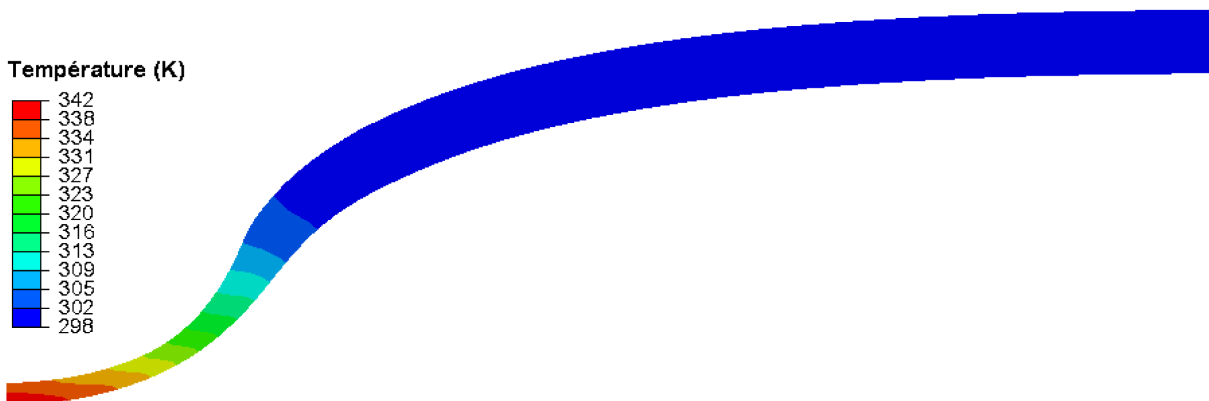
La distribution de température dans l'épaisseur de la plaque déformée est présentée sur la figure 5.9 pour les trois simulations effectuées. Nous rappelons que l'essai est supposé adiabatique avec un coefficient de Taylor-Quinney de 0.8 en accord avec Ames *et al.* [149].



(a) Test01



(b) Test02



(c) Test03

Figure 5.9 – Carte de températures de la plaque déformée obtenue à la fin de la recouvrance.

La plaque présente le même profil de température pour les trois simulations effectuées. On observe une forte augmentation de température de l'ordre de 43 °C pour le Test01, 42 °C pour le Test02 et le Test03 sous le projectile résultat d'un fort auto-échauffement dû à une grande déformation plastique. Entre les serre-flans et au niveau de l'encastrement, la plaque ne présentant aucune déformation plastique, aucune augmentation de température n'est notée.

5.2.7 Paramètres influençant l'essai d'impact

On propose d'étudier l'influence de trois paramètres (diamètre du projectile, vitesse d'impact et température de la plaque polymère) sur le comportement de la plaque polymère au cours d'un essai d'impact normal. Pour chacun de ces paramètres, trois valeurs seront étudiées permettant ainsi d'avoir une idée de l'évolution de différentes grandeurs mécaniques (déformation plastique, température, réponse mécanique du projectile...).

On considère que la plaque polymère est encastree à son extrémité. Par conséquent, le modèle utilisé correspond au Test03. On étudiera l'influence de chacun de ces paramètres sur les courbes force-déplacement et le profil déformé. On s'intéressera également à l'augmentation de température ainsi qu'à la déformation plastique maximale à la fin de l'essai d'impact.

5.2.7.1 Diamètre du projectile

Trois diamètres de projectile sont étudiés (17.5, 20 et 22.5 mm). Le diamètre de 22.5 mm correspond au modèle Test03. La température de la feuille est de 25 °C. La vitesse d'impact est de 3.6 m s⁻¹. On notera Test04 le modèle pour lequel le diamètre du projectile est de 20 mm et Test05 le modèle pour lequel le diamètre du projectile est de 17.5 mm.

Un raffinement du maillage de la plaque a été nécessaire lorsque l'on a diminuer le diamètre du projectile. Cela a eu pour effet une meilleure prise en compte du contact plaque/projectile au cours de l'essai d'impact.

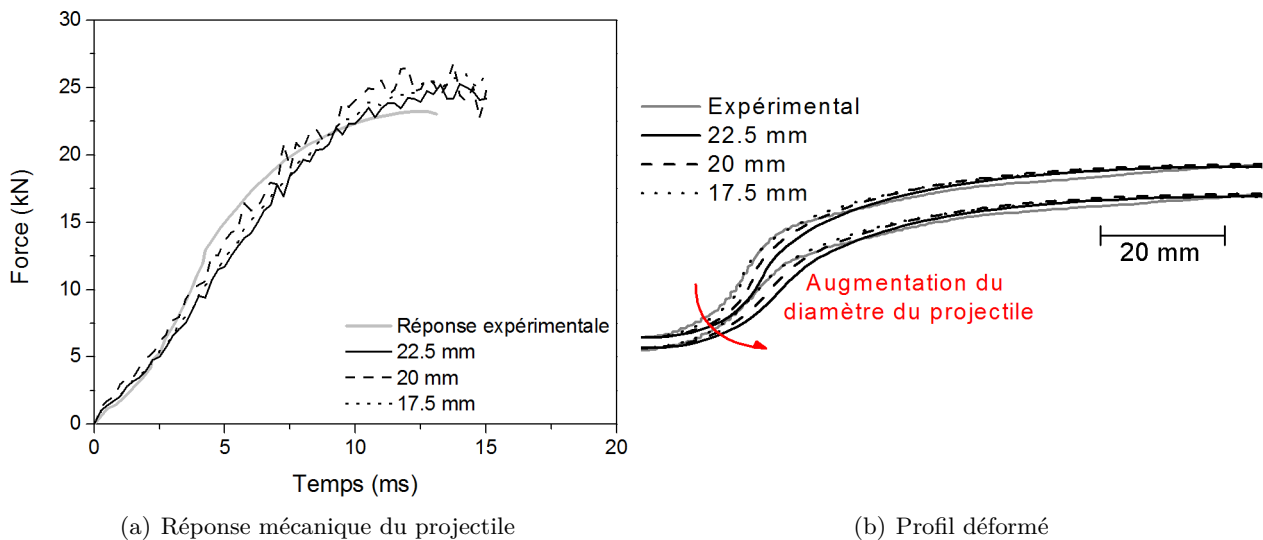


Figure 5.10 – (a) Évolution de la réponse mécanique du projectile en fonction du diamètre du projectile. (b) Évolution du profil déformé en fonction du diamètre du projectile. La vitesse d'impact est de 3.6 m s⁻¹. La température de la plaque est de 25 °C.

La figure 5.10(a) présente la réponse mécanique du projectile pour les trois valeurs de diamètres choisies. On peut noter que le diamètre du projectile n'a que peu d'influence sur la réponse mécanique du projectile. On peut noter une bonne corrélation entre les données expérimentales et les réponses numériques du projectile. Sur la figure 5.10(b), les profils déformés prévus par les simulations numériques sont comparés au profil expérimental issu des travaux de Ames *et al.* [149]. Une réduction du diamètre du projectile va fortement influencer la déformée de la plaque sous le projectile. On constate, sur la figure 5.10(b), qu'une diminution du diamètre du projectile entraîne une diminution du rayon de courbure de la plaque polymère. Cependant, l'épaisseur de la plaque n'est que très peu influencée par le diamètre du projectile. De plus, une très bonne corrélation entre les données expérimentales et le profil déformé prévu par la simulation pour un diamètre de projectile de 17.5 mm est observée.

Comme précédemment, c'est sous le projectile que la plaque est la plus déformée et que l'augmentation de température est la plus importante. Ainsi, les valeurs de déformation plastique et de

5.2 Simulation de l'essai d'impact normal d'une plaque circulaire de polycarbonate par un projectile cylindrique à pointe sphérique

Diamètre du projectile	22.5 mm	20 mm	17.5 mm
Paramètres			
Température maximale (K)	342.0	349.0	354.8
Déformation plastique maximale	1.75	1.90	1.98

Tableau 5.2 – Évolution de la température maximale et de la déformation plastique maximale en fonction du diamètre du projectile. La plaque polymère est initialement à 25 °C. La vitesse d'impact est de 3.6 m s⁻¹.

température reportées dans le tableau 5.2 correspondent à plusieurs éléments de la plaque situés sous le projectile. On peut noter qu'une diminution du diamètre du projectile induit une forte augmentation de la déformation plastique et donc une importante augmentation de température au centre de la plaque. L'utilisation d'un diamètre de projectile de 17.5 mm contribue à augmenter la température de la plaque de 56.8 K, soit 25 % de plus que ce qui a pu être obtenue avec un diamètre de projectile de 22.5 mm.

5.2.7.2 Vitesse d'impact

Trois vitesses d'impact ont été étudiées (3.6, 3 et 2.5 m s⁻¹). La température de la plaque polymère est de 25 °C. Le diamètre du projectile est de 22.5 mm. Ainsi, la simulation réalisée à une vitesse de 3.6 m s⁻¹ correspond au modèle Test03. On notera Test06, le modèle pour lequel la vitesse d'impact est de 3 m s⁻¹. Le modèle pour lequel la vitesse d'impact est de 2.5 m s⁻¹ est notée Test07.

Pour une vitesse d'impact de 3.6 m s⁻¹, Ames *et al.* [149] n'ont pas observé de rupture du matériau. Ainsi, on suppose que pour des vitesses d'impact plus faibles, aucune rupture du matériau ne sera notée.

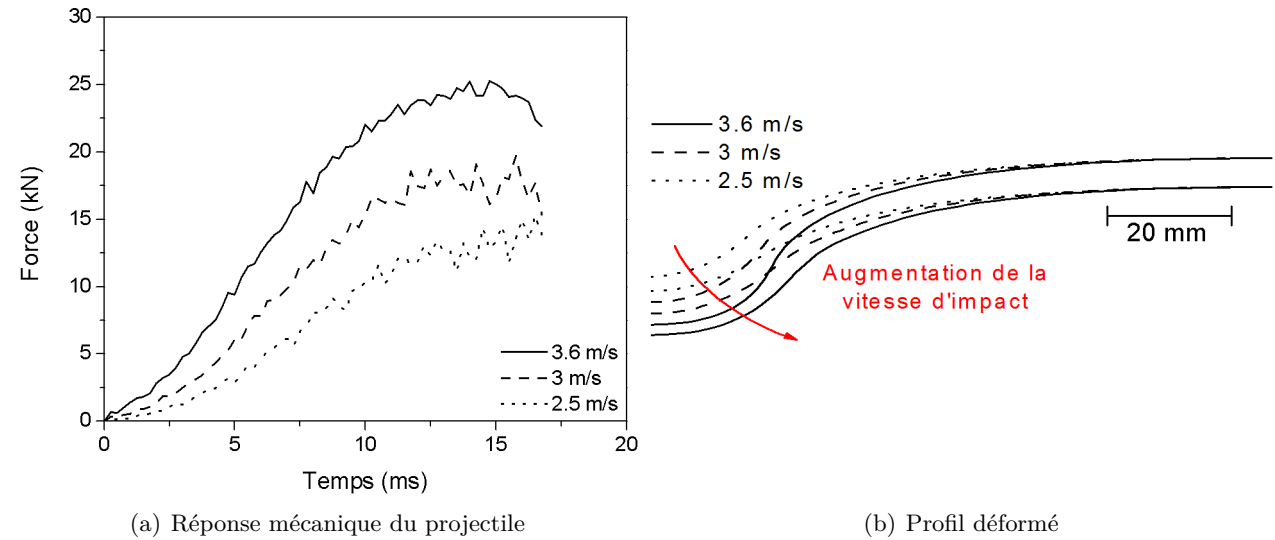


Figure 5.11 – (a) Évolution de la réponse mécanique du projectile en fonction de la vitesse d'impact du projectile. (b) Évolution du profil déformé en fonction de la vitesse d'impact du projectile. Le diamètre du projectile est de 22.5 mm. La température de la plaque est de 25 °C.

La figure 5.11(a) présente la réponse mécanique du projectile pour trois vitesses d'impact. La plaque est à une température initiale de 298 K. On constate que lorsque la vitesse d'impact diminue, la force du projectile sur la plaque polymère diminue également. Le déplacement et l'étirement de la plaque sont d'autant moins importants que la vitesse d'impact est faible comme le montre la figure 5.11(b).

La plaque polymère, sous l'effet de la vitesse d'impact et de la masse du projectile, va bouger de sa position initiale et se déformer de manière irréversible. À masse de projectile constante, le

Paramètres \ Vitesse d'impact	2.5 m s ⁻¹	3 m s ⁻¹	3.6 m s ⁻¹
Température maximale (K)	318.5	327.2	342.0
Déformation plastique maximale	0.97	1.30	1.75

Tableau 5.3 – Évolution de la température maximale et de la déformation plastique maximale en fonction de la vitesse d’impact. La plaque polymère est initialement à 25 °C. Le diamètre du projectile est de 22.5 mm.

déplacement du centre de la plaque est donc fonction de la vitesse d’impact du projectile et, par conséquent, de la hauteur à laquelle le projectile sera lâché. Ainsi, en réduisant la hauteur à laquelle on lâche le projectile, on diminue la vitesse d’impact. Le déplacement maximal du projectile, et donc de la plaque sont d’autant moins importants que la vitesse d’impact est faible. On observe une chute de la déformation plastique maximale de la plaque et de l’augmentation de température due à l’auto-échauffement comme le montre le tableau 5.3. Celles-ci diminuent respectivement de 48.6 % et de 53.4 % lorsque la vitesse d’impact passe de 3.6 m s⁻¹ à 2.5 m s⁻¹.

5.2.7.3 Température de la plaque

L’essai d’impact normal a également été simulé pour trois températures de la plaque polymère (0, 25 et 120 °C). Le diamètre du projectile est de 22.5 mm. Le test réalisé à 25 °C correspond au modèle Test07. Les simulations réalisées à 0 °C et 120 °C correspondent respectivement aux modèles Test08 et Test09.

Le sous-programme VUMAT que nous avons écrit ne permet pas de modéliser les problèmes d’endommagement et de rupture. Afin d’éviter ce type de phénomènes pouvant survenir à 0 °C, dû à une trop faible température et donc à un comportement vitreux du polymère, ou à 120 °C après une forte diminution de la section de la plaque, on décide de réduire la vitesse d’impact à 2.5 m s⁻¹ au lieu de 3.6 m s⁻¹.

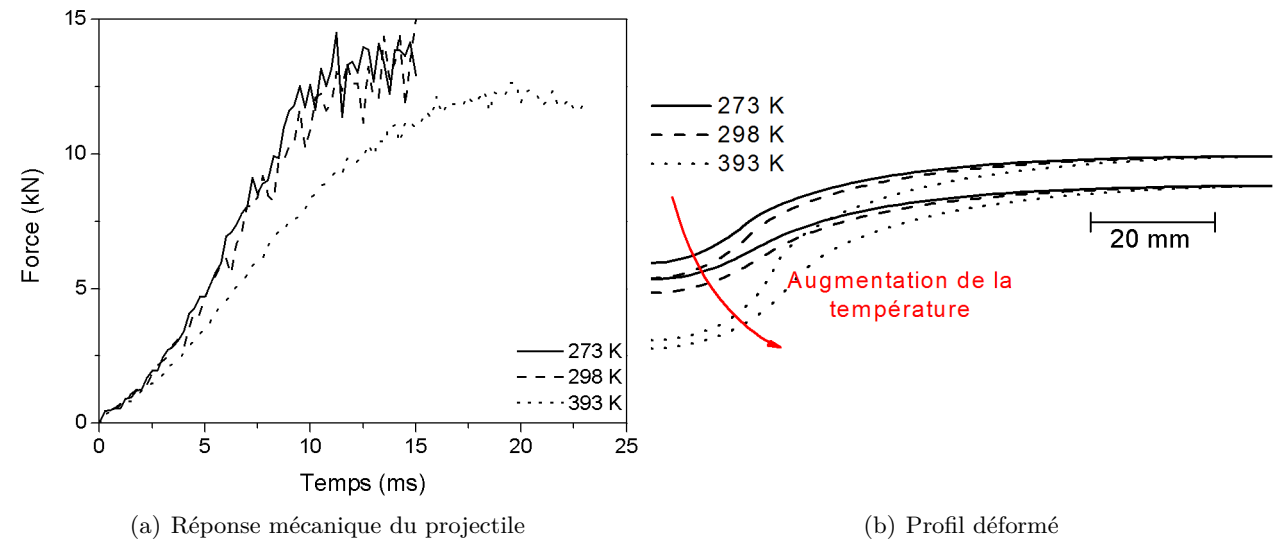


Figure 5.12 – (a) Évolution de la réponse mécanique du projectile en fonction de la température de la plaque polymère. (b) Évolution du profil déformé en fonction de la plaque polymère. Le diamètre du projectile est de 22.5 mm. La vitesse d’impact du projectile est de 2.5 m s⁻¹.

La réponse mécanique du projectile est identique à 0 °C et 25 °C comme le montre la figure 5.12(a). Pour ces deux températures, le matériau présente un comportement vitreux. En revanche, à 120 °C,

5.2 Simulation de l'essai d'impact normal d'une plaque circulaire de polycarbonate par un projectile cylindrique à pointe sphérique

on observe une diminution de la force d'impact du projectile. En effet, à 120 °C, le matériau est proche de sa température de transition vitreuse (~ 145 °C). Le profil déformé est fortement affecté par la température de la plaque comme illustré sur la figure 5.12(b). Une température élevée de la plaque polymère permettra un plus fort étirement du matériau et une diminution de l'épaisseur plus importante de la plaque.

Température de la plaque			
Paramètres	273 K	298 K	393 K
Augmentation de température (K)	19.9	20.5	26.8
Déformation plastique maximale	0.85	0.97	1.77

Tableau 5.4 – Évolution de l’augmentation de température maximale et de la déformation plastique maximale en fonction de la température initiale de la plaque. Le diamètre du projectile est de 22.5 mm. Il impacte la plaque à une vitesse de 2.5 m s^{−1}.

Lorsque la température de la plaque diminue, l’augmentation de la température due à l’auto-échauffement du matériau ainsi que le niveau de déformation plastique diminuent également. L’augmentation de température due à l’auto-échauffement s’explique par le fait que les propriétés matériau des polymères (densité, chaleur spécifique et conductivité thermique) sont dépendantes de la température et augmentent avec celle-ci. De plus, lorsque la température du matériau augmente, la contrainte seuil et le module d’élasticité deviennent plus faible. L’énergie nécessaire pour que le matériau se déforme de manière irréversible est alors moins importante. Par conséquent, le matériau oppose moins de résistance à l’impact.

5.2.8 Récapitulatif des paramètres des différentes simulations

Des études de sensibilité portant sur le maintien de la plaque dans la machine d’essai d’impact, le diamètre du projectile, la vitesse d’impact et la température initiale de la plaque ont été réalisées lors de la simulation de l’essai d’impact normal d’une plaque circulaire par un projectile cylindrique à pointe sphérique. Un récapitulatif des données initiales de chaque modèle est présenté dans le tableau 5.5.

	Maintien de la plaque			Diamètre du projectile (mm)			Vitesse d’impact (m s ^{−1})			Température de la plaque (K)		
	ESF	FSF	EP	17.5	20	22.5	2.5	3	3.6	273	298	393
Test01	×					×			×		×	
Test02		×				×			×		×	
Test03			×			×			×		×	
Test04			×		×				×		×	
Test05			×	×					×		×	
Test06			×			×		×			×	
Test07			×			×	×				×	
Test08			×			×	×			×		
Test09			×			×	×					×

Tableau 5.5 – Données initiales de chaque simulation correspondant au test d’impact normal d’une plaque circulaire par un projectile cylindrique à pointe sphérique. (ESF : encastrement du serre-flan supérieur, FSF : force appliquée sur le serre-flan supérieur, EP : encastrement de la plaque).

Les paramètres étudiés ici ne sont bien sûr pas les seuls pouvant influencer la déformée d’une plaque polymère suite à un impact normal. Parmi d’autres paramètres, on peut citer la masse du projectile, sa forme, sa matière, sa température initiale. . . Cependant, ces différents paramètres peuvent être reliés aux trois paramètres étudiés.

5.2.9 Conclusion de l'essai d'impact normal

La simulation d'un essai d'impact normal d'une plaque circulaire par un projectile à géométrie sphérique a été réalisée pour différentes conditions de maintien de la plaque dans la machine d'essai. Le manque de données expérimentales concernant les outillages nous a amené à faire quelque hypothèses assez fortes concernant la géométrie du projectile. Ainsi, au vue des profils déformés obtenus (figure 5.7), on peut supposer que la géométrie du projectile utilisée dans la simulation ne correspond pas exactement à celle utilisée lors de l'expérience.

La modélisation des conditions de maintien de la plaque dans la machine d'essai influence la déformation de la plaque sous les serre-flans et au niveau du brin libre comme on a pu le voir. Cependant, elles ont également un impact, sous le projectile et à la fin du contact serre-flans/matière, sur le taux de déformation plastique et, par conséquent, sur l'augmentation de température de la plaque au cours de l'essai. La réponse mécanique du projectile est également fortement influencée par la façon dont les conditions de maintien de la plaque dans la machine d'essai sont modélisées. Ainsi, on a pu voir que, dans le cas où la plaque est encastrée à son extrémité (Test03), la réponse mécanique du projectile est plus proche de celle enregistrée lors de l'expérience que celle obtenue pour les deux autres simulations (Test01 et Test02).

Des études de sensibilité portant sur le diamètre du projectile, la vitesse d'impact et la température de la plaque ont été réalisées. Ainsi, on a pu constater qu'une diminution du diamètre du projectile diminuait également le rayon de courbure de la plaque déformée. De plus, une forte augmentation de température liée à l'auto-échauffement du matériau a été notée pour le plus faible diamètre de projectile. On a également noté un lien entre vitesse d'impact du projectile et température de la plaque polymère. On a pu noter qu'une forte température ou une forte vitesse d'impact induisait une forte déformation ainsi qu'un fort auto-échauffement de la plaque sous le projectile. La diminution de l'épaisseur de la plaque sous le projectile est d'autant plus important que la température ou la vitesse d'impact est élevée.

5.3 Simulation de la déformation d'un cylindre polycarbonate dans une matrice cruciforme

Le seconde application qui a été simulée est un essai de forgeage d'un cylindre polycarbonate dans une matrice cruciforme. Ce test est issu de la littérature [150]. La mise en forme a été réalisée à 25 °C.

5.3.1 Procédure expérimentale de Srivastava suivie par *et al.* [150]

Un cylindre polymère en polycarbonate de 12.7 mm de diamètre et de 12.7 mm de long est mis en forme dans une matrice cruciforme en acier. Les tests ont été menés à 25 °C. Les interfaces entre le matériau et la matrice cruciforme ont été lubrifiées afin de minimiser les effets de friction. La matrice cruciforme se ferme à une vitesse constante de 0.02 mm s^{-1} pour un déplacement final de 4.6 mm. Lorsque le déplacement final est atteint, la matrice cruciforme se retire et l'énergie élastique stockée dans le matériau est libérée.

La force est enregistrée au cours de l'essai. Après la décharge, la section déformée de la structure forgée est mesurée. Ces données seront utilisées pour comparer les prévisions numériques issues de nos simulations avec les données expérimentales.

5.3.2 Géométrie et hypothèses de la simulation

Le problème qui est modélisé (mise en forme d'un cylindre polymère dans une matrice cruciforme) est un procédé où la longueur du cylindre varie peu et peut donc être modélisé par un problème de déformation plane. De plus, cet essai présente deux plans de symétries. Par conséquent, seulement un quart de la géométrie est modélisé comme illustré sur la figure 5.13.

La structure polymère, définie comme un objet déformable, mesure 12.7 mm de diamètre et 12.7 mm d'épaisseur. Étant donné que l'on a fait le choix de modéliser ce problème par une géométrie 2D plane, l'épaisseur du matériau est prise en compte lors de la création de la "Section" dans ABAQUS.

Le cylindre polymère est maillé avec 2094 éléments CPE4R ou CPE4RT suivant si l'on considère une analyse mécanique ou thermomécanique. Les éléments CPE4R et CPE4RT, disponibles dans la bibliothèque d'éléments d'ABAQUS/Explicit, sont des éléments à 4 nœuds à intégration réduite et contrôle du phénomène de sablier (« hourglass »). Les éléments CPE4RT permettent également un couplage thermomécanique. La matrice cruciforme est définie comme étant une surface rigide. Le contact entre la matrice cruciforme et le cylindre polymère est supposé sans frottement en accord avec Srivastava *et al.* [150].

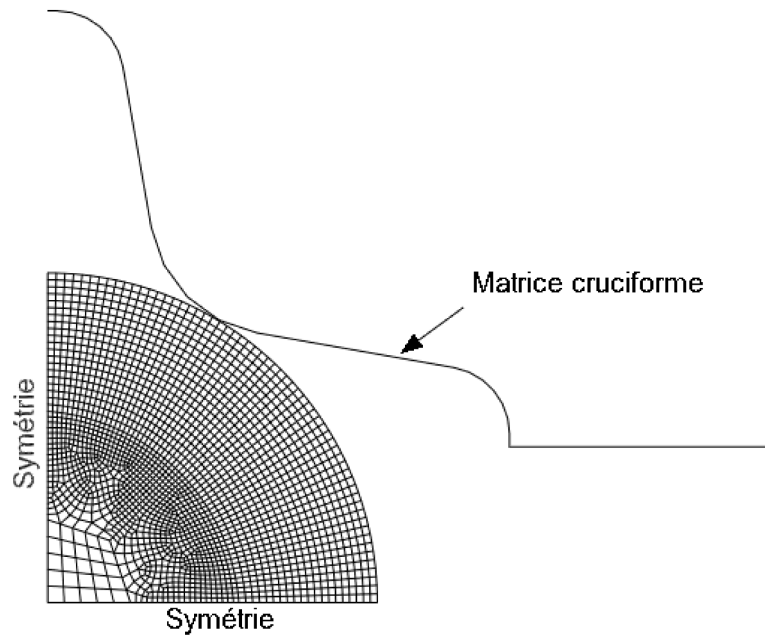


Figure 5.13 – Modèle Éléments Finis utilisé lors de l'analyse thermomécanique de l'essai de mise en forme cruciforme d'une cylindre polymère.

Comme le solveur est de type dynamique explicite, les analyses quasi-statiques durent plus longtemps. Ainsi, afin d'éviter plusieurs semaines de calcul pour une seule simulation, le « mass-scaling » est souvent utilisé pour augmenter la taille du pas de temps et réduire le temps CPU. Cependant, ajouter artificiellement de la masse pour augmenter le pas de temps peut affecter de manière significative les résultats de l'analyse thermodynamique. Ainsi, l'influence de l'ajout de masse sera étudiée pour plusieurs valeurs du « mass-scaling » (facteur : de 10^5 à 10^8). Dans le cas de la simulation de l'essai cruciforme sous condition adiabatique, on regardera l'influence du coefficient de « mass-scaling » sur l'auto-échauffement du matériau, la valeur de la contrainte maximale et sa localisation, la déformée, la déformation plastique et la réponse mécanique de la matrice à la fin de l'étape de mise en forme (pour un déplacement de la matrice de 4.6 mm).

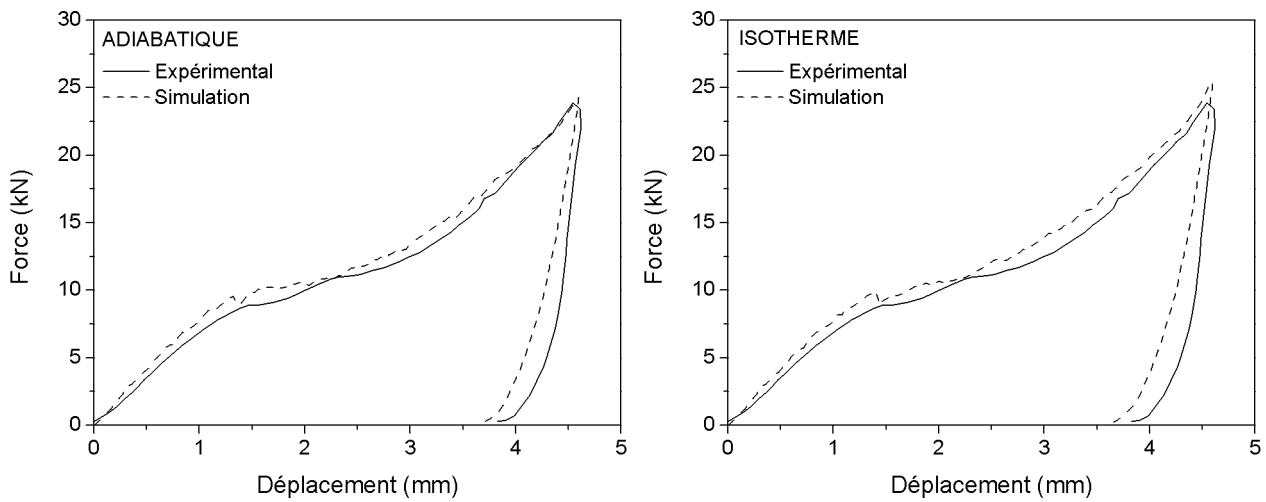
Pour la plus grande valeur du coefficient de « mass-scaling » utilisée (10^8), aucune homogénéisation de la vitesse de déformation n'a été nécessaire. Pour cette valeur du coefficient de « mass-scaling », la vitesse de déformation est relativement stable et homogène tout au long du calcul (de l'ordre de 3 s^{-1}). En revanche, lorsque l'on diminue la valeur du mass-scaling, on diminue également le pas de temps. Ce phénomène a pour conséquence une instabilité de la vitesse de déformation, celle-ci pouvant atteindre localement plus de 10 s^{-1} , ainsi qu'une distorsion des éléments au niveau des axes de symétrie. Pour réduire et stabiliser la vitesse de déformation et, par conséquent, éviter une distorsion des éléments, pour toutes les valeurs du mass-scaling autre que 10^8 , la vitesse de déformation est homogénéisée en fonction du temps. L'intervalle de temps sur lequel l'homogénéisation de la vi-

tesse de déformation est réalisée est de deux pas de temps (en se référant à l'équation 4.59, $N = j + 2$).

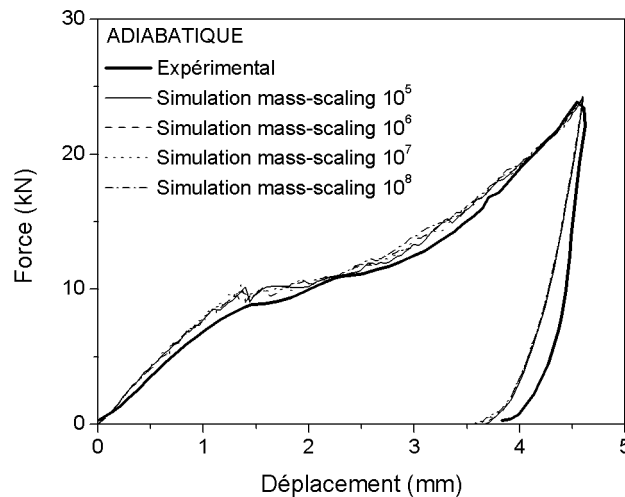
L'essai de mise en forme cruciforme à 25 °C correspond à un essai de mise en forme à froid. En effet, le matériau n'est pas chauffé et est mis en œuvre à une température très éloignée de sa température de transition vitreuse, puisque pour le polycarbonate (PC) celle-ci se situe autour de 145 °C [24, 149, 150] pour cette gamme de vitesses de déformation.

5.3.3 Réponse mécanique de la matrice cruciforme

Après avoir vérifié que l'énergie artificielle due au « mass-scaling » est faible devant l'énergie cinétique et l'énergie totale, avec l'énergie cinétique très faible devant l'énergie totale, on trace, sur la figure 5.14, la réponse mécanique de la matrice cruciforme pour les simulations numériques (adiabatique et isotherme) effectuées avec un coefficient de « mass-scaling » de 10^6 et on les compare aux résultats expérimentaux. Une comparaison des réponses mécaniques de la matrice cruciforme entre les différentes valeurs du coefficient de « mass-scaling » est également réalisée.



(a) Adiabatique, coefficient de « mass-scaling » égal à 10^6 (b) Isotherme, coefficient de « mass-scaling » égal à 10^6



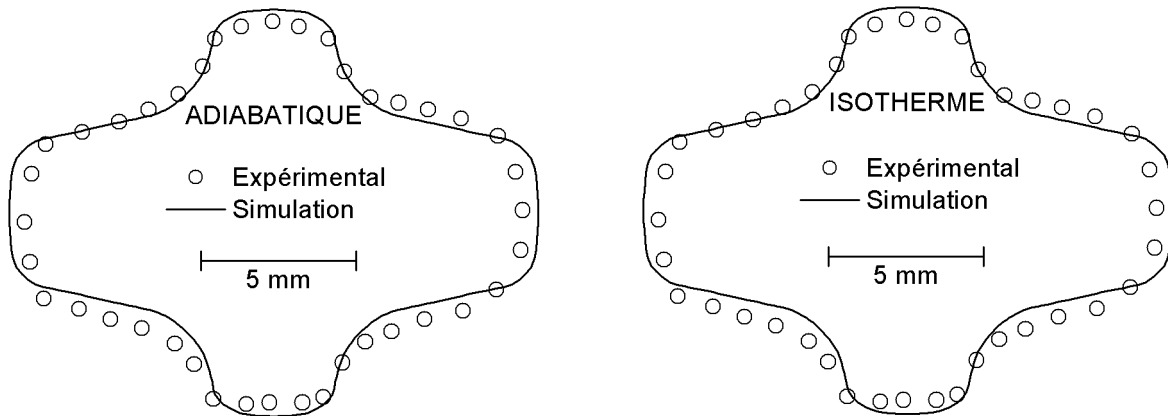
(c) Comparaison adiabatique

Figure 5.14 – Courbes Force-Déplacement correspondant à la réponse mécanique de la matrice cruciforme. Comparaison entre les réponses numériques prévues par les simulations numériques et la réponse expérimentale mesurée par Srivastava *et al.* [150] pour différentes valeurs du coefficient de « mass-scaling » et en considérant une étude adiabatique et isotherme.

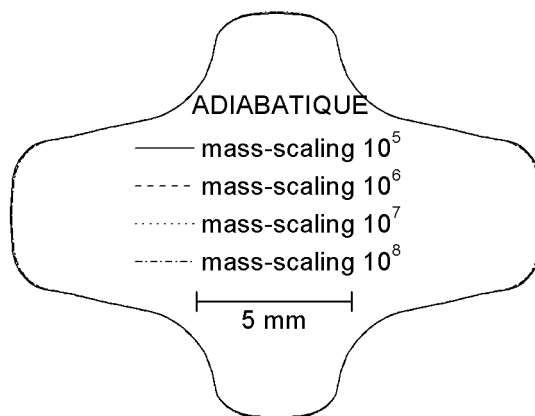
Un bon accord est trouvé entre les prévisions numériques et les données expérimentales pour la réponse mécanique de la matrice cruciforme. On remarque également qu'il n'existe pas de différences majeures dans les réponses mécaniques de la matrice cruciforme pour les deux conditions considérées (adiabatique et isotherme). Cependant, il apparaît que dans le cas isotherme la réponse mécanique de la matrice cruciforme est légèrement plus importante que dans le cas adiabatique. Sur la figure 5.14(c), une augmentation des perturbations dans la réponse mécanique de la matrice cruciforme est mise en évidence lorsque l'on diminue la valeur du coefficient du « mass-scaling », pour un déplacement compris entre 1.5 mm et 4 mm. Ce phénomène peut avoir plusieurs origines : l'algorithme de résolution d'ABAQUS/Explicit, l'utilisation du « mass-scaling » et des oscillations de la vitesse de déformation au cours de la mise en forme. Ainsi, l'homogénéisation de la vitesse de déformation par rapport au temps ne permet pas de supprimer les perturbations numériques de la simulation. Cependant, elle permet de les restreindre fortement.

5.3.4 Étude de la déformée

Une vue découpée de la section déformée du cylindre polymère est présenté sur la figure 5.15 pour une même valeur du coefficient de « mass-scaling » dans le cas adiabatique et dans le cas isotherme. Une comparaison des sections déformées, dans le cas adiabatique, pour différentes valeurs du coefficient de « mass-scaling » est également proposée.



(a) Adiabatique, coefficient de « mass-scaling » égal à 10^6 (b) Isotherme, coefficient de « mass-scaling » égal à 10^6



(c) Comparaison, adiabatique

Figure 5.15 – Comparaison entre la section déformée expérimentale issu des travaux de Srivastava *et al.* [150] et la section déformée prévue par les simulations numériques.

Un bon accord général est observé entre la section déformée expérimentale et la section déformée prévue par la simulation numérique quelque soit la valeur du coefficient de « mass-scaling ». La section déformée est très peu sensible à la valeur du coefficient de « mass-scaling » utilisée. De plus, les sections

déformées obtenues dans les cas isotherme et adiabatique sont similaires. Sur la figure 5.15(c), on constate que, pour différentes valeurs du « mass-scaling », la section déformée n'est que très peu affectée puisque les différentes prévisions numériques semblent confondues.

Bien que la prévision de la section déformée soit correcte, une meilleure approximation pourra être obtenue en prenant en compte le caractère viscoélastique du matériau [152–155].

5.3.5 Distribution de la contrainte équivalente de von Mises de l'objet déformé

La répartition des contraintes à la fin de l'étape de mise en forme et avant le retrait de la matrice cruciforme est présentée sur la figure 5.16 pour les différentes valeurs du coefficient de « mass-scaling » et pour des conditions adiabatique et isotherme.

Pour toutes les simulations numériques réalisées, on peut noter que la répartition des contraintes est identique. Cependant, la valeur maximale du champ de contraintes est affectée par la valeur du « mass-scaling ». Pour toutes les simulations, la contrainte maximale est localisée au niveau du premier contact entre la matrice cruciforme et le cylindre polymère. Le champ de contrainte le plus faible se trouve au centre du cylindre polymère, qui est très peu déformé, et au niveau des "croix" de la forme polymère.

	Adiabatique				Isotherme	
Coefficient de « mass-scaling »	10^8	10^7	10^6	10^5	10^8	10^6
Contrainte minimale (MPa)	1.68	9.47 (+463 %)	5.43 (+223 %)	10.6 (+531 %)	2.27	10.9 (+380 %)
Contrainte maximale (MPa)	133	149 (+12 %)	155 (+17 %)	164 (+23 %)	138	163 (+18 %)

Tableau 5.6 – Évolution de la contrainte minimale et maximale en fonction du coefficient de « mass-scaling » pour les cas adiabatique et isotherme.

Dans le tableau 5.6, les valeurs des contraintes minimale et maximale pour chacune des simulations effectuées sont répertoriées. On a également calculé l'augmentation de la valeur de la contrainte par rapport à un coefficient de « mass-scaling » de 10^8 . Ainsi, on remarque une forte augmentation de la contrainte minimale, supérieure à 200 % quelque soit la valeur du coefficient de « mass-scaling ». La valeur de la contrainte maximale augmente avec la valeur du coefficient de « mass-scaling ». Ainsi, on note une augmentation de la contrainte maximale supérieure à 10 %, ce qui commence à ne plus être négligeable.

5.3.6 Déformation plastique équivalente de l'objet déformé

Le champ de déformation plastique équivalent obtenu au travers de la section déformée est présenté sur la figure 5.17 à la fin de la mise en forme et avant le retrait de la matrice cruciforme.

Le champ de déformation plastique n'est que très peu affecté par la valeur du coefficient de « mass-scaling ». Ainsi, la déformation plastique maximale augmente légèrement lorsque l'on diminue la valeur du coefficient de « mass-scaling ». Deux zones de déformation maximale sont à noter. La première se trouve au niveau du premier contact matrice-polymère. La seconde zone de déformation maximale se situe au niveau de l'axe de symétrie suivant y.

Le tableau 5.7 présente le niveau de déformation plastique pour différentes valeurs du coefficient de « mass-scaling ». En considérant l'essai comme adiabatique, le niveau de déformation plastique maximale est peu influencé par la valeur du coefficient de « mass-scaling ». En revanche, en supposant que l'essai de mise en forme est isotherme et en utilisant une valeur du coefficient de « mass-scaling » de 10^6 , on peut noter une zone de déformation plastique maximale très importante (+34 % par rapport au cas isotherme avec une valeur du coefficient de « mass-scaling » de 10^8) mais également très localisée. En faisant abstraction de cette zone, on retrouve également les deux mêmes zones de grandes déforma-

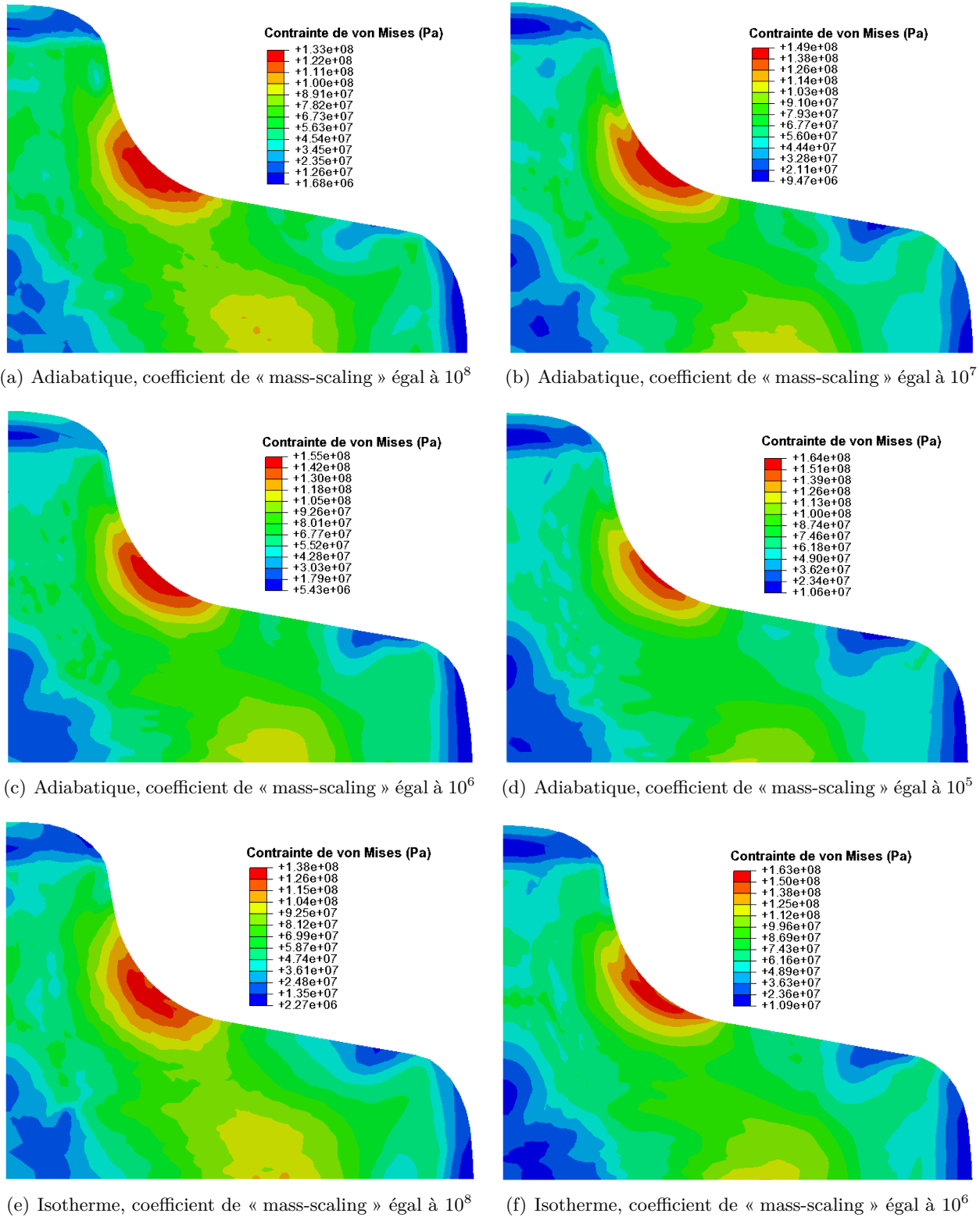


Figure 5.16 – Répartition de la contrainte équivalente de von Mises à la fin de l'étape de mise en forme avant le retrait de la matrice cruciforme.

tions plastiques que celles obtenues pour toutes les autres simulations. De plus, dans ces deux zones, les niveaux de déformation plastique sont en adéquation avec ceux obtenus dans le cas adiabatique.

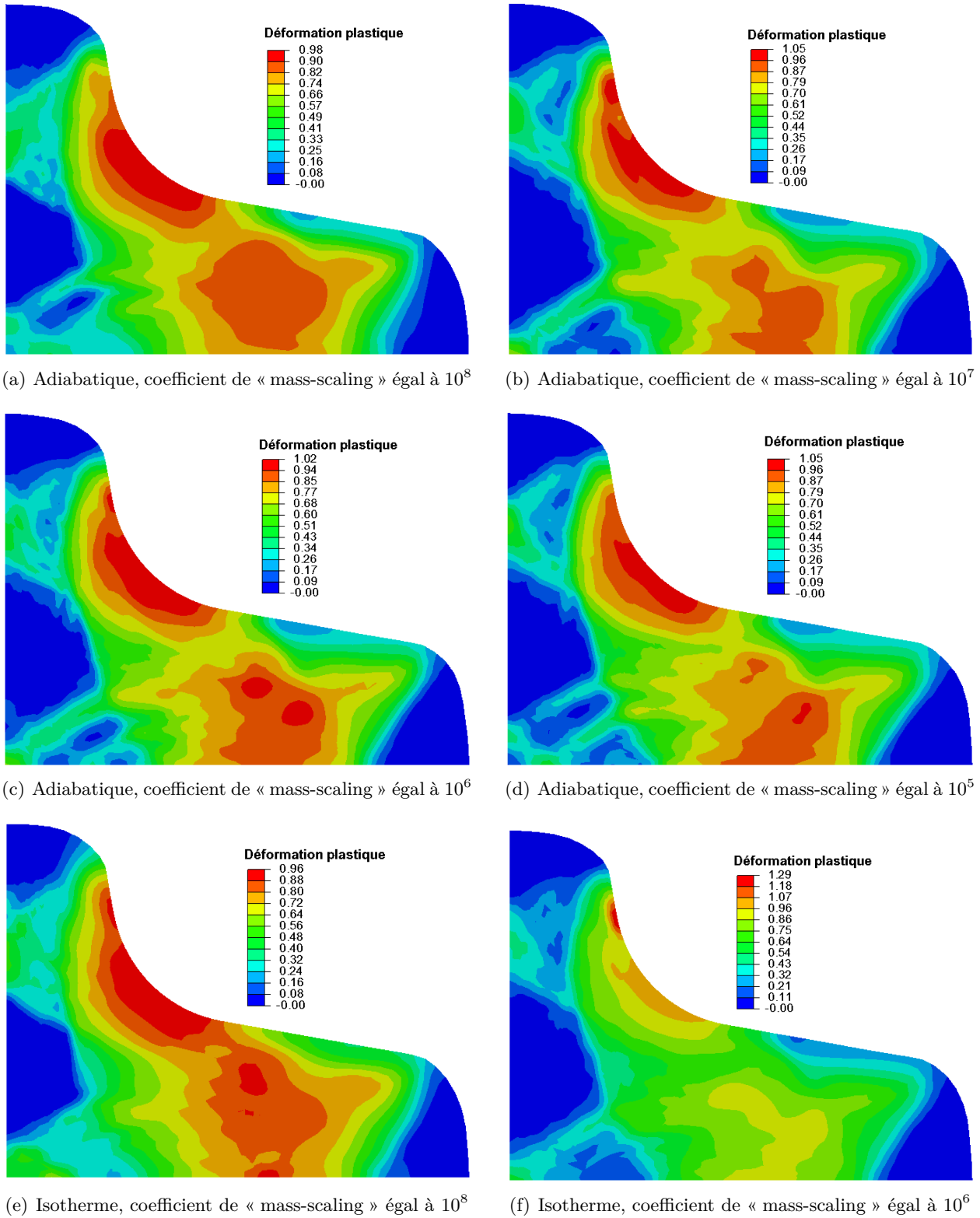


Figure 5.17 – Champ de déformation plastique à la fin de l’étape de mise en forme avant le retrait de la matrice cruciforme.

5.3.7 Distribution de température de l’objet déformé

Bien que nous soyons conscient que le problème modélisé ne soit pas adiabatique, il ne peut non plus être considéré comme isotherme étant donné les vitesses de déformation de l’ordre de 3 s^{-1} obtenues au cours de l’essai. Ainsi, considérer le problème comme adiabatique permet de borner l’évolution

5.3 Simulation de la déformation d'un cylindre polycarbonate dans une matrice cruciforme

	Adiabatique				Isotherme	
Coefficient de « mass-scaling »	10^8	10^7	10^6	10^5	10^8	10^6
Déformation plastique	0.98	1.05 (+7 %)	1.02 (+4 %)	1.05 (+7 %)	0.96	1.29 (+34 %)

Tableau 5.7 – Évolution de la déformation plastique maximale en fonction du coefficient de « mass-scaling » pour les cas adiabatique et isotherme.

du champ de température et ainsi d'étudier les effets du « mass-scaling » sur l'auto-échauffement du matériau.

Le champ de température obtenu à la fin de l'étude de mise en forme du cylindre polymère, avant le retrait de la matrice cruciforme, est présenté sur la figure 5.18 pour les différentes valeurs du coefficient de « mass-scaling » étudiées en supposant des conditions de mise en forme adiabatique.

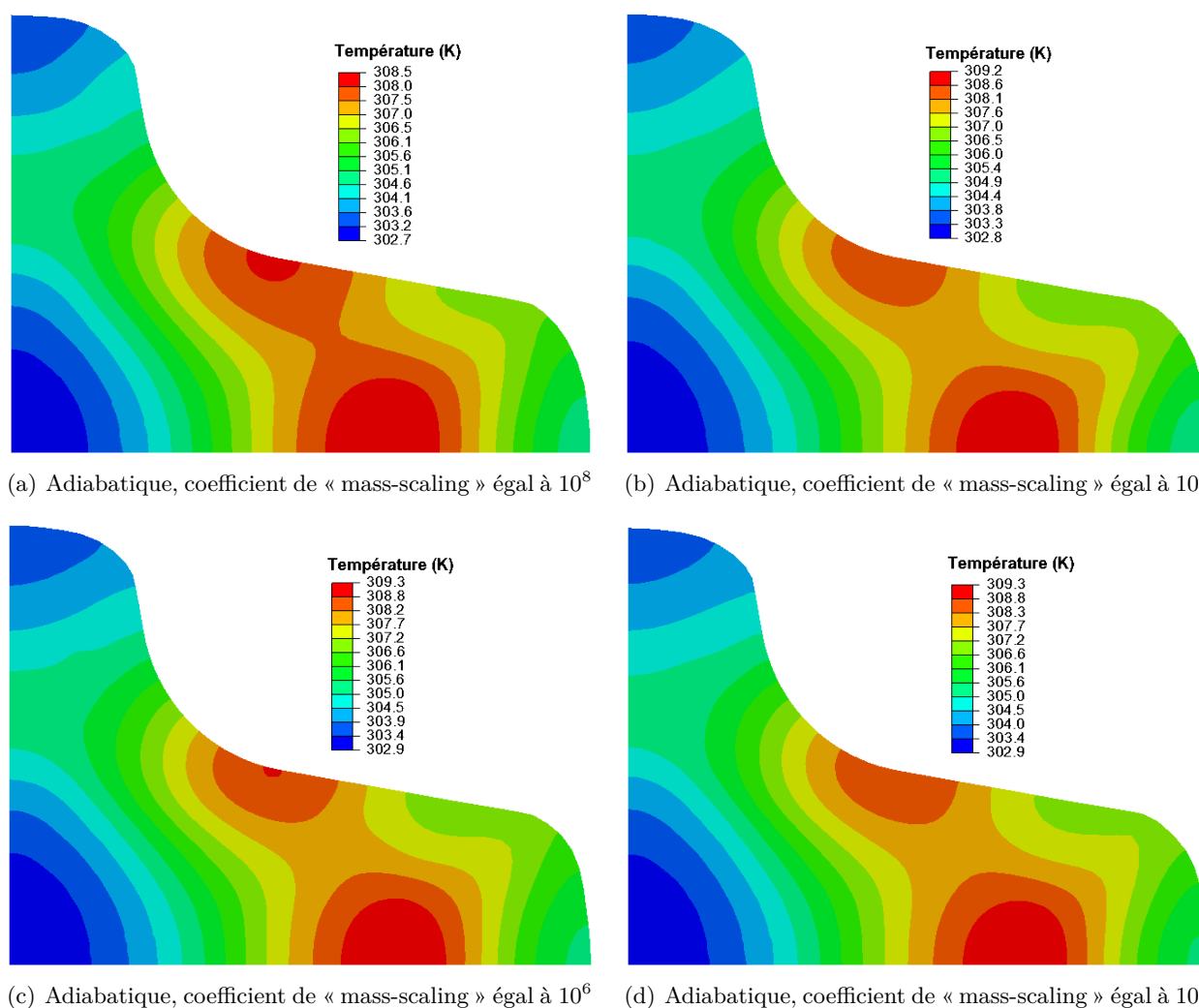


Figure 5.18 – Champ de température à la fin de l'étape de mise en forme avant le retrait de la matrice cruciforme.

Le profil de température obtenu à la fin de l'étape de mise en forme et avant le retrait de la matrice cruciforme met en évidence deux zones où l'auto-échauffement est le plus important. Ces deux zones sont identiques à celles identifiées sur le profil de déformation plastique.

En considérant comme adiabatique la mise en forme à froid du cylindre polymère par une matrice cruciforme descendant à une vitesse de 0.02 mm s^{-1} , on observe, sur la figure 5.18 et dans le tableau 5.8,

	Adiabatique			
Coefficient de « mass-scaling »	10^8	10^7	10^6	10^5
Augmentation de température (K)	10.5	11.2 (+6.67 %)	11.3 (+7.62 %)	11.3 (+7.62 %)

Tableau 5.8 – Évolution de l’augmentation de température maximale en fonction du coefficient de « mass-scaling » pour le cas adiabatique.

une augmentation de température de l’ordre de 11 K à la fin de l’étape de mise en forme et avant le retrait de la matrice. Une augmentation de la température maximale est notée lorsque la valeur du coefficient de « mass-scaling » diminue. Celle-ci semble converger vers une valeur maximale de 309.3 K qui correspond à un auto-échauffement de 11.3 K. Une différence de 7 % est trouvée dans la part d’auto-échauffement entre les simulations réalisées avec une valeur du coefficient de « mass-scaling » de 10^8 et 10^5 .

5.3.8 Temps de calcul

Le temps de calcul de la simulation est fortement influencé par la valeur du coefficient de « mass-scaling ». Alors que quelques heures sont suffisantes pour une valeur du coefficient de « mass-scaling » de 10^8 , deux jours de calcul ont été nécessaires pour achever la simulation de l’essai cruciforme réalisée avec une valeur du coefficient de « mass-scaling » de 10^5 comme l’indique le tableau 5.9.

	Adiabatique			
Coefficient de « mass-scaling »	10^5	10^6	10^7	10^8
Temps de calcul (min)	2638	965 (-63 %)	373 (-86 %)	215 (-92 %)

Tableau 5.9 – Évolution du temps de calcul en fonction de la valeur du coefficient de « mass-scaling » en considérant le problème adiabatique.

Les temps de calcul sont relativement similaires si l’on considère le cas adiabatique et isotherme.

5.3.9 Conclusion de l’essai de mise en forme cruciforme

Un essai de mise en forme cruciforme a été simulé à 25 °C en considérant l’essai isotherme et adiabatique. Afin de limiter le temps de calcul, on a augmenté artificiellement la masse de notre système ce qui a permis d’augmenter le pas de temps. Dans certains cas, ce procédé, appelé « mass-scaling », peut fortement perturber la réponse mécanique du système. Ainsi, une étude de sensibilité au « mass-scaling » a été réalisée. La réponse mécanique de la matrice cruciforme et la section déformée de la cylindre polymère après sa mise en forme dans la matrice ont été comparées aux résultats expérimentaux provenant de la littérature [150]. Pour chaque valeur du coefficient de « mass-scaling » utilisée, la répartition des contraintes, des déformations plastiques et de la température ont également été étudiées à la fin de l’étape de mise en forme, avant le retrait de la matrice cruciforme.

L’essai a été simulé en considérant des conditions isotherme et adiabatique. Des vitesses de déformation de l’ordre de 3 s^{-1} nous ont permis de supposer que le test n’était pas isotherme en accord avec Furmanski *et al.* [22]. Cependant, de telles vitesses de déformation ne permettent pas non plus de considérer que l’essai est adiabatique. Ainsi, l’essai est suffisamment lent pour qu’au cours de la mise en forme des effets de convection et de conduction prennent place. Ne disposant d’aucun moyen pour les estimer, nous avons choisi de considérer l’essai comme adiabatique ce qui nous a permis d’encadrer l’augmentation de température.

On a pu noter une bonne concordance entre les prévisions numériques et les résultats expérimentaux pour la réponse mécanique de la matrice cruciforme et la section déformée du cylindre polymère. En

considérant l'essai comme adiabatique, on a observé une augmentation de température de l'ordre de 11 °C à la fin de l'étape de mise en forme (avant le retrait de la matrice cruciforme).

Les conditions portant sur la température (isotherme, adiabatique) ainsi que la valeur du coefficient de « mass-scaling » n'ont eu que peu d'influence sur la réponse mécanique de la matrice cruciforme et sur la section déformée du cylindre polymère. On remarquera cependant que la diminution de la valeur du coefficient de « mass-scaling » va générer des perturbations dans le signal de la réponse mécanique de la matrice. Ces perturbations sont d'autant plus importantes que la valeur du coefficient de « mass-scaling » est petite. On a également pu noter que bien que la distribution des contraintes, des déformations plastiques et de la température soient identiques pour les différentes valeurs du coefficient de « mass-scaling » utilisées, les valeurs maximales diffèrent. Ainsi, lorsque l'on augmente la valeur du coefficient de « mass-scaling », on diminue la valeur de la contrainte maximale, de la déformation plastique maximale et de la température maximale. De plus, on a pu noter une très forte diminution du temps de calcul lorsque l'on augmente la valeur du coefficient de « mass-scaling ».

Augmenter artificiellement la masse du système permet d'obtenir des résultats corrects tout en réduisant considérablement le temps de calcul. Cependant, l'utilisation d'un tel outil ne peut être faite sans prendre quelques précautions. En effet, il faut tout d'abord vérifier que l'énergie de déformation artificielle et l'énergie cinétique restent très faible devant l'énergie totale. Il faudra également vérifier l'impact du « mass-scaling » sur les prévisions numériques en prenant plusieurs valeurs.

5.4 Conclusion

Un essai d'impact normal et de mise en forme cruciforme à 25 °C d'un polycarbonate ont été simulés avec ABAQUS/Explicit en utilisant une loi de comportement spécifique au matériau polymère introduite dans le sous-programme VUMAT. Les prévisions numériques sont en bon accord avec les résultats expérimentaux provenant de la littérature. Pour chacun de ces essais, l'influence de plusieurs paramètres (mécaniques, physiques, numériques) ont été étudiés. Plus de détails sont donnés dans les conclusions relatives à chaque essai.

Le modèle de comportement que l'on a introduit dans ABAQUS/Explicit via le sous-programme utilisateur *VUMAT* permet de décrire correctement le comportement des polymères amorphes en grandes déformations sur de larges gammes de vitesses de déformation et de températures. Cependant, ce modèle peut être très couteux en temps de calcul. Ainsi, avant de l'utiliser, on souhaiterait que différents paramètres de la modélisation (coefficient de frottement, coefficient de Taylor-Quinney...) puissent être estimés. Pour cela, l'étude en grandes déformations du matériau n'est pas nécessaire. On pourra alors utiliser une loi de comportement telle que celle présentée au chapitre 2.6.

Conclusion générale et perspectives

Ce travail de thèse a principalement consisté en l'étude du comportement thermomécanique des polymères. Un modèle de comportement phénoménologique simple a tout d'abord été introduit dans CAST3M. Il permet, à partir d'une courbe de référence à une température et une vitesse de déformation données, de prévoir le comportement des polymères, en petites déformations, pour une gamme de vitesses de déformation allant du quasi-statique au dynamique et une gamme de températures s'étendant de la région vitreuse à la fin de la région de transition vitreuse. Un essai de compression uniaxiale est modélisé en se basant sur le dispositif des barres d'Hopkinson. À partir de la courbe de référence à une température et vitesse de déformation données, nous avons pu reproduire le comportement de deux polymères semi-cristallins (un polypropylène (PP) et un polychlorotrifluoroéthylène (PCTFE)) à différentes autres vitesses de déformation et températures. Lors d'essais sur barres d'Hopkinson, un fort frottement peut se produire à l'interface entre l'échantillon polymère et les barres de compression. D'un point de vue expérimental, un moyen de réduire le frottement est d'utiliser un lubrifiant. Cependant, une contrainte résiduelle subsiste. De plus, les essais de compression dynamique sur barres d'Hopkinson génèrent une augmentation importante de la température dans l'échantillon modifiant ainsi le comportement du matériau. Une estimation de ces deux données est d'une relative importance lors de l'étude du comportement mécanique intrinsèque du matériau. Ce modèle phénoménologique permet de déterminer rapidement la contrainte à l'interface entre l'échantillon et les barres de compression et le coefficient de Taylor-Quinney, qui caractérise la part de déformation plastique convertie en chaleur. Ce dernier est de 0.7 pour le PP et de 1 pour le PCTFE.

Bien que donnant des résultats intéressants, ce modèle n'a, pour le moment, été validé que pour les petites déformations. Par conséquent, pour l'étude en grandes déformations des matériaux polymères, un second modèle a été utilisé.

Ainsi, un modèle de comportement micromécanique, dépendant de la vitesse de déformation et de la température et permettant de décrire le comportement thermomécanique des polymères amorphes en grandes déformations sur de larges gammes de vitesses de déformation et de températures, a été introduit avec succès dans ABAQUS/Explicit au travers d'un sous-programme utilisateur *VUMAT*. La validation de l'intégration numérique du sous-programme *VUMAT* s'est faite en deux étapes. Pour chacune de ces deux étapes, un essai de traction uniaxiale et de compression uniaxiale sur des géométries simples 2D et 3D ont été modélisés sous ABAQUS/Explicit. Dans un premier, ces géométries ont été maillées avec un élément 2D ou 3D. Les prévisions numériques étant en accord avec les résultats expérimentaux, les géométries ont ensuite été maillées avec un plus grand nombre d'éléments. Cependant, les simulations numériques n'ont pu converger dues à l'apparition d'instabilités de la vitesse de déformation au cours du calcul. Pour palier à ce problème, deux méthodes d'homogénéisation, par rapport à la géométrie et par rapport au temps, ont été proposées pour stabiliser la vitesse de déformation équivalente au cours de la simulation. Dû à des résultats satisfaisants, deux applications, issues de la littérature et sollicitant le matériau en grandes déformations, ont été simulées en utilisant la méthode d'homogénéisation par rapport au temps, méthode moins contraignante que la méthode

d'homogénéisation par rapport à la géométrie. Un essai d'impact normal d'une plaque polymère par un projectile cylindrique à pointe sphérique est tout d'abord modélisé. Les prévisions numériques sont en accord avec les résultats expérimentaux. Dans le but d'étudier l'influence de différents paramètres sur la déformée de la plaque et la réponse mécanique du projectile, des études de sensibilité ont été réalisées. Ces études ont porté sur les conditions de maintien de la plaque polymère dans la machine d'essai, la température initiale de la plaque polymère, la vitesse d'impact du projectile et le diamètre du projectile. Ces différents paramètres influencent non-seulement la déformée de la plaque et la réponse mécanique du projectile mais également l'augmentation de température de la plaque. La seconde application modélisée est un essai de forgeage à froid d'un cylindre polymère par une matrice cruciforme. Afin de diminuer le temps de calcul de cette simulation, nous avons eu recours au « mass-scaling ». Cependant, l'utilisation d'un tel procédé peut affecter de manière significative les résultats de l'analyse thermomécanique. Ainsi, une analyse de sensibilité à la valeur du « mass-scaling » est réalisée. De manière générale, les prévisions numériques sont en accord avec les résultats expérimentaux issus de la littérature.

Le travail effectué durant cette thèse n'est pas une fin en soit et ouvre la voie à plusieurs perspectives.

Le modèle phénoménologique simple a été validé en petites déformations pour des essais de compression. Afin de valider le modèle en traction et cisaillement, il s'agirait de prendre en compte les effets de pression et de cavitation à travers un terme de sensibilité à la pression hydrostatique dans l'expression de la contrainte vraie équivalente. On pourrait également étendre ce modèle aux grandes déformations et y introduire un critère de rupture.

Le modèle de comportement micromécanique introduit dans le sous-programme *VUMAT* a été validé pour une gamme de température allant de la région vitreuse à la caoutchoutique, bien qu'aucun test de validation n'ait été présenté dans ce mémoire pour des températures supérieures à la température de transition vitreuse d'un matériau donné. Dans le but de tester les capacités de prévision du modèle à de hautes températures, il serait intéressant de réaliser des applications à une température supérieure à la température de transition vitreuse d'un matériau telles que le thermoformage ou le soufflage d'une plaque.

Le modèle de comportement micromécanique introduit dans le sous-programme *VUMAT* est uniquement valable pour les polymères amorphes. Cependant, il ne tient compte ni du comportement viscoélastique de ces matériaux ni des phénomènes d'endommagement ou de rupture pouvant survenir en grandes déformations. Afin d'étendre le modèle aux polymères semi-cristallins, nous pourrions utiliser les travaux de Gueguen *et al.* [71, 156] issus de notre équipe de recherche. De plus, les travaux de Rémond et ses collaborateurs [157–159], également issus de notre équipe de recherche, permettraient de prendre en compte le comportement viscoélastique des polymères. La modélisation du comportement viscoélastique des polymères permettrait de prendre en compte le retour élastique non-linéaire de ces matériaux et ainsi, obtenir une plus grande précision sur les prévisions numériques. L'utilisation d'un critère de rupture et d'endommagement permettrait de modéliser ces différents phénomènes pouvant survenir au cours de la déformation des matériaux suite à différents cas de chargement.

Valorisation du travail

Ce travail de thèse a donné lieu à plusieurs articles en cours d'écriture ou de révision dans différentes revues scientifiques. De plus, plusieurs présentations orales ou sous forme de poster ont été faites au cours de conférences nationales et internationales.

Conférences

1. C.A. Bernard, N. Bahlouli, J.P.M. Correia, S. Ahzi
Thermo-mechanical behavior of polymer : modeling and test
DYMAT Student Camp 2012, Tampere, Finlande, 17-20 Juin 2012
2. C.A. Bernard, N. Bahlouli, J.P.M. Correia, S. Ahzi
Constitutive model for thermoforming process
DEPOS 24, Écully, France, 5-7 Septembre 2012
3. C.A. Bernard, J.P.M. Correia, N. Bahlouli, S. Ahzi
Numerical simulation of plug-assisted thermoforming : application to polystyrene
ESAFORM 2013, Aveiro, Portugal, 22-24 Avril 2013
4. C.A. Bernard, J.P.M. Correia, N. Bahlouli, S. Ahzi
Thermo-mechanical behavior of polymers — Modeling and Applications
I(CPB)₆, Vienne, Autriche, 22-26 Septembre 2014

Publications

1. C.A. Bernard, J.P.M. Correia, N. Bahlouli, S. Ahzi
Numerical simulation of plug-assisted thermoforming : application to polystyrene
Key Engineering Materials, Vols 554-557, pp.1602-1620, 2013
2. C.A. Bernard, C. Fond, S. Ahzi, N. Bahlouli
Extraction of polymer stress-strain behavior in the presence of self-heating by the use of a simple model for the elastic-plastic deformation
Article soumis dans la revue Polymer Engineering and Science (en révision)
3. C.A. Bernard, N. Bahlouli, C. Wagner-Kocher, J. Lin, S. Ahzi, Y. Rémond
Mechanical performance of an innovative plasticized Poly(Vinyl Chloride) : relation between thermal and mechanical properties
Article soumis dans la revue Materials and Design (en révision)
4. C.A. Bernard, N. Bahlouli, C. Wagner-Kocher, S. Ahzi, Y. Rémond
Impact behaviour of an innovative plasticized poly(vinyl chloride) for the automotive industry
(en révision :EPJ Web of Conferences, DYMAT11)
5. C.A. Bernard, J.P.M. Correia, N. Bahlouli, S. Ahzi
Numerical simulation of large deformations of amorphous polymer with finite element method : application to normal impact test
(en révision :EPJ Web of Conferences, DYMAT11)

6. C.A. Bernard, J.P.M. Correia, S. Ahzi, N. Bahlouli
Numerical implementation of an elasto-viscoplastic constitutive model to simulate the mechanical behaviour of amorphous polymers
Article en préparation

Séminaires

1. C.A. Bernard, J.P.M. Correia, N. Bahlouli, S.Ahzi
Thermo-mechanical behavior of polymers : Modeling and Applications
Journée des Doctorants du Département Mécanique du laboratoire ICube, Strasbourg, France,
21 Mai 2014
Prix de la meilleure présentation

Références bibliographiques

- [1] G. W. EHRENSTEIN AND F. MONTAGNE. *Matériaux polymères, structure, propriétés et applications*. Hermes Science (2000).
- [2] N. BAHLOULI, D. PESSEY, S. AHZI, AND Y. RÉMOND. *Mechanical behavior of composite based polypropylene : Recycling and strain rate effects*. Journal de Physique IV France **134**, 1319–1323 (2006).
- [3] D. PESSEY, N. BAHLOULI, S. PATTOFATTO, AND S. AHZI. *Polymer composites for the automotive industry : characterisation of the recycling effect on the strain rate sensitivity*. International Journal of Crashworthiness **13**(4), 411–424 (2008).
- [4] N. BAHLOULI, D. PESSEY, C. RAVEYRE, J. GUILLET, S. AHZI, A. DAHOUN, AND J. M. HIVER. *Recycling effects on the rheological and thermomechanical properties of polypropylene-based composites*. Materials & Design **33**(0), 451–458 (2012).
- [5] K. WANG, F. ADDIEGO, N. BAHLOULI, S. AHZI, Y. RÉMOND, AND V. TONIAZZO. *Impact response of recycled polypropylene-based composites under a wide range of temperature : effect of filler content and recycling*. Composites Science and Technology **95**, 89–99 (2014).
- [6] S. C. LIN AND E. M. PEARCE. *High performance thermosets : chemistry, properties, applications*. Hanser-Gardner Publications (1994).
- [7] C. OUDET. *Polymères, structure et propriétés. Introduction*. Masson, Paris (1994).
- [8] J. PEREZ. *Matériaux non-cristallins et science du désordre*. PPUR presses polytechniques (2001).
- [9] P. COMBETTE AND I. ERNOULT. *Physique des polymères. Tome I : Structure, fabrication, emploi*. Editions Hermann (2005).
- [10] J.-L. HALARY. *De la macromolécule au matériau polymère*. Éditions Belin (2006).
- [11] J. M. GOPPEL AND J. J. ARLMAN. *On the degree of crystallinity in natural rubber iv*. Applied Scientific Research **1**(1), 462–474 (1949).
- [12] I. M. WARD AND D. W. HADLEY. *An introduction to the mechanical properties of solid polymers*. John Wiley & Sons (1993).
- [13] J. HEIJBOER. *Secondary loss peaks in glassy amorphous polymers*. International Journal of Polymeric Materials **6**(1-2), 11–37 (1977).
- [14] H. LEADERMAN. *Textile materials and the time factor. I. Mechanical behavior of textile fibers and plastics*. Textile Research Journal **11**(4), 171–193 (1941).

- [15] E. CATSIFF AND A. V. TOBOLSKY. *Stress-relaxation of polyisobutylene in the transition region (1, 2)*. Journal of Colloid Science **10**(4), 375–392 (1955).
- [16] M. L. WILLIAMS, R. F. LANDEL, AND J. D. FERRY. *The temperature dependence of relaxation mechanisms in amorphous polymers and other glass-forming liquids*. Journal of the American Chemical Society **77**(14), 3701–3707 (1955).
- [17] M. H. COHEN AND D. TURNBULL. *Molecular transport in liquids and glasses*. The Journal of Chemical Physics **31**(5), 1164–1969 (1959).
- [18] D. TURNBULL AND M. H. COHEN. *Free-volume model of the amorphous phase : glass transition*. The Journal of Chemical Physics **34**(1), 120–125 (1961).
- [19] A. K. DOOLITTLE. *Studies in newtonian flow. II. The dependence of the viscosity of liquids on free-space*. Journal of Applied Physics **22**(12), 1471–1475 (1951).
- [20] C. G'SELL, J. M. HIVER, A. DAHOUN, AND A. SOUAHI. *Video-controlled tensile testing of polymers and metals beyond the necking point*. Journal of Materials Science **27**(18), 5031–5039 (1992).
- [21] J. RICHETON. *Modeling and validation of the finite strain response of amorphous polymers for a wide range of temperature and strain rate*. Thèse de Doctorat, Université Louis Pasteur - CNRS, Institut de Mécanique des Fluides et des Solides (2005).
- [22] J. FURMANSKI, C. M. CADY, AND E. N. BROWN. *Time-temperature equivalence and adiabatic heating at large strains in high density polyethylene and ultrahigh molecular weight polyethylene*. Polymer **54**(1), 381–390 (2013).
- [23] C. G'SELL AND J. J. JONAS. *Yield and transient effects during the plastic deformation of solid polymers*. Journal of Materials Science **16**(7), 1956–1974 (1981).
- [24] J. RICHETON, S. AHZI, K. S. VECCHIO, F. C. JIANG, AND A. MAKRAZI. *Modeling and validation of the large deformation inelastic response of amorphous polymers over a wide range of temperatures and strain rates*. International Journal of Solids and Structures **44**(24), 7938–7954 (2007).
- [25] W. A. SPITZIG AND O. RICHMOND. *Effect of hydrostatic pressure on the deformation behavior of polyethylene and polycarbonate in tension and in compression*. Polymer Engineering & Science **19**(16), 1129–1139 (1979).
- [26] R. MATADI BOUMBIMBA, S. AHZI, N. BAHLOULI, D. RUCH, AND J. GRACIO. *Dynamic mechanical properties of PMMA/organoclay nanocomposite : Experiments and modeling*. Journal of Engineering Materials and Technology **133**(3), 1–6 (2011).
- [27] R. MATADI BOUMBIMBA, E. HABLOT, K. WANG, N. BAHLOULI, S. AHZI, AND L. AVÉROUS. *High strain rate behaviour of renewable biocomposites based on dimer fatty acid polyamides and cellulose fibres*. Composites Science and Technology **71**(5), 674–682 (2011).
- [28] R. MATADI BOUMBIMBA, K. WANG, N. BAHLOULI, S. AHZI, Y. RÉMOND, AND F. ADDIEGO. *Experimental investigation and micromechanical modeling of high strain rate compressive yield stress of a melt mixing polypropylene organoclay nanocomposites*. Mechanics of Materials **52**(0), 58–68 (2012).
- [29] K. WANG, R. MATADI BOUMBIMBA, N. BAHLOULI, S. AHZI, R. MULLER, AND M. BOUQUEY. *Dynamic compressive behavior of a melt mixed polypropylene/organoclay nanocomposites*. Journal of Engineering Materials and Technology **134**(1), 010905 (2011).
- [30] K. WANG, N. BAHLOULI, F. ADDIEGO, S. AHZI, Y. RÉMOND, D. RUCH, AND R. MULLER. *Effect of talc content on the degradation of re-extruded polypropylene/talc composites*. Polymer Degradation and Stability **98**(7), 1275–1286 (2013).

- [31] K. WANG, F. ADDIEGO, A. LAACHACHI, B. KAOUACHE, N. BAHLOULI, V. TONIAZZO, AND D. RUCH. *Dynamic behavior and flame retardancy of HDPE/hemp short fiber composites : Effect of coupling agent and fiber loading*. Composite Structures **113**(0), 74–82 (2014).
- [32] C. G'SELL AND J. J. JONAS. *Determination of the plastic behavior of solid polymers at constant true strain rate*. Journal of Materials Science **14**, 583–591 (1979).
- [33] C. G'SELL, N. A. ALY-HELAL, AND J. J. JONAS. *Effect of stress triaxiality on neck propagation during the tensile stretch of solid polymers*. Journal of Materials Science **18**, 1731–1742 (1983).
- [34] S. MATSUOKA. *Nonlinear viscoelastic stress-strain relationships in polymeric solids* chapter 3, pages 24–59. Hanser Publishers, New York (1986).
- [35] Y. DUAN, A. SAIGAL, R. GRIEF, AND M. A. ZIMMERMAN. *A uniform phenomenological constitutive model for glassy and semicrystalline polymers*. Polymer Engineering & Science **41**(8), 1322–1328 (2001).
- [36] G. R. JOHNSON AND W. H. COOK. *A constitutive model and data for metals subjected to large strains, high strain rates and high temperatures*. In *Proc. 7th Int. Symp. on Ballistics, The Hague, The Netherlands*, pages 541–547, The Hague, The Netherlands (1983).
- [37] J. W. BROOKS. *Processing wrought nickel and titanium superalloy, thermo-mechanical processing : theory, modeling and practice*. In *A conference organized in celebration of the 75th anniversary of the Swedish Society for Material Technology* (1996).
- [38] Y. DUAN, A. SAIGAL, R. GREIF, AND M. A. ZIMMERMAN. *Impact behavior and modeling of engineering polymers*. Polymer Engineering & Science **43**(1), 112–124 (2003).
- [39] M. C. BOYCE, D. M. PARKS, AND A. S. ARGON. *Large inelastic deformation of glassy polymers. Part I. Rate dependent constitutive model*. Mechanics of Materials **7**(1), 15–33 (1988).
- [40] E. M. ARRUDA, M. C. BOYCE, AND R. JAYACHANDRAN. *Effects of strain rate, temperature and thermomechanical coupling on the finite strain deformation of glassy polymers*. Mechanics of Materials **19**(2-3), 193–212 (1995).
- [41] A. D. DROZDOV. *Viscoelastoplasticity of amorphous glassy polymers*. European Polymer Journal **36**, 2063–2074 (2000).
- [42] C. A. MAHIEUX AND K. L. REIFSNIDER. *Property modeling across transition temperatures in polymers : a robust stiffness-temperature model*. Polymer **42**(7), 3281–3291 (2001).
- [43] C. A. MAHIEUX AND K. L. REIFSNIDER. *Property modeling across transition temperatures in polymers : application to thermoplastic systems*. Journal of Materials Science **37**(5), 911–920 (2002).
- [44] J. RICHETON, G. SCHLATTER, K. S. VECCHIO, Y. RÉMOND, AND S. AHZI. *A unified model for stiffness modulus of amorphous polymers across transition temperatures and strain rates*. Polymer **46**(19), 8194–8201 (2005).
- [45] R. B. DUPAIX AND M. C. BOYCE. *Constitutive modeling of the finite strain behavior of amorphous polymers in and above the glass transition*. Mechanics of Materials **39**, 39–52 (2007).
- [46] H. EYRING. *Viscosity, plasticity, and diffusion as examples of absolute reaction rates*. Journal of Chemical Physics **4**, 283–291 (1936).
- [47] R. E. ROBERTSON. *Theory for the plasticity of glassy polymers*. Journal of Chemical Physics **44**(10), 3950–3956 (1966).
- [48] A. S. ARGON. *A theory for the low-temperature plastic deformation of glassy polymers*. Philosophical Magazine **28**(4), 839–865 (1973).

- [49] P. B. BOWDEN AND S. RAHA. *A molecular model for yield and flow in amorphous glassy polymers making use of a dislocation analogue*. Philosophical Magazine **29**(1), 149–166 (1974).
- [50] A. S. ARGON AND M. I. BESSONOV. *Plastic flow in glassy polymers*. Polymer Engineering & Science **17**(3), 174–182 (1977).
- [51] J. C. M. LI AND J. J. GILMAN. *Disclination loops in polymers*. Journal of Applied Physics **41**(11), 4248–4256 (1970).
- [52] M. C. BOYCE, E. L. MONTAGUT, AND A. S. ARGON. *The effects of thermomechanical coupling on the cold draw process of glassy polymers*. Polymer Engineering & Science **32**(16), 1073–1085 (1992).
- [53] T. REE AND H. EYRING. *Theory of non-newtonian flow. I. Solid plastic system*. Journal of Applied Physics **26**(7), 793–800 (1955).
- [54] J. A. ROETLING. *Yield stress behavior of poly(ethyl methacrylate) in the glass transition region*. Polymer **6**(11), 615–619 (1965).
- [55] J. A. ROETLING. *Yield stress behavior of polymethyl methacrylate*. Polymer **6**(6), 311–317 (1965).
- [56] J. A. ROETLING. *Yield stress behavior of isotactic polypropylene*. Polymer **7**(7), 303–306 (1966).
- [57] C. BAUWENS-CROWET, J. C. BAUWENS, AND G. HOMÈS. *Tensile yield-stress behavior of glassy polymers*. Journal of Polymer Science, Part A-2 : Polymer Physics **7**(4), 735–742 (1969).
- [58] C. BAUWENS-CROWET, J. C. BAUWENS, AND G. HOMÈS. *The temperature dependence of yield of polycarbonate in uniaxial compression and tensile tests*. Journal of Materials Science **7**, 176–183 (1972).
- [59] C. BAUWENS-CROWET. *The compression yield behaviour of polymethyl methacrylate over a wide range of temperatures and strain-rates*. Journal of Materials Science **8**(7), 968–979 (1973).
- [60] C. BAUWENS-CROWET, J.-M. OTS, AND J. C. BAUWENS. *The strain-rate and temperature dependence of yield of polycarbonate in tension, tensile creep and impact tests*. Journal of Materials Science - Letters **9**, 1197–1201 (1974).
- [61] J. C. BAUWENS, C. BAUWENS-CROWET, AND G. HOMÈS. *Tensile yield-stress behavior of poly(vinyl chloride) and polycarbonate in the glass transition region*. Journal of Polymer Science, Part A-2 : Polymer Physics **7**(10), 1745–1754 (1969).
- [62] J. C. BAUWENS. *Yield condition and propagation of Lüders' line in tension-torsion experiments on poly(vinyl chloride)*. Journal of Polymer Science, Part A-2 : Polymer Physics **8**(6), 893–901 (1970).
- [63] J. C. BAUWENS. *Relation between the compression yield stress of poly(vinyl chloride) and the loss peak in the β -transition region*. Journal of Polymer Science, Part C : Polymer Symposia **33**(1), 123–133 (1971).
- [64] J. C. BAUWENS. *Relation between the compression yield stress and the mechanical loss peak of bisphenol-A-polycarbonate in the β transition range*. Journal of Materials Science **7**, 577–584 (1972).
- [65] J. RICHTON, S. AHZI, L. DARIDON, AND Y. RÉMOND. *A formulation of the cooperative model for the yield stress of amorphous polymers for a wide range of strain rates and temperatures*. Polymer **46**(16), 6035–6043 (2005).

- [66] J. RICHETON, S. AHZI, K. S. VECCHIO, F. C. JIANG, AND R. R. ADHARAPURAPU. *Influence of temperature and strain rate on the mechanical behavior of three amorphous polymers : Characterization and modeling of the compressive yield stress*. International Journal of Solids and Structures **43**(7-8), 2318–2335 (2006).
- [67] D. FOTHERINGHAM AND B. W. CHERRY. *Comment on "The compression yield behaviour of polymethyl methacrylate over a wide range of temperatures and strain-rates"*. Journal of Materials Science **11**(7), 1368–1370 (1976).
- [68] D. G. FOTHERINGHAM AND B. W. CHERRY. *The role of recovery forces in the deformation of linear polyethylene*. Journal of Materials Science **13**(5), 951–964 (1978).
- [69] F. POVOLO AND E. B. HERMIDA. *Phenomenological description of strain rate and temperature-dependent yield stress of PMMA*. Journal of Applied Polymer Science **58**(1), 55–68 (1995).
- [70] F. POVOLO, G. SCHWARTZ, AND E. B. HERMIDA. *Temperature and strain rate dependence of the tensile yield stress of PVC*. Journal of Applied Polymer Science **61**, 109–117 (1996).
- [71] O. GUEGUEN, J. RICHETON, S. AHZI, AND A. MAKRAI. *Micromechanically based formulation of the cooperative model for the yield behavior of semi-crystalline polymers*. Acta Materialia **56**(7), 1650–1655 (2008).
- [72] F. CHIVRAC, O. GUEGUEN, E. POLLET, L. AVEROUS, S. AHZI, AND S. BELOUETTAR. *Micromechanically-based formulation of the cooperative model for the yield behavior of starch-based nano-biocomposites*. Journal of Nanoscience and Nanotechnology **10**(4), 2949–2955 (2010).
- [73] N. BAHLOULI, Y. R  MOND, K. WANG, R. MATADI BOUMBIMBA, AND S. AHZI. *Dynamic behavior of virgin and recycled PP/EPR and PP/EPDM/talc materials for car bumpers*. In *18th International Conference on Composite Materials* (2009).
- [74] E. HABLOT, R. MATADI, S. AHZI, R. VAUDEMONT, D. RUCH, AND L. AV  ROUS. *Yield behaviour of renewable biocomposites of dimer fatty acid-based polyamides with cellulose fibres*. Composites Science and Technology **70**(3), 525–529 (2010).
- [75] O. U.   OLAK, S. AHZI, AND Y. R  MOND. *Cooperative viscoplasticity theory based on the overstress approach for modeling large deformation behavior of amorphous polymers*. Polymer International **62**(11), 1560–1565 (2013).
- [76] P. YU, X. YAO, Q. HAN, S. ZANG, AND Y. GU. *A visco-elastoplastic constitutive model for large deformation response of polycarbonate over a wide range of strain rates and temperatures*. Polymer **55**(25), 6577–6593 (2014).
- [77] B. ESCAIG AND J. M. LEFEBVRE. *Thermodynamic and kinetic analysis of non elastic deformation in polymeric glasses*. Revue de Physique Appliqu  e **13**, 285–292 (1978).
- [78] J. HAUSY, J. P. CAVROT, B. ESCAIG, AND J. M. LEFEBVRE. *Thermodynamic analysis of the plastic deformation of glassy poly(methyl methacrylate)*. Journal of Polymer Science, Part B : Polymer Physics **18**(2), 311–325 (1980).
- [79] J. M. LEFEBVRE AND B. ESCAIG. *Plastic deformation of glassy amorphous polymers : influence of strain rate*. Journal of Materials Science **20**(2), 438–448 (1985).
- [80] B. ESCAIG. *A metallurgical approach to the pre-yield and yield behavior of glassy polymers*. Polymer Engineering & Science **24**(10), 737–749 (1984).
- [81] J. P. CAVROT, J. HAUSY, J. M. LEFEBVRE, AND B. ESCAIG. *Thermal activated deformation of glassy polystyrene*. Materials Science and Engineering **36**, 95–103 (1978).
- [82] S. PANDINI AND A. PEGORETTI. *Time and temperature effects on Poisson's ratio of poly(butylene terephthalate)*. EXPRESS Polymer Letters **5**(8), 685–697 (2011).

- [83] P. H. MOTT, J. R. DORGAN, AND C. M. ROLAND. *The bulk modulus and Poisson's ratio of "incompressible" materials*. Journal of Sound and Vibration **312**(4-5), 572–575 (2008).
- [84] G. N. GREAVES, A. L. GREER, R. S. LAKES, AND T. ROUXEL. *Poisson's ratio and modern materials*. Nature Materials **10**(11), 823–837 (2011).
- [85] J. RICHETON, S. AHZI, AND L. DARIDON. *Thermodynamic investigation of yield-stress models for amorphous polymers*. Philosophical Magazine **87**(24), 3629–3643 (2007).
- [86] R. N. HAWARD AND G. THACKRAY. *The use of a mathematical model to describe isothermal stress-strain curve in glassy thermoplastics*. Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences **302**(1471), 453–472 (1968).
- [87] R. W. OGDEN. *Large deformation isotropic elasticity : on the correlation of theory and experiment for compressible rubberlike solid*. Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences **328**(1575), 567–583 (1972).
- [88] H. ALEXANDER. *A constitutive relation for rubber-like materials*. International Journal of Engineering Science **6**(9), 549–563 (1968).
- [89] A. N. GENT. *A new constitutive relation for rubber*. Rubber Chemistry and Technology **69**(1), 59–61 (1996).
- [90] L. R. G. TRELOAR. *The elasticity of a network of long-chain moelasticity. - III*. Transactions of the Faraday Society **42**, 83–94 (1946).
- [91] M. C. WANG AND E. GUTH. *Statistical theory of networks of non-gaussian flexible chains*. The Journal of Chemical Physics **20**(7), 1144–1157 (1952).
- [92] E. M. ARRUDA AND M. C. BOYCE. *A three-dimensional constitutive model for the large stretch behavior of rubber elastic materials*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids **41**(2), 389–412 (1993).
- [93] M. KALISKE AND H. ROTHERT. *Formulation and implementation of three-dimensional viscoelasticity at small and finite strains*. Computational Mechanics **19**(3), 228–239 (1997).
- [94] G. MARCKMANN AND E. VERRON. *Comparison of hyperelastic models for rubber-like materials*. Rubber Chemistry and Technology **79**(5), 835–858 (2006).
- [95] C. MIEHE, S. GÖKTEPE, AND F. LULEI. *A micro-macro approach to rubber-like materials - Part I. The non-affine micro-sphere model of rubber elasticity*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids **52**(11), 2617–2660 (2004).
- [96] P. J. FLORY. *Thermodynamic relation for high elastic materials*. Transactions of the Faraday Society **57**, 829–838 (1961).
- [97] M. M. ATTARD AND G. W. HUNT. *Hyperelastic constitutive modeling under finite strain*. International Journal of Solids and Structures **41**(18-19), 5327–5350 (2004).
- [98] M. M. ATTARD. *Finite-strain-isotropic hyperelasticity*. International Journal of Solids and Structures **40**(17), 4353–4378 (2003).
- [99] W. VON KUHN AND F. GRÜN. *Beziehungen zwischen elastischen konstanten und dehnungsdoppelbrechung hochelastischer stoffe*. Kolloid-Zeitschrift **101**(3), 248–271 (1942).
- [100] H. M. JAMES AND E. GUTH. *Theory of the elastic properties of rubber*. The Journal of Chemical Physics **11**(10), 455–481 (1943).
- [101] R. S. RIVLIN. *Large elastic deformations of isotropic materials. IV. Further development of the general theory*. Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical, Physical & Engineering Sciences **241**(835), 379–397 (1948).

- [102] M. MOONEY. *A theory of large elastic deformation*. Journal of Applied Physics **11**, 582–592 (1940).
- [103] O. H. YEOH. *Some forms of the strain energy function for rubber*. Rubber Chemistry and Technology **66**(5), 754–771 (1993).
- [104] P. J. FLORY AND J. JR. REHNER. *Statistical mechanics of cross-linked polymer networks. I. Rubberlike elasticity*. The Journal of Chemical Physics **11**(11), 512–520 (1943).
- [105] L. R. G. TRELOAR. *The photoelastic properties of short-chain molecular networks*. Transactions of the Faraday Society **50**, 881–896 (1954).
- [106] M. C. BOYCE. *Direct comparison of the Gent and the Arruda-Boyce constitutive models of rubber elasticity*. Rubber Chemistry and Technology **69**(5), 781–785 (1996).
- [107] M. C. BOYCE AND E. M. ARRUDA. *Constitutive models of rubber elasticity : a review*. Rubber Chemistry and Technology **73**(3), 504–523 (2000).
- [108] P. D. WU AND E. VAN DER GIESSEN. *On improved 3-D non gaussian network models for rubber elasticity*. Mechanics research communications **19**(5), 427–433 (1992).
- [109] P. D. WU AND E. VAN DER GIESSEN. *On improved network models for rubber elasticity and their applications to orientation hardening in glassy polymers*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids **41**(3), 427–456 (1993).
- [110] L. GORNET, G. MARCKMANN, R. DESMORAT, AND P. CHARRIER. *A new isotropic hyperelastic strain energy function in terms of invariants and its derivation into a pseudo-elastic model for Mullins effect : application to finite element analysis*. Constitutive Models for Rubber VII, Taylor and Francis pages 265–271 (2012).
- [111] LJ HART-SMITH. *A pseudo-elastic model for loading, partial unloading and reloading of particle-reinforced rubber*. Zeitschrift fur Angewandte Mathematik und Physik **17**(5), 608 (1966).
- [112] G. CHAGNON, G. MARCKMANN, AND E. VERRON. *A comparison of the hart-smith model with arruda-boyce and gent formulations for rubber elasticity*. Rubber Chemistry and Technology **77**(4), 724–735 (2004).
- [113] S. C. CHOU, K. D. ROBERTSON, AND J. H. RAINEY. *The effect of strain rate and heat developed during deformation on the stress-strain curve of plastics*. Experimental Mechanics **13**(10), 422–432 (1973).
- [114] B. J. BRISCOE AND I. M. HUTCHINGS. *Impact yielding of high density polyethylene*. Polymer **17**(12), 1099–1102 (1976).
- [115] S. N. KUKUREKA AND I. M. HUTCHINGS. *Measurement of the mechanical properties of polymers at high strain-rates by Taylor impact*. In T.Z. BLAZYSKI, editor, *7th Int. Conf. on High Energy Rate Fabrication*, pages 29–38, University of Leeds (1981).
- [116] E. N. BROWN, R. B. WILLMS, G. T. III GRAY, P. J. RAE, C. M. CADY, K. S. VECCHIO, J. FLOWERS, AND M. Y. MARTINEZ. *Influence of molecular conformation on the constitutive response of polyethylene : A comparison of HDPE, UHMWPE, and PEX*. Experimental Mechanics **47**(3), 381–393 (2007).
- [117] S. M. WALLEY AND J. E. FIELD. *Strain rate sensitivity of polymers in compression from low to high rates*. In *DYMAT Journal 1*, pages 211–227 (1994).
- [118] B. J. BRISCOE AND R. W. NOSKER. *The influence of interfacial friction on the deformation of high density polyethylene in a split Hopkinson pressure bar*. Wear **95**(3), 241–262 (1984).

- [119] A. TRAUTMANN, C. R. SIVIOUR, S. M. WALLEY, AND J. E. FIELD. *Lubrication of polycarbonate at cryogenic temperatures in the split Hopkinson pressure bar*. International Journal of Impact Engineering **31**(5), 523–544 (2005).
- [120] C. R. SIVIOUR, S. M. WALLEY, W. G. PROUD, AND J. E. FIELD. *The high strain rate compressive behaviour of polycarbonate and polyvinylidene difluoride*. Polymer **46**(26), 12546–12555 (2005).
- [121] C. R. SIVIOUR, S. M. WALLEY, W. G. PROUD, AND J. E. FIELD. *Mechanical behaviour of polymers at high rates of strain*. Journal de Physique IV France **134**, 949–955 (2006).
- [122] J. FURMANSKI, E. N. BROWN, B. CLEMENTS, C. M. CADY, AND G. T. GRAY. *Large-strain time-temperature equivalence in high density polyethylene for prediction of extreme deformation and damage*. EPJ Web of Conferences **26**, 01057 (2012).
- [123] D. RITTEL. *On the conversion of plastic work to heat during high strain rate deformation of glassy polymers*. Mechanics of Materials **31**(2), 131–139 (1999).
- [124] Z. LI AND J. LAMBROS. *Strain rate effects on the thermomechanical behavior of polymers*. International Journal of Solids and Structures **38**(20), 3549–3562 (2001).
- [125] S. HILLMANSEN, S. HOBEIKA, R. N. HAWARD, AND P. S. LEEVERS. *The effect of strain rate, temperature, and molecular mass on the tensile deformation of polyethylene*. Polymer Engineering & Science **40**(2), 481–489 (2000).
- [126] S. HILLMANSEN AND R.N. HAWARD. *Adiabatic failure in polyethylene*. Polymer **42**(22), 9301–9312 (2001).
- [127] A. REGEV AND D. RITTEL. *Simultaneous transient temperature sensing of impacted polymers using infrared detectors and thermocouples*. Experimental Mechanics **48**(5), 675–682 (2008).
- [128] Y WANG AND E. M. ARRUDA. *Constitutive modeling of a thermoplastic olefin over a broad range of strain rates*. Journal of Engineering Materials and Technology **128**(4), 551–558 (2006).
- [129] L. ANAND, N. M. AMES, V. SRIVASTAVA, AND S. A. CHESTER. *A thermo-mechanically coupled theory for large deformations of amorphous polymers. Part I : Formulation*. International Journal of Plasticity **25**(8), 1474–1494 (2009).
- [130] E. H. LEE. *Elastic-plastic deformation at finite strain*. Journal of Applied Mechanics **36**(1), 1–6 (1969).
- [131] E. LE FICHOUX. *Utiliser CAST3M - Présentation et Utilisation de CAST3M*, (2011).
- [132] T. CHARRAS AND F. DI PAOLA. *Utiliser CAST3M - La procédure PASAPAS*, (2011).
- [133] M. J. KENDALL AND C. R. SIVIOUR. *Experimentally simulating adiabatic conditions : Approximating high rate polymer behavior using low rate experiments with temperature profiles*. Polymer **54**(18), 5058–5063 (2013).
- [134] E. N. BROWN, P. J. RAE, AND E. B. ORLER. *The influence of temperature and strain rate on the constitutive and damage responses of polychlorotrifluoroethylene (PCTFE, Kel-F 81)*. Polymer **47**(21), 7506–7518 (2006).
- [135] F. DAI, S. HUANG, K. XIA, AND Z. TAN. *Some fundamental issues in dynamic compression and tension tests of rocks using split Hopkinson pressure bar*. Rock Mechanics and Rock Engineering **43**(6), 657–666 (2010).
- [136] G. BOISOT, L. LAIARINANDRASANA, J. BESSON, AND G. FOND, C. HOCHSTETTER. *Experimental investigation and modelling of volume change induced by void growth in polyamide 11*. International Journal of Solids and Structures **48**(19), 2642–2654 (2011).

- [137] S. AHZI, A. MAKRAÏ, R. V. GREGORY, AND D. D. EDIE. *Modeling of deformation behavior and strain-induced crystallization in poly(ethylene terephthalate) above the glass transition temperature*. Mechanics of Materials **35**(12), 1139–1148 (2003).
- [138] M. JERIDI, H. CHOUCHE, V. KERYVIN, AND K. SAÏ. *Multi-mechanism modeling of amorphous polymers*. Mechanics Research Communications **56**, 136–142 (2014).
- [139] E. H. LEE AND D. T. LIU. *Finite strain elastic plastic theory with application to plane wave analysis*. Journal of Applied Physics **38**(1), 19–27 (1967).
- [140] M. C. BOYCE, G. G. WEBER, AND D. M. PARKS. *On the kinematics of finite strain plasticity*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids **37**(5), 647–665 (1989).
- [141] L. ANAND. *On H. Hencky's approximate strain-energy function for moderate deformations*. Journal of Applied Mechanics **46**(1), 78–82 (1979).
- [142] L. ANAND. *Moderate deformations in extension-torsion of incompressible isotropic elastic materials*. Journal of the Mechanics and Physics of Solids **34**(3), 293–304 (1986).
- [143] A. COHEN. *A padé approximant to the inverse langevin function*. Rheologica Acta **30**(3), 270–273 (1991).
- [144] J. BICERANO. *Prediction of polymer properties*. Marcel Dekker, Inc., New York, 3rd edition edition (2002).
- [145] D. W. VAN KREVELEN AND K. TE NIJENHUIS. *Properties of polymers : their correlation with chemical structure ; their numerical estimation and prediction from additive group contributions*. Elsevier Science & Technology Books, Amsterdam, 4th edition edition (2009).
- [146] M. C. BOYCE. *Large inelastic deformation of glassy polymers*. Thèse de Doctorat, Massachusetts Institute of Technology (1986).
- [147] Simulia. *ABAQUS Theory Manual*.
- [148] Simulia. *ABAQUS User Subroutines Reference Manual*.
- [149] N. M. AMES, V. SRIVASTAVA, S. A. CHESTER, AND L. ANAND. *A thermo-mechanically coupled theory for large deformations of amorphous polymers. Part II : Applications*. International Journal of Plasticity **25**(8), 1495–1539 (2009).
- [150] V. SRIVASTAVA, S. A. CHESTER, N. M. AMES, AND L. ANAND. *A thermo-mechanically-coupled large-deformation theory for amorphous polymers in a temperature range which spans their glass transition*. International Journal of Plasticity **26**, 1138–1182 (2010).
- [151] M. GARG, A. D. MULLIKEN, AND M. C. BOYCE. *Temperature rise in polymeric materials during high rate deformation*. Journal of Applied Mechanics **75**(1), 011009 (8 pages) (2008).
- [152] Y. RÉMOND. *Constitutive modelling of viscoelastic unloading of short glass fibre-reinforced polyethylene*. Composites Science and Technology **65**(3-4), 421–428 (2005).
- [153] A. ANDRIYANA, N. BILLON, AND L. SILVA. *Mechanical response of a short fiber-reinforced thermoplastic : Experimental investigation and continuum mechanical modeling*. European Journal of Mechanics - A/Solids **29**(6), 1065–1077 (2010).
- [154] V. T. PHAM, L. ROCHA DA SILVA, H. DIGONNET, C. COMBEAUD, N. BILLON, AND T. COUPEZ. *Formulation mixte vitesse-déplacement pour viscoélasticité - Confrontation expérimentale et numérique*. In *10e colloque national en calcul des structures*, page 8 p., Giens, France May (2011).
- [155] S. PATLAZHAN AND Y. RÉMOND. *Structural mechanics of semicrystalline polymers prior to the yield point : a review*. Journal of Materials Science **47**(19), 6749–6767 (2012).

- [156] O. GUEGUEN, S. AHZI, A. MAKRAZI, AND S. BELOUETTAR. *A new three-phase model to estimate the effective elastic properties of semi-crystalline polymers : Application to PET*. Mechanics of Materials **42**(1), 1–10 (2010).
- [157] K. HIZOUM, Y. RÉMOND, N. BAHLOULI, V. OSHMYAN, S. PATLAZHAN, AND S. AHZI. *Non linear strain rate dependency and unloading behavior of semi-crystalline polymers*. Oil & Gas Science and Technology - Rev. IFP **61**(6), 743–749 (2006).
- [158] S. PATLAZHAN, K. HIZOUM, AND Y. RÉMOND. *Stress-strain behavior of high-density polyethylene below the yield point : Effect of unloading rate*. Polymer Science Series A **50**(5), 507–513 (2008).
- [159] K. HIZOUM, Y. RÉMOND, AND S. PATLAZHAN. *Coupling of nanocavitation with cyclic deformation behavior of high-density polyethylene below the yield point*. Journal of Engineering Materials and Technology **133**(3), 030901 (2011).
- [160] C. DUVAL. *Plastiques et automobile - D’hier à aujourd’hui*. Techniques de l’ingénieur **AM 3 590**, 1–17 (2007).
- [161] Y. WANG, E. M. ARRUDA, AND P. A. PRZYBYLO. *Characterization and constitutive modeling of a plasticized poly(vinyl chloride) for a board range of strain rates*. Rubber Chemistry and Technology **74**(4), 560–573 (2001).
- [162] M. AUBIN AND R. E. PRUD’HOMME. *Analysis of the glass transition temperature of miscible polymer blends*. Macromolecules **21**(10), 2945–2949 (1988).
- [163] X. LU AND R. A. WEISS. *Relationship between the glass transition temperature and the interaction parameter of miscible binary polymer blends*. Macromolecules **25**(12), 3242–3246 (1992).
- [164] G. PEZZIN, F. ZILIO-GRANDI, AND P. SANMARTIN. *The dependence of the glass transition temperature on molecular weight for polyvinylchloride*. European Polymer Journal **6**(7), 1053–1061 (1970).
- [165] J. H. GIBBS AND E. A. DIMARZIO. *Nature of the glass transition and the glassy state*. The Journal of Chemical Physics **28**(3), 373–383 (1958).
- [166] T. SOMCYNKY AND D. PATTERSON. *The glass transition and the reduced temperature of polymeric liquids*. Journal of Polymer Science **62**(174), S151–S155 (1962).
- [167] K. T. VARUGHESE, G. B. NANDO, S. K. DE, AND S. K. SANYAL. *Tensile and tear failure of plasticized poly (vinyl chloride)/epoxidized natural rubber miscible blends*. Journal of Materials Science **24**(10), 3491–3496 (1989).
- [168] C.-S. HA, Y. KIM, W.-K. LEE, W.-J. CHO, AND Y. KIM. *Fracture toughness and properties of plasticized PVC and thermoplastic polyurethane blends*. Polymer **39**(20), 4765–4772 (1998).
- [169] J. KELMAN, S. N. ROBERTS, W. W. KNIGHT, R. REED, D. R. PINSON, AND A. F. BRAULT. *Cushioned automotive interior trim part and process or making same*, October (1997). US Patent 5,679,296.
- [170] F. RHEINLANDER AND R. D. JR. RHODES. *Skin for automotive air bag cover panel formed by casting different plastic materials*, January (1999). US Patent 5,863,064.
- [171] E. H. ZEIGLER. *Propellant composition for automotive safety applications*, April (1996). US Patent 5,507,891.
- [172] J. A. GARDNER AND P. S. WILSON. *Process of making decorative automotive interior trim articles with cast integral light-stable covering containing invisible tear seam*, April (2001). US Patent 6,210,614.

- [173] M. J. KENDALL AND C. R. SIVIOUR. *Strain rate dependence in plasticized and un-plasticized PVC*. EPJ Web of Conferences **26**, 02009 (2012).
- [174] M. J. KENDALL AND C. R. SIVIOUR. *Rate dependence of poly(vinyl chloride), the effects of plasticizer and time-temperature superposition*. Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Science **470**(2167) (2014).
- [175] A. D. MULLIKEN, S. Y. SOONG, M. C. BOYCE, AND R. E. COHEN. *High-rate thermomechanical behavior of poly(vinyl chloride) and plasticized poly(vinyl chloride)*. Journal de Physique IV France **134**, 217–223 (2006).
- [176] L. M. MATUANA, C. B. PARK, AND J. J. BALATINECZ. *The effect of low levels of plasticizer on the rheological and mechanical properties of polyvinyl chloride/newsprint-fiber composites*. Journal of Vinyl and Additive Technology **3**(4), 265–273 (1997).
- [177] A. MARCILLA AND M. BELTRÀN. *Effect of the plasticizer concentration and heating rate on the thermal decomposition behaviour of PVC plastisols. Kinetic analysis*. Polymer Degradation and Stability **60**(1), 1–10 (1998).
- [178] M. A. DA SILVA, M. G. A. VIEIRA, A. C. G. MAÇUMOTO, AND M. M. BEPPU. *Polyvinyl-chloride (PVC) and natural rubber films plasticized with a natural polymeric plasticizer obtained through polyesterification of rice fatty acid*. Polymer Testing **30**(5), 478–484 (2011).
- [179] G. CECCORULLI, M. PIZZOLI, AND M. SCANDOLA. *Composition dependence of the glass transition temperature of polymer-diluent systems : 1. experimental evidence of a dual behaviour in plasticized PVC*. Polymer **28**(12), 2077–2080 (1987).
- [180] T. REHM. *The compression set of plasticized PVC*. Journal of Vinyl and Additive Technology **3**(4), 286–291 (1997).
- [181] V. J. R. R. PITA, E. E. M. SAMPAIO, AND E. E. C. MONTEIRO. *Mechanical properties evaluation of PVC/plasticizers and PVC/thermoplastic polyurethane blends from extrusion processing*. Polymer Testing **21**(5), 545–550 (2002).
- [182] A. ELICEGUI, J. J. DEL VAL, V. BELLENGER, AND J. VERDU. *A study of plasticization effects in poly(vinyl chloride)*. Polymer **38**(7), 1647–1657 (1997).
- [183] S. THOMAS, B. KURIAKOSE, B. R. GUPTA, AND S. K. DE. *Scanning electron microscopy studies on tensile, tear and abrasion failure of plasticized poly (vinyl chloride) and copolyester thermoplastic elastomers*. Journal of Materials Science **21**(2), 711–716 (1986).
- [184] J. O. HILL. *For better thermal analysis and calorimetry*. International Conference for Thermal Analysis (1991).
- [185] J. GRENET AND B. LEGENDRE. *Analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC)*. Techniques de l'ingénieur **P 1 205**, 1–27 (2010).
- [186] J. FAERBER. *Microscopie électronique à balayage, microanalyse X par sonde électronique*. Technical report Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg (IPCMS) (2004).
- [187] J. RUSTE. *Microscopie électronique à balayage - Principe et équipement*. Techniques de l'ingénieur **P 865v3**, 1–19 (2013).
- [188] F. GONG, M. FENG, C. ZHAO, S. ZHANG, AND M. YANG. *Thermal properties of poly(vinyl chloride)/montmorillonite nanocomposites*. Polymer Degradation and Stability **84**(2), 289–294 (2004).
- [189] Q. YAO AND C. A. WILKIE. *Thermal degradation of PVC in the presence of polystyrene*. Journal of Vinyl and Additive Technology **7**(1), 26–36 (2001).

- [190] Y. SOUDAIS, L. MOGA, J. BLAZEK, AND F. LEMORT. *Coupled DTA - TGA - FT-IR investigation of pyrolytic decomposition of EVA, PVC and cellulose*. Journal of Analytical and Applied Pyrolysis **78**(1), 46–57 (2007).
- [191] R. BACALOGLU AND M. FISCH. *Degradation and stabilization of poly(vinyl chloride). I. kinetics of the thermal degradation of poly(vinyl chloride)*. Polymer Degradation and Stability **45**(3), 301–313 (1994).
- [192] R. BACALOGLU AND M. FISCH. *Degradation and stabilization of poly(vinyl chloride). III. correlation of activation enthalpies and entropies for dehydrochlorination of chloroalkanes, chloroalkenes and poly(vinyl chloride)*. Polymer Degradation and Stability **45**(3), 325–338 (1994).
- [193] R. BACALOGLU AND M. FISCH. *Degradation and stabilization of poly (vinyl chloride). IV. molecular orbital calculations of activation enthalpies for dehydrochlorination of chloroalkanes and chloroalkenes*. Polymer Degradation and Stability **47**(1), 9–32 (1995).
- [194] R. BACALOGLU AND M. FISCH. *Degradation and stabilization of poly (vinyl chloride). V. reaction mechanism of poly(vinyl chloride) degradation*. Polymer Degradation and Stability **47**(1), 33–57 (1995).
- [195] A. MARONGIU, T. FARAVELLI, G. BOZZANO, M. DENTE, AND E. RANZI. *Thermal degradation of poly(vinyl chloride)*. Journal of Analytical and Applied Pyrolysis **70**(2), 519–553 (2003).
- [196] J. D. MENCZEL AND R. B. PRIME. *Thermal analysis of polymers, fundamental and applications*. Wiley (2009).
- [197] T. STERZYŃSKI, J. TOMASZEWSKA, K. PISZCZEK, AND K. SKÓRCZEWSKA. *The influence of carbon nanotubes on the PVC glass transition temperature*. Composites Science and Technology **70**(6), 966–969 (2010).
- [198] A. LINDSTRÖM AND M. HAKKARAINEN. *Environmentally friendly plasticizers for poly(vinyl chloride) - Improved mechanical properties and compatibility by using branched poly(butylene adipate) as a polymeric plasticizer*. Journal of Applied Polymer Science **100**(3), 2180–2188 (2006).
- [199] N. N. DIOH, A. IVANKOVIC, P. S. LEEVERS, AND J. G. WILLIAMS. *The high strain rate behaviour of polymers*. Journal de Physique IV France **4**(C8), C8–119–C8–124 (1994).
- [200] N. N. DIOH, A. IVANKOVIC, P. S. LEEVERS, AND J. G. WILLIAMS. *Stress wave propagation effects in split Hopkinson pressure bar tests*. Proceedings of the Royal Society of London A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences **449**(1936), 187–204 (1995).
- [201] K. WORSCHCH, P. WEDL, F. LOFFELHOLZ, B. WEGEMUND, AND W. ERWIED. Process for the stabilization of polyvinyl chloride and stabilizer compositions, July (1982). US Patent 4,338,226.
- [202] W. ERWIED, B. WEGEMUND, P. WEDL, AND K. WORSCHCH. Stabilization of poly(vinyl chloride), May (1986). US Patent 4,590,233.
- [203] W. ERWIED, H. UPADEK, AND B. WEGEMUND. Stabilized polyvinyl chloride molding compositions, August (1987). US Patent 4,686,255.
- [204] K. WORSCHCH, P. WEDL, E. FLEISCHER, F. LOEFFELHOLZ, AND M. JAECKEL. Stabilizer for chlorine-containing olefin polymers, a process for its production and polymers containing the stabilizer, April (1991). US Patent 5,010,123.

Annexe A

Conventions ABAQUS pour l'écriture de la *VUMAT*

Comme tous programmes interfacés, ABAQUS/Explicit possède des conventions indispensables en ce qui concerne le stockage des composantes des tenseurs et gradients. Lorsque l'on utilise une loi de comportement pré-définie dans le logiciel, il n'est pas nécessaire de prendre connaissance de ces conventions. En revanche, lorsque l'on choisit d'introduire une loi de comportement, chargement..., il est nécessaire de s'intéresser à la manière dont vont être passés les arguments d'entrées/sorties. Ceux-ci diffèrent entre les cas 2D et 3D, et entre les tenseurs symétriques et non-symétriques.

L'ordre des composantes est donné par une permutation naturelle des indices du tenseur. Les composantes normales sont données en premier. Les composantes tangentielles sont ensuite stockées en commençant par la composante 12.

A.1 Cas 2D

Dans le cas 2D, les tenseurs symétriques s'écrivent avec seulement 4 composantes et les tenseurs non-symétriques s'écrivent avec 5 composantes. Ils sont stockés dans ABAQUS/Explicit suivant A.1 :

$$\sigma = \begin{pmatrix} \sigma_{11} \\ \sigma_{22} \\ \sigma_{33} \\ \sigma_{12} \end{pmatrix} \quad \mathbb{F} = \begin{pmatrix} \mathbb{F}_{11} \\ \mathbb{F}_{22} \\ \mathbb{F}_{33} \\ \mathbb{F}_{12} \\ \mathbb{F}_{21} \end{pmatrix} \quad (\text{A.1})$$

A.2 Cas 3D

Dans le cas 3D, les tenseurs symétriques sont déterminés avec 6 composantes et les tenseurs non-symétriques s'écrivent avec 9 composantes. Ils sont stockés dans ABAQUS suivant A.2 :

$$\sigma = \begin{pmatrix} \sigma_{11} \\ \sigma_{22} \\ \sigma_{33} \\ \sigma_{12} \\ \sigma_{23} \\ \sigma_{13} \end{pmatrix} \quad \mathbb{F} = \begin{pmatrix} \mathbb{F}_{11} \\ \mathbb{F}_{22} \\ \mathbb{F}_{33} \\ \mathbb{F}_{12} \\ \mathbb{F}_{23} \\ \mathbb{F}_{31} \\ \mathbb{F}_{21} \\ \mathbb{F}_{32} \\ \mathbb{F}_{13} \end{pmatrix} \quad (\text{A.2})$$

A.3 Conclusion

La formulation et le stockage vectoriel présentent des avantages certain sur la formulation matricielle. En effet, cette formulation permet de réduire le stockage dans le cas de tenseurs symétriques et dans le cas de modèles 2D. Cela permet également de réduire le nombre d'opérations puisque dans le cas de tenseurs symétriques les opérations sur les composantes tangentielles ne sont plus fait qu'une seule fois. Dans le cas 2D, on évite de faire les opérations qui nécessite de sommer ou de multiplier par 0.

En revanche, ce formalisme nécessite d'écrire toutes les opérations matricielles "à la main" puisque les opérations disponibles dans les librairies Fortran, telles que la multiplication de deux matrices, ou encore la transposée d'une matrice, ne sont plus adaptées. De plus, le programmeur se doit de respecter les conventions de stockage. Il faut également souligner le fait que cette écriture rendra le code moins lisible d'où l'intérêt de le commenter avec soin.

Si l'utilisateur décide de ne pas travailler directement avec le formalisme vectorielle donné par le logiciel mais décide d'utiliser le formalisme matricielle, qui est plus naturel, il doit passer tous les tenseurs et gradients dont il a besoin sous forme matricielle et, à la fin de son sous-programme *VUMAT* passer le tenseur des Contraintes de Cauchy sous forme vectorielle pour le stockage et le calcul par ABAQUS/Explicit. Bien qu'ainsi le programme soit plus lisible, ces étapes vont avoir pour conséquence d'augmenter le stockage et le temps de calcul.

Annexe B

Caractérisation du comportement rhéologique et thermomécanique d'un mélange de PVC

B.1 Introduction

Depuis les années 1970, la part de matériaux polymères dans l'industrie du transport a fortement augmenté comme on peut le voir sur la figure B.1(a). La consommation de plastique en France représentait 15 % en 2001 dont 9 % pour l'industrie automobile [160], ce qui représente 12 à 13 % de la masse d'un véhicule. L'utilisation des matériaux polymères dans l'industrie automobile a permis non seulement de réduire la masse des véhicules, et, par conséquent, de diminuer la consommation d'essence, mais également d'augmenter les performances aussi bien en termes d'absorption du bruit, de résistance au choc qu'en termes de durée de vie, tout en permettant d'avoir des pièces esthétiques économiquement viables. De nombreux polymères sont utilisés lors de la fabrication d'un véhicule. On peut voir sur la figure B.1(b) qu'une part très importante des polymères utilisés concerne les polyoléfinés, polypropylène et polyéthylène, ainsi que les polyuréthanes et polyamides. Cependant, le véritable enjeu économique se situe au niveau des matières techniques qui représentent un quart des matériaux utilisés.

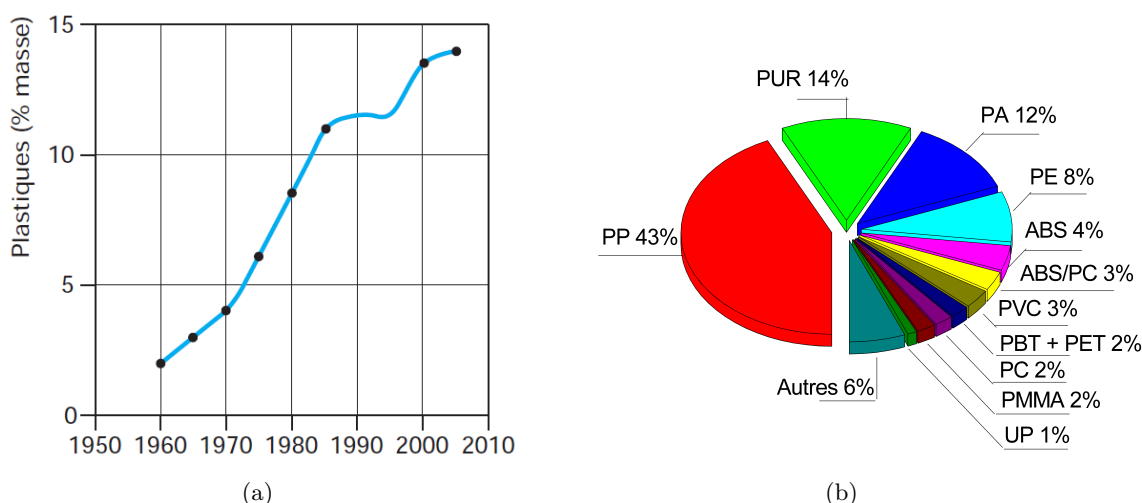


Figure B.1 – (a) Évolution de la part des plastiques dans les véhicules automobiles. (b) Répartition des différentes matières utilisées pour l'automobile en Europe en 2003. D'après [160].

Parmi les polymères utilisés par l'industrie automobile, le poly(chlorure de vinyle) (PVC) est largement utilisé aussi bien en tant que garniture intérieure des véhicules que pour des applications de sécurité. À température ambiante, le PVC présente un comportement vitreux. Plusieurs études [161–163] ont mesuré la température de transition vitreuse du PVC autour de 82 °C. Cependant, Pezzin *et al.* [164] ont montré que la température de transition vitreuse du PVC était fortement dépendante à sa masse moléculaire. Pour des échantillons ayant le même degré de syndiotacticité, ils ont montré

que la température de transition vitreuse augmentait rapidement avec la masse moléculaire et atteignait une valeur limite T_g^∞ égale à 78 °C. La dépendance à la masse moléculaire de la température de transition vitreuse peut être expliquée par la rigidité des chaînes polymères et par la théorie du volume libre [165, 166]. La température de transition vitreuse du PVC mesurée par Wang *et al.* [161], Aubin et Prud'homme [162] et Lu et Weiss [163] est 4 °C supérieure à la température limite mesurée par Pezzin *et al.* [164]. Ce résultat pourrait être expliqué par une augmentation de la fréquence lors de la mesure de la transition vitreuse. Cependant, cette information étant absente des articles cités, elle ne pourra être confirmée.

Dû à un comportement vitreux à température ambiante, le PVC utilisé dans l'industrie automobile est généralement modifié par l'ajout de plastifiants dans le but d'obtenir un PVC flexible. Ce type de PVC, appelé PVC plastifié (PPVC), permet de minimiser les effets du temps, de la route et des conditions de conduite. La plastification du PVC consiste à mixer de la résine PVC en poudre avec des éléments stabilisateurs, des plastifiants, lubrifiants et du dioctylphthalate pour palier au manque de stabilité thermique du PVC aux températures de transformation [167, 168]. Cette préparation est mélangée pendant 15 min dans un banc malaxeur à une vitesse de 100 rpm et à une température de 110 °C [167].

L'étude de la réponse mécanique, des effets du plastifiant et de la morphologie du PPVC sont d'un intérêt particulier tant pour la recherche académique que pour les industriels dus à l'utilisation répandu du PPVC pour des applications de résistance aux chocs dans l'industrie automobile [169–172]. Kendall et Siviour [173, 174] ont étudié la dépendance à la vitesse de déformation d'un PVC et d'un PPVC avec un fort taux de plastifiant, pour des chargements quasi-statiques et dynamiques, à température ambiante. Ils ont également étudié la sensibilité à la température de ces deux matériaux pour un taux de déformation constant de 10^{-2} s^{-1} . À température ambiante, quelque soit la vitesse de déformation, le PVC présente un comportement vitreux, tandis que pour le PPVC, un changement de comportement est observé entre les chargements quasi-statiques et dynamiques. Ainsi, pour de faibles vitesses de déformation, le PPVC est dans un état caoutchoutique alors que pour de grandes vitesses de déformation, il présente un comportement plus vitreux. Cependant, contrairement au PVC, l'adoucissement plastique n'est pas observé pour le PPVC à température ambiante. Pour une vitesse de déformation de 10^{-2} s^{-1} , l'étude de la sensibilité à la température menée par Kendall et Siviour [173, 174], pour des températures comprises entre –60 °C et 80 °C, montre un changement de comportement dans la réponse mécanique du PPVC. Pour des températures inférieures à –40 °C, le PPVC présente un comportement vitreux. La contrainte seuil est clairement identifiée par un maximum local suivie par un adoucissement plastique. Entre –20 °C et 0 °C, le comportement mécanique du PPVC est viscoélastique-viscoplastique. Pour des températures supérieures à 21 °C, le comportement mécanique du PPVC est identifié comme étant caoutchoutique. Ils ont également montré que la contrainte seuil est bilinéairement dépendante au logarithme de la vitesse de déformation.

Wang *et al.* [161] ont étudié la dépendance à la vitesse de déformation du PPVC. Ils ont mis en évidence le comportement viscoélastique du PPVC à température ambiante lors de tests de charge/décharge en compression à vitesses de déformation constantes.

Mulliken *et al.* [175] ont réalisé des tests d'analyse mécanique dynamique (DMA) et des tests de compression quasi-statiques et dynamiques pour un PVC et un PPVC avec un taux de plastifiant de 20 %. Ils ont trouvé que, pour l'ajout de 20 % de plastifiant dans un mélange de PVC, la température de transition vitreuse diminue à 22 °C. De plus, pour ce taux de plastifiant, à température ambiante et pour de fortes vitesses de déformations, le PPVC présente un comportement vitreux. La contrainte seuil est suivie par un adoucissement plastique contrairement au PPVC étudié par Kendall et Siviour [173, 174]. Ainsi, le taux de plastifiant est d'une grande importance pour les propriétés mécaniques du mélange de PVC.

Les effets de la teneur en plastifiant sur les propriétés matériau du PVC ont été examinés dans différentes études [176, 177] et ont fait l'objet de plusieurs observations. L'ajout de plastifiant dans les mélanges de PVC contribue à diminuer la température de transition vitreuse [163, 178, 179]. De plus, alors que l'ajout de plastifiant améliore l'élongation à rupture et augmente l'énergie à rupture et le coefficient de Poisson, cela contribue à diminuer le module d'élasticité, la contrainte seuil et la

dureté du matériau [167, 168, 180–182]. Ainsi, le comportement mécanique du PVC plastifié présente une triple dépendance à la vitesse de déformation, à la température et à la teneur en plastifiant.

Varughese *et al.* [167] et Thomas *et al.* [183] ont observé les faciès de rupture d'un PPVC ayant subi un essai de traction et de déchirement en utilisant la microscopie électronique à balayage. Pour les tests de traction, les faciès de rupture, de type ductile, sont principalement dus à une rupture en cisaillement avec un fort taux de déformation plastique. Pour les essais de déchirement, les faciès de rupture du PPVC présentent des vagues sinusoïdales.

Dans cette étude, le comportement mécanique d'un nouveau PVC plastifié est étudié sur de larges gammes de températures et de vitesses de déformation, pour des chargements quasi-statiques et dynamiques, dans le but de concevoir de nouveaux composants pour l'industrie automobile. Au cours de la fabrication du matériau, des gradients de température peuvent apparaître générant ainsi des inhomogénéités dans l'épaisseur du matériau et entraînant une différence dans les propriétés matériau. Voulant connaître le meilleur candidat pour l'application au choc visée, le constructeur Faurecia nous a fourni trois différentes épaisseurs de ce nouveau matériau, nous permettant ainsi d'évaluer les effets de la transformation du PPVC. Des analyses thermique, rhéologique et mécanique détaillées ont été réalisées afin d'étudier le comportement du matériau sur de larges gammes de températures et de vitesses de déformation. La réponse mécanique du PPVC pour les trois épaisseurs a été obtenue et liée au comportement intrinsèque du matériau. Dans le but d'expliquer les différences observées entre les trois épaisseurs, le faciès de rupture d'échantillons provenant d'éprouvettes de traction ont été observés au microscope électronique à balayage. Ces diverses analyses permettront de conclure quant-à la meilleure épaisseur du composant pour l'application visée.

B.2 Matériau étudié

Le PVC plastifié utilisé dans cette étude est composé de 50 % de PVC, 40 % de plastifiant et 10 % d'additifs. Le constructeur Faurecia a fourni le matériau sous forme de feuille avec trois épaisseurs différentes. Au cours de la mise en œuvre du matériau, des gradients de températures apparaissent introduisant ainsi des inhomogénéités dans l'épaisseur du matériau. Afin d'évaluer l'influence du procédé de fabrication sur les propriétés du matériau, chacune des épaisseurs sera considérée indépendamment les unes des autres. Ainsi, nous considérerons étudier trois matériaux différents. Par la suite, les échantillons sont référencés sous l'appellation TH1, TH2 et TH3 dont les épaisseurs normalisées sont respectivement de 1, 1.25 et 1.5.

B.3 Procédure expérimentale

B.3.1 Caractérisation thermique : Analyse thermogravimétrique

La thermogravimétrie est une technique expérimentale d'étude macroscopique de la matière. L'ICTAC (International Confederation for Thermal Analysis and Calorimetry) a établi, en anglais, la définition suivante de la thermogravimétrie [184] :

Thermogravimetry Analysis (TGA) or Thermogravimetry (TG) : measurement of the change of the mass of the sample while it is subjected to a temperature regime.

En français, on le traduit par :

Analyse thermogravimétrique (ATG) ou thermogravimétrie (TG) : mesure de la variation de masse d'un échantillon lorsqu'il est exposé à un régime de température.

La notion de régime de température est volontairement large permettant ainsi d'inclure les programmations linéaires, modulées ou autres.

La thermogravimétrie permet de quantifier la perte d'éléments constituant les matériaux et de surveiller leurs stabilités thermiques.

Les mesures ont été effectuées sur le modèle TGA/DSC1 commercialisé par METTLER TOLEDO et équipé du système STAR^e. Une masse de 15 à 25 mg de matière est déposée dans un creuset. Une ultra microbalance pèse cette masse sous un flux d'air de 40 °C à 1000 °C avec une vitesse de chauffe de 20 °C min⁻¹.

B.3.2 Caractérisation physique : Analyse calorimétrique différentielle

L'analyse calorimétrique différentielle (DSC) mesure la différence de flux de chaleur entre l'échantillon et la référence en fonction de la température ou du temps.

Les différences de flux de chaleur résultent des quantités de chaleur absorbées et libérées par l'échantillon en raison d'effets thermiques tels que la fusion, la cristallisation, les réactions chimiques... Les changements de phases observés sont des processus endothermiques (absorption de chaleur) ou exothermique (dégagement de chaleur). La différence de température ΔT qui s'établit entre l'échantillon et la référence est proportionnelle à la quantité de chaleur échangée Q au cours de la réaction :

$$Q = mc_p\Delta T, \quad (\text{B.1})$$

où c_p est la capacité thermique massique et m la masse de l'échantillon.

Les essais de calorimétrie ont été menés sur le modèle DSC1 commercialisé par METTLER TOLEDO et équipé du système STAR^e et d'un capteur HSS8. Il est constitué d'un four unique régulé en température et contenant deux creusets. Dans l'un des creusets repose l'échantillon à tester. Dans l'autre creuset repose la référence. De manière générale, le creuset contenant la référence est laissé vide. Une schématisation du dispositif expérimental de la DSC est présentée sur la figure B.2.

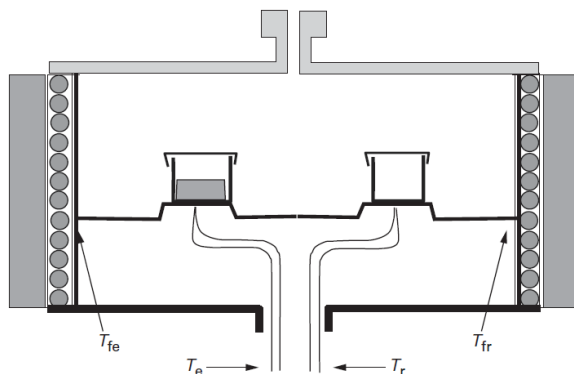


Figure B.2 – Dispositif expérimental de DSC. T_e , T_{fe} , T_r et T_{fr} représentent respectivement les températures de l'échantillon, de la paroi du four côté échantillon, de la référence et de la paroi du four côté référence [185].

La quantité de matière nécessaire pour réaliser une analyse calorimétrique est faible, ainsi la masse de nos échantillons est comprise entre 10 et 20 mg. Pour chaque épaisseur, on effectue deux cycles de chauffe sur une gamme de températures allant de -150 °C à 250 °C pour une vitesse de chauffe de 10 K min⁻¹.

La différence de température entre les deux creusets pendant le programme de température (chauffe et refroidissement) est enregistrée. Le flux de chaleur nécessaire pour maintenir l'échantillon et la référence à la même température est alors déterminé. Les thermogrammes représentent donc le flux de chaleur en fonction de la température.

B.3.3 Analyse thermomécanique

B.3.3.1 Essais de traction quasi-statique

Les trois épaisseurs de PPVC sont caractérisées en traction uniaxiale en utilisant une machine d'essai de traction hydraulique INSTRON 3384, équipée d'une chambre thermique, présentée sur la



Figure B.3 – Machine hydraulique de traction quasi-statique INSTRON équipée d'une chambre thermique.

figure B.3, permettant de faire des essais à basses ou hautes températures. Les mesures, par la cellule de charge, du déplacement de la traverse ΔL et de la force F permettent de déterminer le comportement du matériau :

$$\begin{cases} \varepsilon_n = \frac{\Delta L}{L_0} \\ \sigma_n = \frac{F}{S_0} \end{cases}, \quad (\text{B.2})$$

avec σ_n la contrainte nominale, ε_n la déformation nominale, L_0 la longueur initiale et S_0 la section initiale de la zone utile de l'éprouvette. Dans le but d'étudier le comportement du matériau en grandes déformations, il est préférable d'utiliser les grandeurs dites vraies, contraintes vraies σ_v et déformations vraies ε_v , qui considèrent la section et longueur actuelles du matériau et non plus l'état initial :

$$\begin{cases} \varepsilon_v = \ln(1 + \varepsilon_n) \\ \sigma_v = \sigma_n(1 + \varepsilon_n) \end{cases}. \quad (\text{B.3})$$

$$(\text{B.4})$$

Les tests ont été conduits à quatre températures (-30°C , 0°C , 23°C et 85°C) et à deux vitesses de déplacement de la traverse constantes (50 mm et 500 mm). La longueur utile de l'éprouvette étant comprise entre 25 et 65 mm, les essais ont été menés pour plusieurs vitesses de déformation. Cependant, seules les courbes de comportement pour $\dot{\varepsilon} = 0.03 \text{ s}^{-1}$ et $\dot{\varepsilon} = 0.3 \text{ s}^{-1}$ seront présentées. Lors des essais en température, lorsque la surface de l'échantillon est à la température souhaitée, on attend 15 min avant de procéder à l'essai ce qui permet de s'assurer que la surface et le cœur de l'échantillon sont bien à la même température [5]. Les éprouvettes de PPVC présentent deux états de surface différents comme le montre la figure B.4(a) : une surface brillante et une surface mate. La géométrie des éprouvettes de traction est présentée sur la figure B.4(b).

Les essais ont été menés jusqu'à rupture des échantillons ou jusqu'au déplacement maximal de la traverse permis par la machine. Pour chaque essai, plusieurs propriétés mécaniques sont analysées : le module d'Young (E), la contrainte seuil (σ_y) et la déformation seuil (ε_y), la contrainte à rupture (σ_R) et l'allongement à rupture ($A\%$) lorsque la rupture de l'éprouvette est observée.

Le module élastique correspond à la pente initiale de la courbe contrainte-déformation. En l'absence de maximum local, la limite d'élasticité est estimée comme étant le point d'intersection entre la pente initiale (élastique) et la seconde pente issue de l'écoulement plastique. Les propriétés à rupture (σ_R et $A\%$) correspondent aux données obtenues lors de la rupture des éprouvettes.

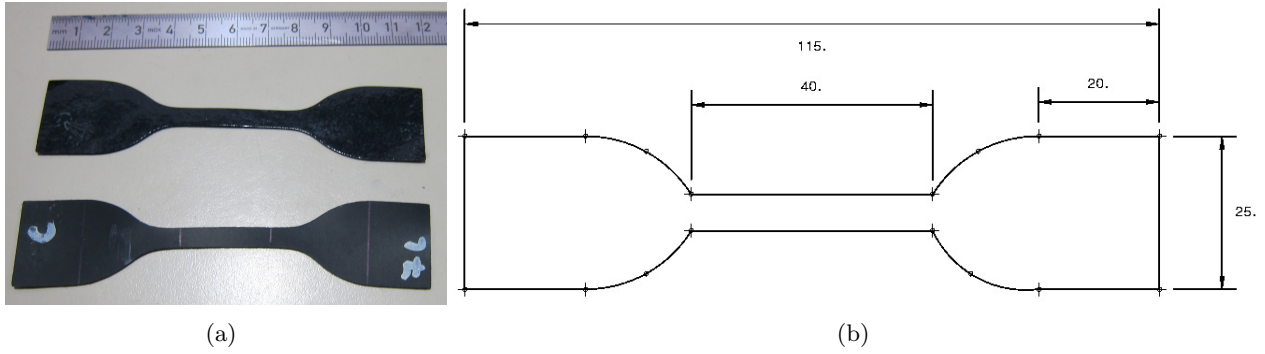


Figure B.4 – (a) Éprouvettes de traction en PPVC. (b) Schéma et dimensions en mm des échantillons de PPVC utilisés pour les essais de traction quasi-statique sur machine hydraulique.

B.3.3.2 Essais de compression dynamique

Les essais de compression dynamique ont été menés sur le système des barres d'Hopkinson (SHPB : Split Hopkinson Pressure Bar) développé au Département Mécanique du laboratoire ICube et présenté sur la figure B.5(a). Ce dispositif expérimental, schématisé sur la figure B.5(b), permet de caractériser le comportement mécanique des matériaux lorsqu'ils sont soumis à de grandes vitesses de déformation.

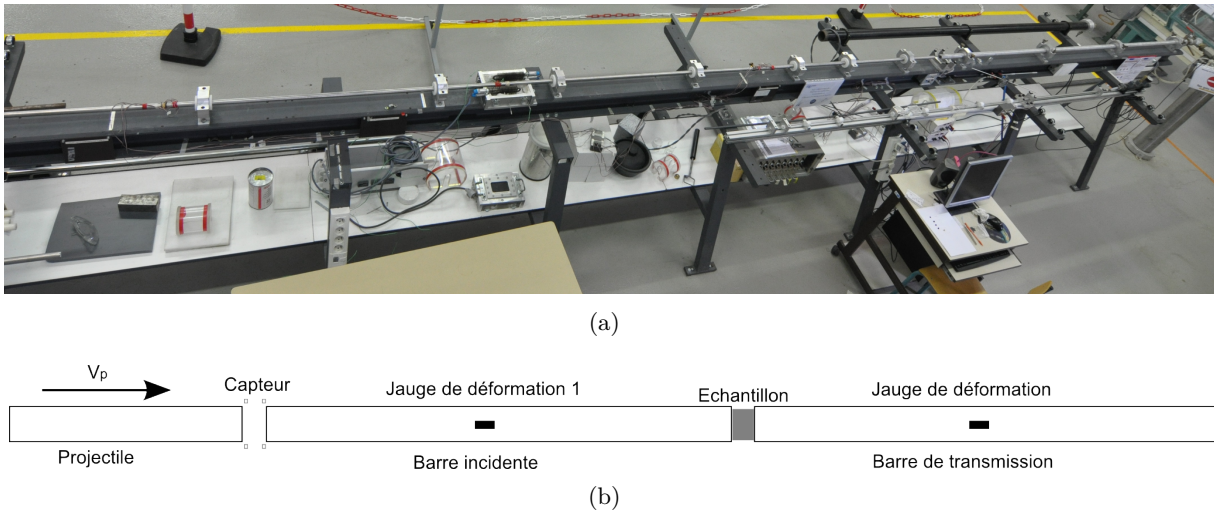


Figure B.5 – (a) Dispositif expérimental présent au laboratoire ICube, Département Mécanique. (b) Représentation schématisée du système des barres d'Hopkinson.

Le dispositif expérimental est composé d'un projectile, d'une barre incidente (ou entrante) et d'une barre de transmission (ou sortante). Les barres incidente et transmise sont faites en acier 316L et mesurent 3 m de long pour un diamètre de 22 mm. Le projectile, fait du même acier que les barres, mesure 22 mm de diamètre pour 0.5 m ou 1 m de long. Un échantillon circulaire du matériau étudié est placé entre les barres incidente et transmise, au centre de la section des barres.

Le projectile impacte la barre incidente à une vitesse V_p générant ainsi une onde de compression longitudinale incidente $\varepsilon_i(t)$ qui se propage le long de la barre jusqu'à son extrémité, où une partie de l'onde est réfléchiée dans la barre incidente $\varepsilon_r(t)$ et l'autre partie transmise à l'échantillon $\varepsilon_{t,e}(t) = \varepsilon_{i,e}(t)$. Cette onde transmise se propage dans l'échantillon, jusqu'à sa rencontre avec la barre de transmission, où elle est, à son tour, décomposée en une onde réfléchiée dans l'échantillon $\varepsilon_{r,e}(t)$ et une onde transmise dans la barre de transmission $\varepsilon_t(t)$. Les jauges de déformation, collées au centre des barres incidente et transmise, mesurent les signaux des ondes incidente, réfléchiée, pour les jauges présentes sur la barre incidente, et transmise, pour les jauges collées sur la barre de transmission.

En accord avec la théorie de propagation des ondes dans un milieu élastique, on définit la contrainte nominale σ_n , la déformation nominale ε_n et la vitesse de déformation nominale $\dot{\varepsilon}_n$ par :

$$\begin{cases} \dot{\varepsilon}_n(t) = -\frac{2C_B}{L_E(0)}\varepsilon_r(t) \\ \varepsilon_n(t) = -\frac{2C_B}{L_E(0)}\int_0^t \varepsilon_r(t) dt \\ \sigma_n(t) = E_B \frac{S_B}{S_E(0)}\varepsilon_t(t) \end{cases} \quad , \quad (B.5)$$

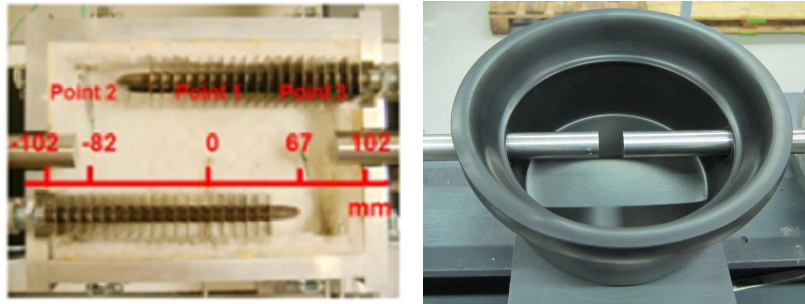
avec C_B la célérité des ondes dans les barres, E_B le module d'Young des barres, S_B la section des barres, $L_E(0)$ et $S_E(0)$ respectivement la longueur initiale et la section initiale de l'échantillon.

L'échantillon subissant de grandes déformations, on exprime la contrainte, la déformation et la vitesse de déformation en grandeurs vraies, respectivement σ_v , ε_v et $\dot{\varepsilon}_v$:

$$\begin{cases} \dot{\varepsilon}_v(t) = \frac{\dot{\varepsilon}_n(t)}{1 - \varepsilon_n(t)} \\ \varepsilon_v(t) = -\ln(1 - \varepsilon_n(t)) \\ \sigma_v(t) = \sigma_n(t)(1 - \varepsilon_n)^{2\nu} \end{cases} \quad , \quad (B.6)$$

avec ν le coefficient de Poisson de l'échantillon.

Pour les essais en température, deux dispositifs, présentés sur la figure B.6, ont été mis en place afin de chauffer ou refroidir l'échantillon et une zone restreinte des barres incidente et transmise. Pour les essais à hautes températures, un four équipé de deux résistances symétriques est utilisé. Pour les essais à basses températures, une chambre thermique en PVC expansé est utilisée. Le refroidissement de l'échantillon est réalisé à l'aide d'azote liquide. L'ajout manuel d'alcool technique permet de maintenir l'équilibre thermique du système. La présence de quatre thermocouples dans chacun des dispositifs permet un contrôle de la température au cours de l'essai.



(a) Dispositif pour les fortes températures (b) Dispositif pour les basses températures

Figure B.6 – Dispositifs mis en place au sein du Département Mécanique du laboratoire ICube afin d'effectuer des tests de compression dynamique sur barres d'Hopkinson pour des (a) hautes températures et (b) basses températures.

Les échantillons, d'épaisseur TH1, TH2 et TH3, utilisés pour les essais de compression dynamique, mesurent 10 mm de diamètre. Les tests ont été menés à température ambiante, à -30°C et à 85°C pour des vitesses de déformation supposées constantes durant l'essai et allant de 1000 à 7000 s^{-1} .

B.3.4 Observations microscopiques : Microscopie électronique à balayage

Afin d'essayer d'expliquer les différences de comportement, mécanique et thermique, observées entre les trois matériaux, des observations microscopiques ont été réalisées sur un microscopique électronique à balayage (MEB ou SEM pour Scanning Electron Microscopy). De plus, de la microanalyse

X a permis de déterminer la composition chimique de l'échantillon analysé.

La microscopie électronique à balayage permet d'obtenir des images de la topographie des surfaces d'un grand nombre de matériaux solides, à grande profondeur de champ et à des échelles allant de la loupe ($\times 10$) à celle du microscope électronique à transmission ($\times 500.000$ ou plus) [186, 187]. Un MEB équipé de détecteur approprié permet de faire de la microanalyse X, analyse élémentaire locale.

Le principe de la microscopie électronique à balayage consiste à balayer un échantillon avec un faisceau d'électrons très fin. À partir des électrons secondaires émis, il permet de former une image point par point. Ainsi, l'image MEB obtenue est une image reconstituée.

Des analyses microscopiques ont été effectuées sur les trois matériaux à l'aide d'un MEB JEOL 6700F dans le but d'observer et de localiser la présence de défauts. De plus, dans l'idée d'analyser les modifications morphologiques subites par le matériau suite à un effort, deux zones d'une éprouvette de traction seront observées pour chacun des matériaux étudiés. Le premier échantillon provient de la section utile, qui sous l'effet de l'effort appliqué aura subi un allongement. Le second échantillon est pris dans la zone des mors. Par conséquent, cet échantillon est supposé ne pas avoir été déformé à la suite de l'essai, et est donc considéré comme un échantillon témoin. Afin de minimiser le développement d'une zone plastique, les échantillons de PPVC ont été plongés dans de l'azote liquide avant d'être fracturés. Une microanalyse X est réalisée afin de déterminer la composition chimique du matériau en utilisant une spectroscopie à rayons X à dispersion d'énergie (EDS pour Energy Dispersive (x-ray) Spectrometry) couplée au MEB. Une fine couche d'iridium est déposée à la surface des échantillons permettant ainsi leur métallisation. Les surfaces analysées sont perpendiculaires à la direction de chargement.

B.4 Résultats et discussion

B.4.1 Analyse thermogravimétrique

La figure B.7 présente les résultats de l'analyse thermogravimétrique effectuée sur les trois épaisseurs d'échantillons du PVC plastifié. Le pourcentage de masse (TG) ainsi que la dérivée de la masse (DTG) sont décrits en fonction de la température pour chaque matériau sur les figures B.7(a)-(c). Dans le but de comparer les trois matériaux entre eux, les trois thermogrammes sont superposés sur la figure B.7(d).

Des études menées sur du PVC pure [178, 188] montrent la présence de deux pics dans la dégradation du PVC. De manière similaire, le PVC plastifié présente également deux pics, donc deux étapes de dégradation. La première étape de la dégradation, correspondant à une perte de masse de l'ordre de 70-76 %, apparaît autour de 330 °C. Rapidement après la fin de cette première étape, une seconde étape intervient autour de 450 °C, pour une perte de masse comprise entre 15 et 19 %, comme on peut le voir sur les figures B.7(a)-(c). À la suite de ces deux étapes, la dégradation totale de l'échantillon, en termes de perte de masse, est d'environ 90 %. La perte de masse associée à chacune des étapes de la dégradation, pour chaque épaisseur, est présentée dans le tableau B.1. Grâce aux courbes de DTG, on peut constater que chacun des échantillons est thermiquement stable, puisque le taux de perte de masse est presque nul pour des températures inférieures à 250 °C. À partir de cette température, le taux de perte de masse chute et atteint un minimum de $-15.1 \text{ \% min}^{-1}$ à 333.7 °C pour TH1, $-13.6 \text{ \% min}^{-1}$ à 325.6 °C pour TH2 et $-13.2 \text{ \% min}^{-1}$ à 330.1 °C pour TH3.

Perte de masse	TH1	TH2	TH3
1 ^{ère} étape	76.01 %	70.16 %	74.14 %
2 ^{nde} étape	15.87 %	18.96 %	16.04 %
dégradation totale	91.88 %	89.12 %	90.18 %

Tableau B.1 – Perte de masse associée à chaque étape de la dégradation du PVC plastifié.

Chaque étape de la dégradation correspond à un phénomène physico-chimique qui se produit à une température, ou gamme de températures, donnée. En accord avec [178, 189–195], la première étape

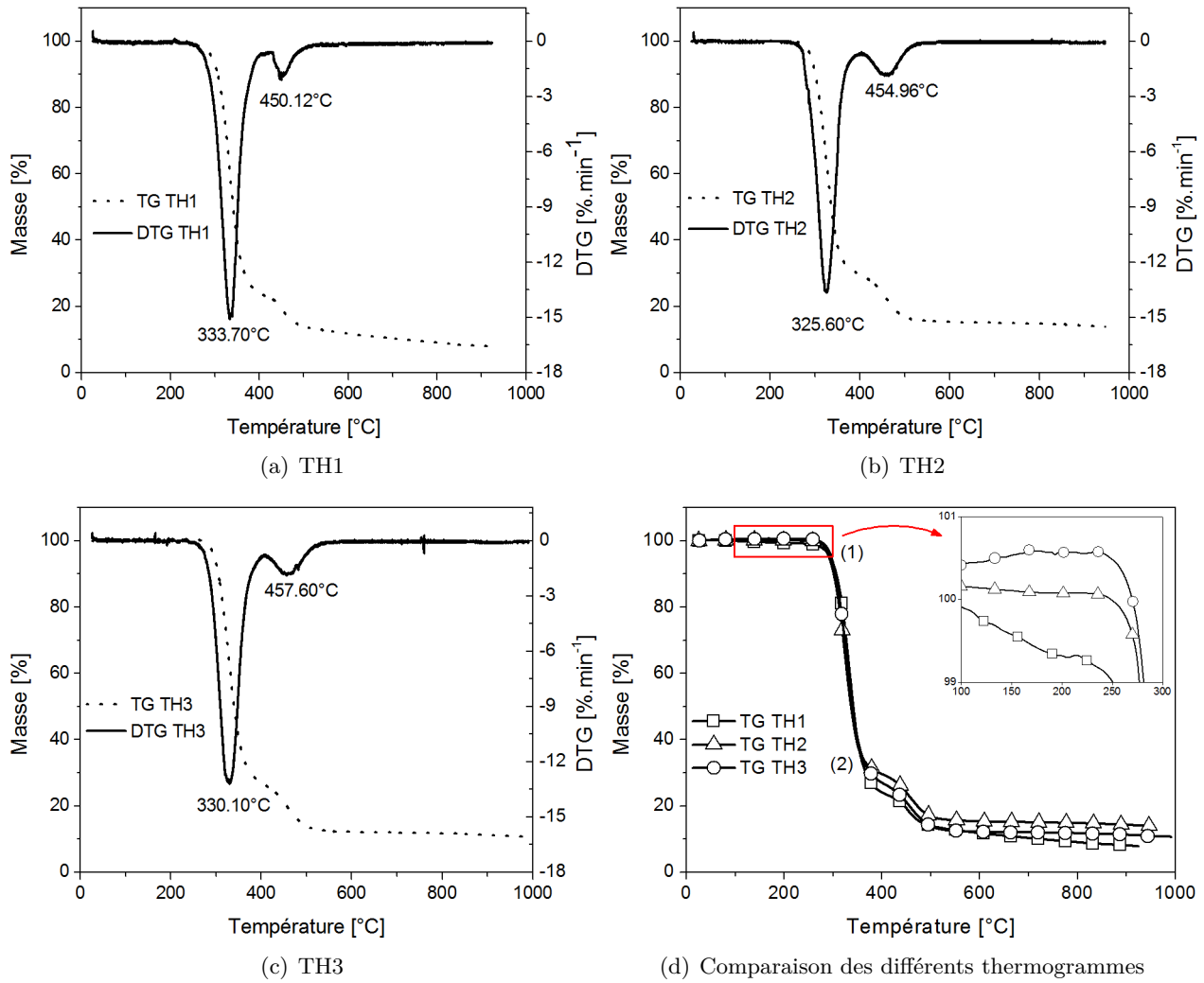


Figure B.7 – Courbes de thermogravimétrie réalisées pour les trois épaisseurs du PVC plastifié.

de la dégradation correspond à une déhydrochlorination du PVC et une décoloration de la résine avec la formation d'acide chlorhydrique (HCl) et de structures polyènes. L'évolution du taux de HCl prend place sur le squelette du polymère. La décoloration, quant-à elle, est due à la formation de séquences polyènes composées de 5 à 25 doubles liaisons carbone-carbone. Pour un monomère de PVC, la réaction chimique est décrite par l'équation B.7 :



La formation de séquences polyènes indique que, suite à la première formation d'une molécule de HCl, la réaction se propage aux monomères voisins jusqu'à l'interruption aléatoire de la réaction.

La seconde étape de la dégradation du PPVC implique une réorganisation structurale des résidus de polyènes. Les molécules de polyènes vont subir des réactions de cyclisation. Le résultat de ces réactions est, d'une part, la formation d'espèces aromatiques et aromatiques alkyles et, d'autre part, la réticulation de la structure du polymère.

Les courbes thermogravimétriques obtenues pour chaque matériau sont superposées sur la figure B.7(d). De nombreuses différences sont constatées entre les différents matériaux. Bien que peu notable, la première différence intervient au début de l'essai. Pour le matériau TH1, on constate une perte de masse de l'ordre de 1 % entre 100 °C et 250 °C alors que celle-ci est nulle pour les matériaux TH2 et TH3. Cette perte de masse initiale peut être attribuée à une perte d'humidité dans le PPVC [196]. Le début de la première étape de la dégradation semble similaire pour les trois épaisseurs. Cependant, la différence de perte de masse à la fin de cette étape, de l'ordre de ± 3 %, va avoir

une incidence directe sur la deuxième étape de la dégradation comme on peut le constater sur la figure B.7(d). Cette différence de perte de masse peut être attribuée à une variation, entre les trois matériaux, de la concentration de HCl formée au cours de la première étape. Cependant, seule une mesure de la concentration des différentes espèces formées au cours de la dégradation peut valider une telle hypothèse. À la fin de la dégradation, pour des températures comprises entre 500 °C et 1000 °C, on observe une perte de masse de l'ordre de 3 % pour les matériaux TH2 et TH3, alors qu'elle est de 6 % pour le matériau TH1. En dépit de la différence de perte de masse entre les deux étapes de dégradation, la dégradation totale du matériau est approximativement la même pour les trois matériaux. De plus, en accord avec la littérature [178, 188], on peut noter que la présence de plastifiants et d'additifs dans le PVC retarde la dégradation du matériau.

B.4.2 Analyse calorimétrique différentielle

La figure B.8(a) présente les courbes calorimétriques obtenues pour chacune des épaisseurs du PPVC étudié pour deux cycles de montée en température allant de -150 °C à 250 °C. La première montée en température permet de supprimer l'histoire thermique des échantillons. La seconde permet de déterminer les différentes transitions thermiques dans le matériau. Dans le but d'étudier la sensibilité de la température de transition vitreuse au procédé de fabrication du matériau, on superpose, sur la figure B.8(b), les courbes calorimétriques correspondantes à la seconde montée en température de chaque matériau et on effectue un agrandissement dans la zone de transition vitreuse.

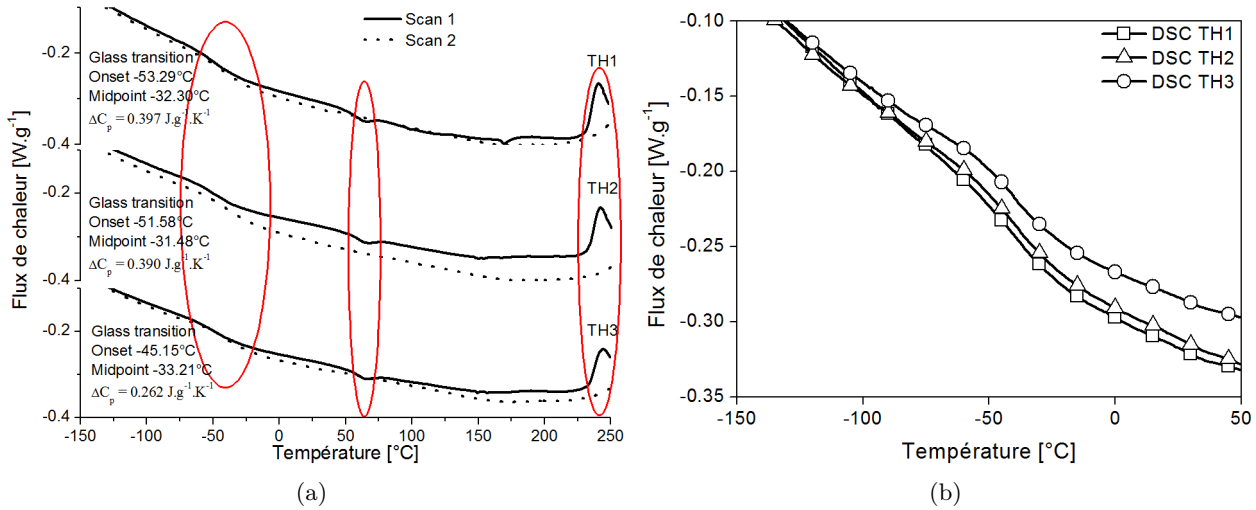


Figure B.8 – (a) Courbes de calorimétrie obtenues pour les deux montée en température et pour chaque épaisseur du PPVC. (b) Agrandissement autour de la température de la transition vitreuse pour la seconde montée en température.

Sur la figure B.8(a), la première transition apparaît autour de -41 °C sur le premier balayage en température et autour de -32 °C sur le second. Elle est caractérisée par une déviation endothermique due au passage progressif de l'état vitreux à l'état caoutchoutique. Ainsi, cette première transition est associée à la zone de transition vitreuse. On peut alors déterminer la température de transition vitreuse en utilisant la méthode des tangentes, couramment employée, qui consiste à définir la température de transition vitreuse comme étant le point milieu de la déviation endothermique ("midpoint"). Cependant, certains auteurs définissent la température de transition vitreuse comme étant le point de départ de la déviation endothermique ("onset"). La variation de capacité calorifique, au passage de la T_g est également calculée en utilisant l'équation B.8 :

$$\Delta c_p = \frac{\Delta W}{m v_\theta} \quad (\text{B.8})$$

avec Δc_p la variation de capacité calorifique en J.g⁻¹.K⁻¹, ΔW la variation du flux de chaleur en W, m la masse en g et v_θ la vitesse de balayage en température en K.s⁻¹.

Si on prend comme température de transition vitreuse, la température "onset" sur la figure B.8(a), on trouve que la T_g augmente avec l'épaisseur. Cependant, si l'on considère que la T_g correspond au point milieu de la déviation endothermique ("midpoint"), la même température de transition vitreuse est trouvée pour tous les matériaux à ± 1 °C. Entre TH1, TH2 et TH3, on constate une forte disparité dans la variation de capacité calorifique. De plus, la variation de capacité calorifique diminue avec l'épaisseur. Un agrandissement autour de la température de transition vitreuse pour la seconde montée en température est présenté sur la figure B.8(b) en superposant les trois matériaux. Ainsi, il semblerait que le matériau TH1 absorbe davantage de chaleur que le matériau TH3.

Pour chacune des matériaux, un pic endothermique apparaît aux alentours de 70 °C sur le premier scan de la figure B.8(a). Wang *et al.* [161] observe le même phénomène et l'attribue à la température de transition vitreuse du PVC vierge. En effet, différentes études expérimentales [164, 178, 197, 198] ont déterminé une température de transition vitreuse du PPVC comprise entre 70 °C et 95 °C. De plus, on peut noter que cette transition n'apparaît pas sur la courbe calorimétrique correspondante à la seconde montée en température.

Sur la figure B.8(a), une dernière transition est observée vers 240 °C pour la première montée en température. Cette transition est caractérisée par un pic exothermique. Bien qu'elle n'apparaisse pas sur la seconde montée en température, due à l'arrêt de l'essai à 250 °C, on observe une légère augmentation du flux de chaleur dès 240 °C jusqu'à la fin de l'essai. Ceci laisse présager de la présence d'un pic exothermique à une température supérieure à 250 °C. En accord avec les résultats de thermogravimétrie (voir figure B.7), ce pic correspondrait au début de la dégradation du matériau.

B.4.3 Comportement thermomécanique : sensibilité à la température

B.4.3.1 Tests de traction quasi-statique

La sensibilité à la température du PPVC pour une vitesse de déformation de 0.03 s^{-1} est présentée sur la figure B.9(a). Afin d'analyser l'influence du procédé de fabrication sur le comportement mécanique du matériau, les figures B.9(b)-(d) présentent les courbes contrainte vraie-déformation vraie pour trois températures (-30 °C, 23 °C et 85 °C). Les courbes contrainte nominale-déformation nominale sont représentées en insertion sur ces figures. Les essais ont été effectués jusqu'à rupture de l'éprouvette excepté pour la température de 85 °C due à la limitation de la machine de traction.

Comme illustré sur la figure B.9(a), le PPVC présente une forte sensibilité à la température. Ainsi, on distingue deux domaines de comportement dont l'importance dépend de la température. Le premier domaine correspondrait à un comportement élastique-viscoélastique qui intervient au début des courbes de comportement pour de petites déformations. Cette première étape diminue dramatiquement lorsque la température augmente. Le second domaine est marqué par une non-linéarité des courbes contrainte vraie-déformation vraie jusqu'à rupture de l'éprouvette. Cette phase est caractérisée par un important durcissement structural quelque soit la température et la vitesse de déformation. À partir de la température ambiante, on note que le matériau présente un comportement hyperviscoélastique. En se référant aux analyses calorimétriques qui ont été effectuées, on s'aperçoit qu'on est en plein cœur de la zone caoutchoutique comme le montre la figure B.8(a). -30 °C (voir figure B.9(b)) se trouve dans la région de transition vitreuse et 0 °C au début du plateau caoutchoutique. Ainsi, cela explique la disparition de la zone élastique sur les courbes contrainte vraie-déformation vraie à 23 °C et 85 °C (voir figures B.9(c)-(d)). Sur les figures B.9(b)-(d), on constate également que la sensibilité du matériau au procédé de fabrication diminue lorsque la température augmente.

Afin de visualiser et de quantifier la sensibilité à la température des propriétés mécaniques, pour deux vitesses de déformations, 0.03 s^{-1} et 0.3 s^{-1} , le module élastique (voir figure B.10(a)), la contrainte seuil et la contrainte à rupture (voir figure B.10(b)), la déformation seuil et la déformation à rupture (voir figure B.10(c)) sont tracés sur la figure B.10.

Pour chaque matériau, la sensibilité à la température du module élastique est tracée sur la figure B.10(a). Pour chaque température testée, quelque soit le matériau, toutes les données expérimentales sont superposées excepté à -30 °C. Cette température est proche de la température de transition vitreuse et peut expliquer cette différence. Au-delà de cette température, le matériau est dans un état caoutchoutique. Une évolution non-linéaire est observée, sur la figure B.10(a), entre le module élas-

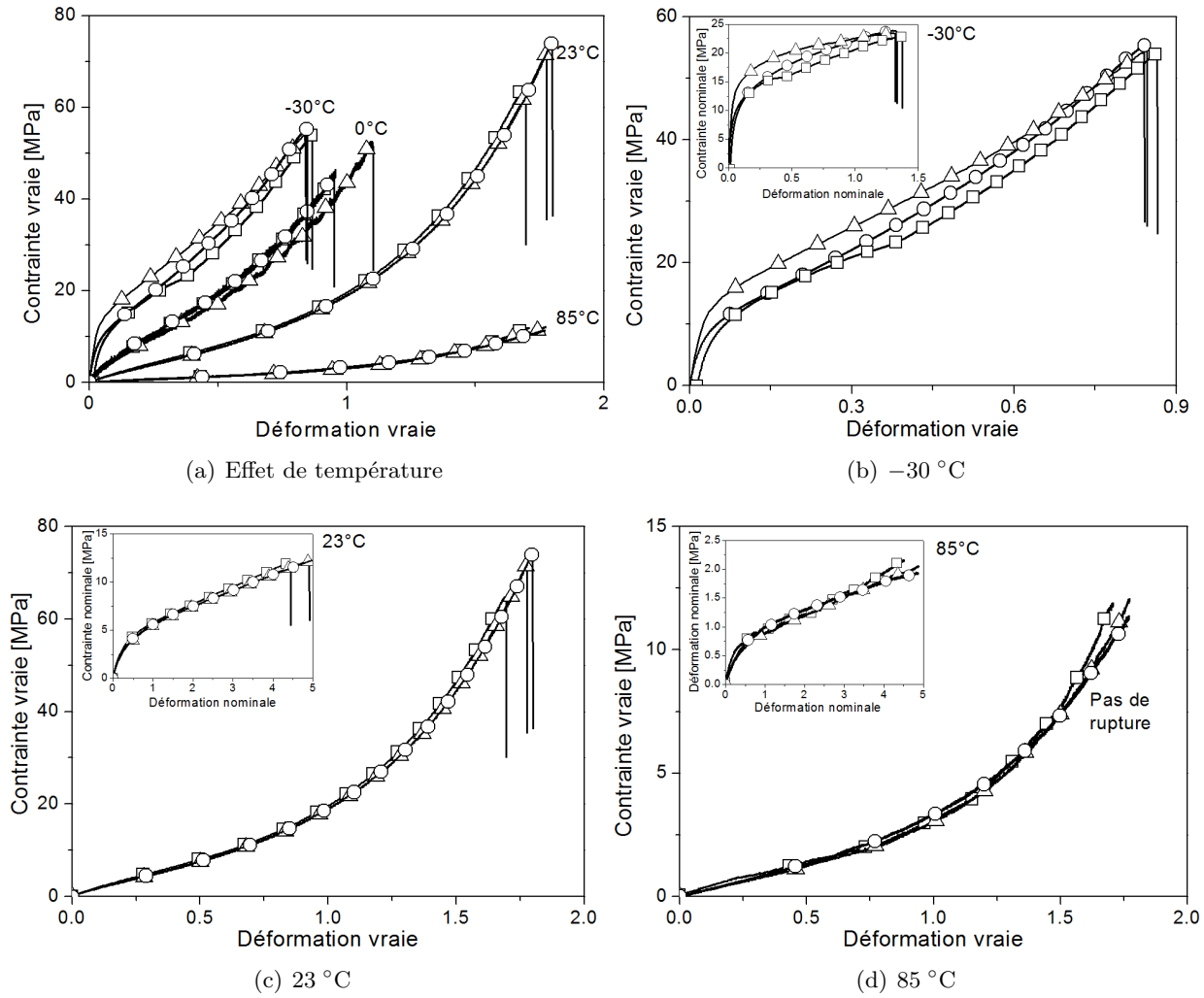


Figure B.9 – Courbes contraintes vraies-déformations vraies expérimentales obtenues lors d’essais de traction quasi-statique à 0.03 s^{-1} pour les trois épaisseurs ($\square$ TH1, $\triangle$ TH2, $\circ$ TH3).

tique et la température. Pour une vitesse de déformation de 0.3 s^{-1} , à basses températures, le module élastique n’a pu être mesuré dû à une limitation de la machine. Les courbes contrainte-déformation obtenues ne permettent pas de déterminer le module d’élasticité. Dans la région caoutchoutique, entre 23°C et 85°C , les données expérimentales pour les deux vitesses de déformation sont superposées. Ainsi, la sensibilité à la vitesse de déformation du PPVC n’est pas significative dans la région caoutchoutique.

Les sensibilités à la température de la contrainte seuil et de la contrainte à rupture sont présentées sur la figure B.10(b) pour les trois matériaux. La contrainte seuil décroît de façon non-linéaire lorsque la température augmente. Les valeurs de la contrainte seuil sont superposées excepté à -30°C en accord avec les remarques faites précédemment pour le module d’élasticité. La contrainte à rupture, quant-à elle, est linéairement dépendante de la température, et toutes les valeurs sont superposées. La contrainte à rupture augmente linéairement lorsque la température croît dans la gamme de températures testées. À -30°C , on peut voir que la contrainte à rupture est moins sensible à la variation du procédé de fabrication que la contrainte seuil. Ainsi, dans la région de transition vitreuse, les effets de température sont moins importants pour la contrainte à rupture que pour la contrainte seuil. À 85°C , les échantillons n’ont pas cassé. Le déplacement maximal de la machine a été atteint avant la rupture des échantillons. De plus, on peut noter qu’une augmentation de la vitesse de déformation contribue à décroître la contrainte à rupture du matériau entre -30°C et 23°C . La vitesse de déformation a également un impact important sur la contrainte seuil puisque, on peut clairement voir, sur

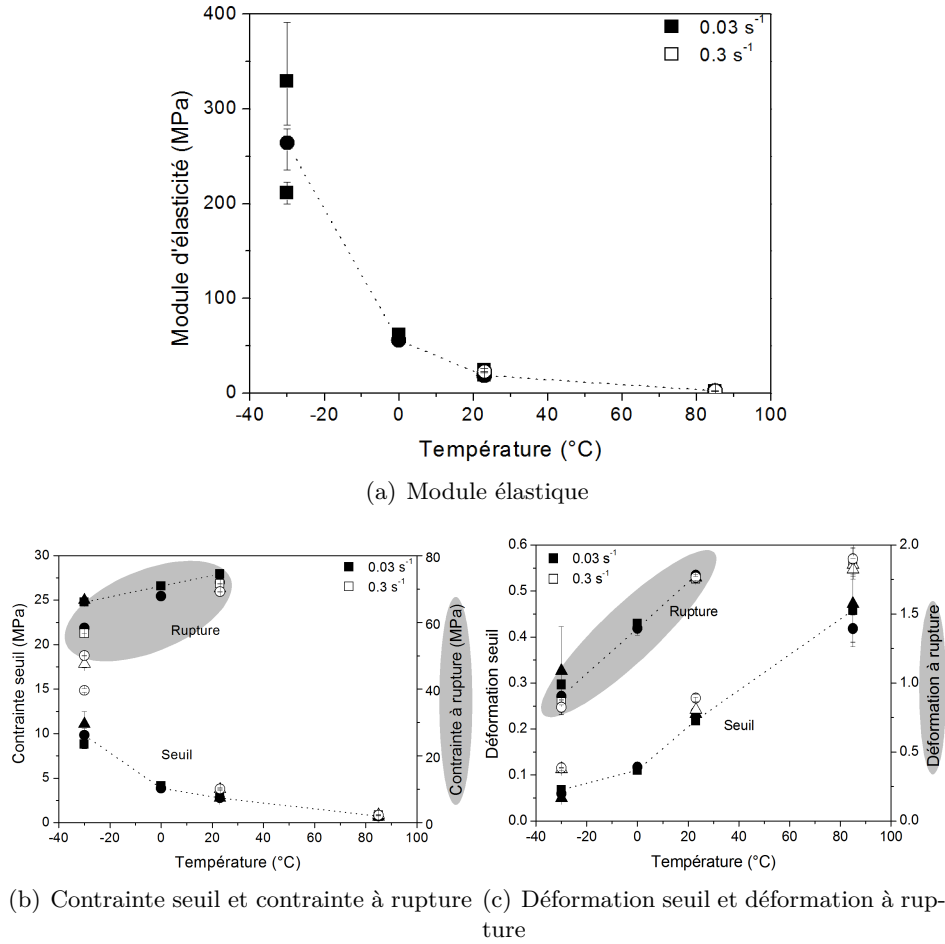


Figure B.10 – Sensibilité à la température à 0.03 s^{-1} et 0.3 s^{-1} du (a) module élastique, (b) contrainte seuil et contrainte à rupture et (c) déformation seuil et déformation à rupture ($\square$ TH1, $\triangle$ TH2, $\circ$ TH3).

la figure B.10(b), que celle-ci augmente de manière significative avec la vitesse de déformation.

Sur la figure B.10(c), la sensibilité à la température de la déformation seuil et de l'élongation à rupture sont tracées pour deux vitesses de déformation : 0.03 s^{-1} et 0.3 s^{-1} . Ces propriétés augmentent avec la température. La déformation seuil présente une dépendance non-linéaire à la température où un changement de pente est observé à 0°C . Au contraire, l'élongation à rupture montre une dépendance linéaire à la température et ne semble être influencée ni par la vitesse de déformation ni par la température de transition vitreuse. Ainsi, les mécanismes de déformation impliqués dans le comportement seuil et le comportement à rupture sont différents. Le mélange de PVC avec des plastifiants conduit à la formation d'un réseau physique entre les deux matériaux. Ce réseau physique entraîne le glissement des chaînes polymères et, par conséquent, une forte élongation à rupture pour les matériaux plastifiés.

B.4.3.2 Tests de compression dynamique

Dans le but d'analyser le comportement mécanique du PPVC soumis à des chargements dynamiques, des tests de compression dynamique ont été réalisés en utilisant le système des barres d'Hopkinson présent au sein du Département Mécanique du laboratoire ICube. Pour les trois matériaux, les courbes contrainte vraie-déformation vraie sont présentées pour trois températures et deux gammes de vitesses de déformation. Pour obtenir ces vitesses de déformation, différentes longueurs de projectile ont été utilisées : un projectile de 0.5 m de long pour les faibles vitesses de déformation et un projectile de 1 m de long pour les grandes vitesses de déformation. On notera que la déformation à la fin du test n'est pas pertinente. Ainsi, le niveau de déformation atteint à la fin du chargement de compression

dynamique ne sera pas analysé puisqu'on ne peut pas le lier avec la rupture des échantillons.

Les tests de compression dynamique ont été réalisés à trois températures : à proximité de la transition vitreuse, à $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ (voir figure B.11(a)), dans la région caoutchoutique, à température ambiante (voir figure B.11(b)) et à $85\text{ }^{\circ}\text{C}$ (voir figure B.11(c)). La figure B.11 montre que les courbes contrainte vraie-déformation vraie pour chaque épaisseur sont fortement dépendantes de la vitesse de déformation et de la température. À basses températures, sur la figure B.11(a), le PPVC présente le comportement mécanique classique des polymères dans leur région vitreuse : la réponse élastique, linéaire, est suivie par une brève réponse viscoélastique qui apparaît avant la contrainte d'écoulement du matériau caractérisé par un maximum local. Après ce seuil, le matériau a un comportement viscoplastique. La viscoplasticité du matériau peut être séparée en deux domaines : un adoucissement plastique suivi par un durcissement structural dû à un alignement des segments de chaînes polymères.

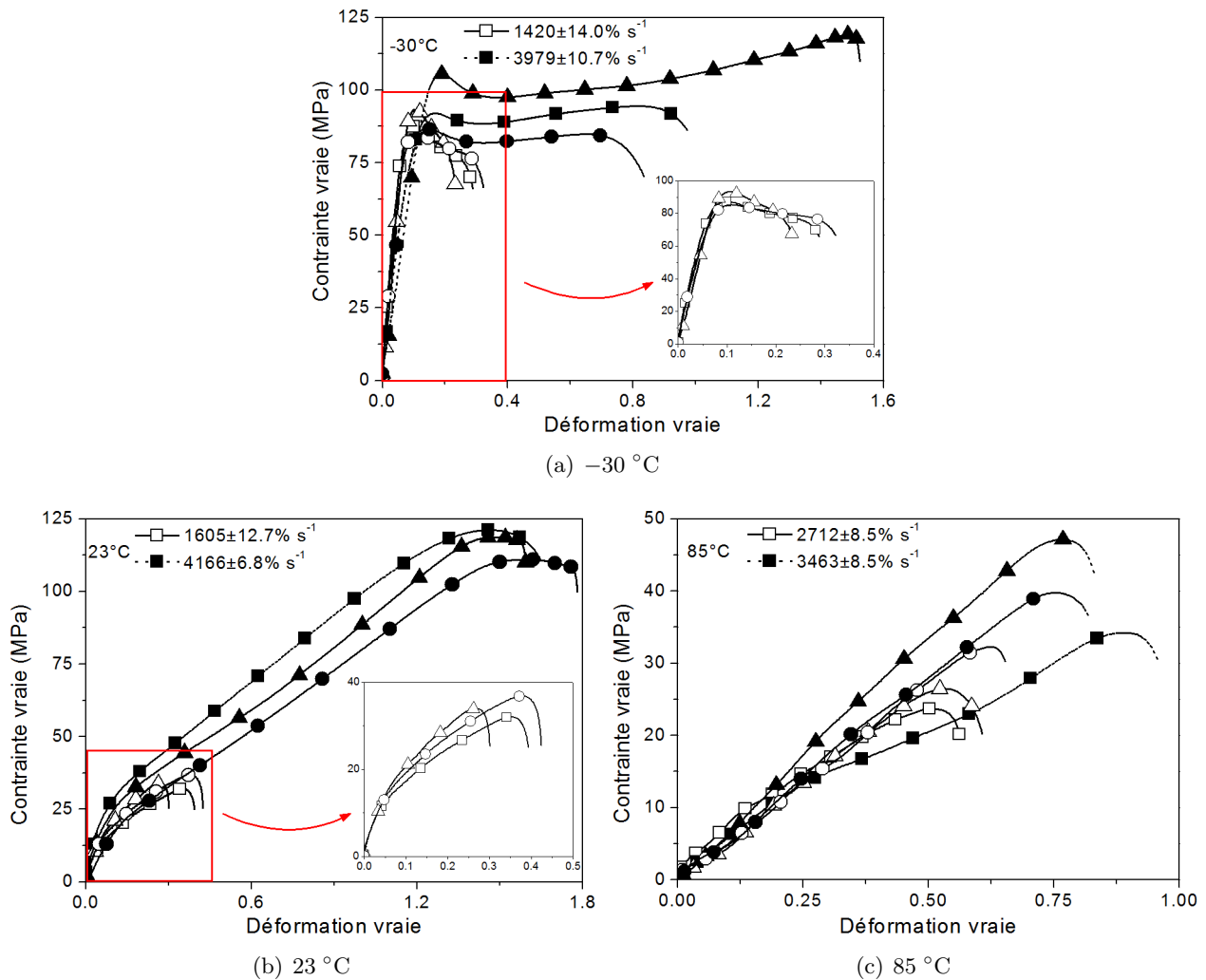


Figure B.11 – Courbes contraintes vraies-déformations vraies expérimentales obtenues lors d'essais de compression dynamique pour les trois épaisseurs ($\square$ TH1, $\triangle$ TH2, $\circ$ TH3).

À température ambiante, sur la figure B.11(b), le PPVC présente un comportement viscoélastique-viscoplastique. Dans ce cas, la contrainte seuil n'est plus caractérisée par un maximum local. Elle est définie comme étant le point d'intersection des pentes définissant les domaines élastique et plastique. À $85\text{ }^{\circ}\text{C}$, le matériau est dans un état caoutchoutique. En comparant les figures B.11(a), (b) et (c), la sensibilité à la température du PPVC est clairement identifiée par l'évolution du domaine élastique et de l'écoulement plastique. De plus, le comportement du PPVC passe graduellement d'un comportement viscoélastique-viscoplastique avec un adoucissement plastique à un comportement viscoélastique-viscoplastique sans adoucissement plastique suivi par un comportement hyperviscoélastique.

Pour tous les tests effectués, on peut noter que la sensibilité à la vitesse de déformation du matériau TH3 n'est pas significative (voir figure B.11) contrairement aux matériaux TH1 et TH2. Sur les figures B.11(a) et (b), on peut noter, pour les matériaux TH1 et TH2, qu'une augmentation de la vitesse de déformation rigidifie le matériau en augmentant le module d'élasticité et la contrainte seuil. Les matériaux TH1 et TH2 présentent une sensibilité à la vitesse de déformation similaire à 23 °C et 85 °C (voir figures B.11(b) et (c)). Cependant, à -30 °C, le matériau TH2 présente une sensibilité à la vitesse de déformation plus importante que TH1.

B.4.4 Comportement thermomécanique : sensibilité à la vitesse de déformation

Les sensibilités à la vitesse de déformation du module élastique (voir figure B.12(a)), de la contrainte seuil (voir figure B.12(b)) et de la déformation seuil (voir figure B.12(c)) ont été étudiées pour trois températures (-30 °C, 23 °C et 85 °C) et les résultats sont présentés sur la figure B.12. La sensibilité des propriétés mécaniques à la vitesse de déformation ne sera pas analysée à 85 °C pour des chargements dynamiques étant donné le comportement fortement caoutchoutique, proche de l'écoulement d'un fluide, du matériau à cette température (voir figure B.11(c)).

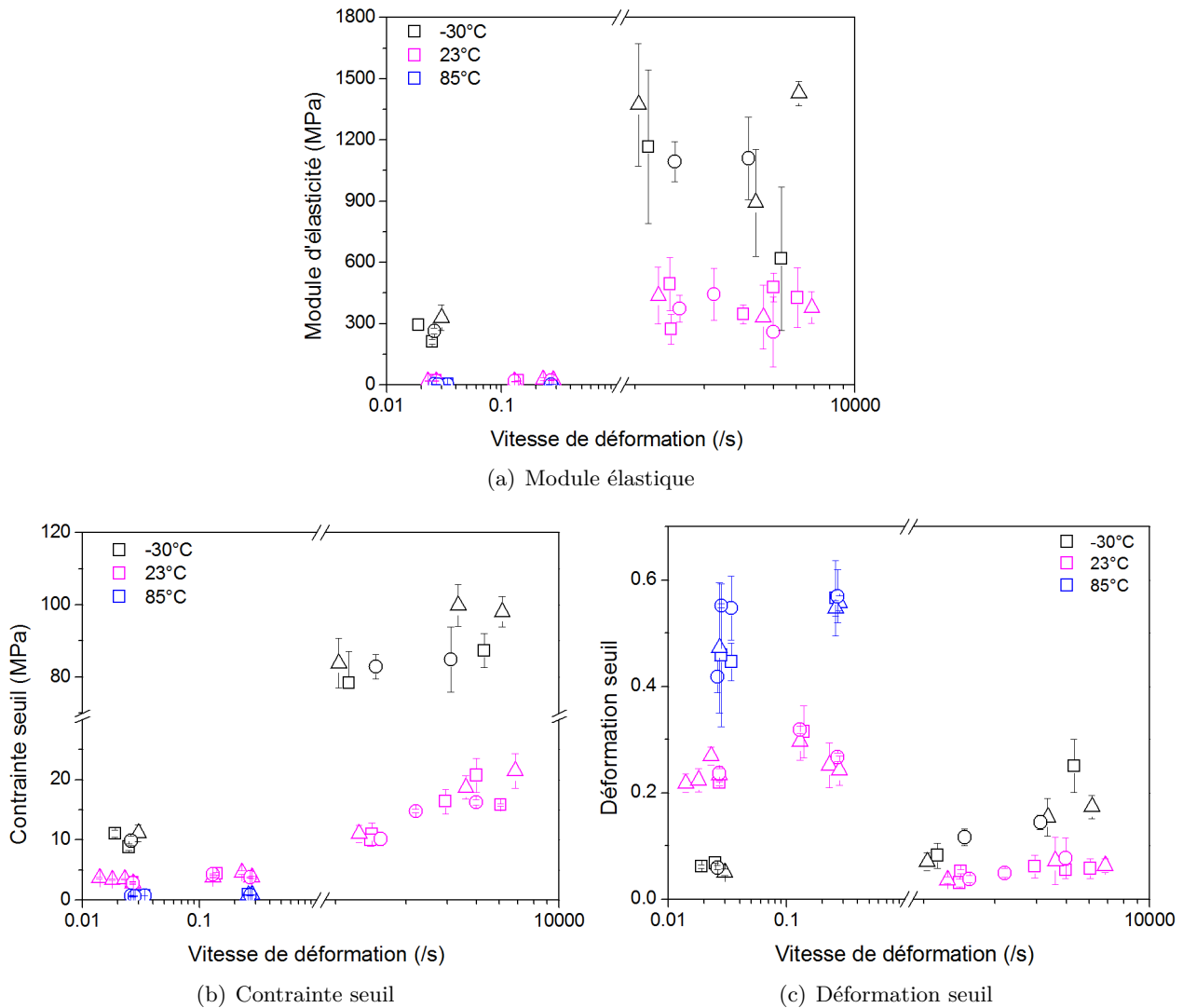


Figure B.12 – Sensibilité à la vitesse de déformation à -30 °C, 23 °C et 85 °C du (a) module élastique, (b) de la contrainte seuil et (c) de la déformation seuil (□ TH1, △ TH2, ○ TH3).

Pour chaque vitesse de déformation, au moins cinq essais ont été effectués. Bien que la reproductibilité entre les différents essais ait été satisfaisante, on se doit de constater, sur la figure B.12(a), que la

sensibilité du module élastique à la vitesse de déformation présente de fortes disparités en dynamique. Ce constat est particulièrement vrai à $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$. Cependant, malgré les écarts rencontrés, qui peuvent être dus à un équilibre dynamique non-optimal et/ou à la proximité de la zone de transition vitreuse, on peut noter une très nette augmentation du module d'élasticité entre les essais quasi-statiques et dynamiques. La forte dispersion des résultats en dynamique nous indique que le module élastique tel que déterminé en mécanique est difficilement quantifiable lorsque le matériau présente une forte viscoélasticité comme c'est le cas pour le PPVC étudié ici. Ainsi, pour une meilleure appréhension et détermination de la rigidité du matériau, il est préférable d'effectuer des tests de DMA qui permettront de ne caractériser que le domaine viscoélastique du matériau. Ces tests permettront également de repérer les différentes transitions (transition vitreuse et transitions secondaires) du matériau et d'étudier leur sensibilité à la fréquence, et donc à la vitesse de déformation.

La contrainte seuil présente de moins fortes disparités dans sa dépendance à la vitesse de déformation que le module d'élasticité. On peut noter, sur la figure B.12(b), qu'une augmentation de la vitesse de déformation augmente la limite d'élasticité du matériau. Le large nombre d'essais effectués à température ambiante ($23\text{ }^{\circ}\text{C}$) a permis de bien mettre en évidence le comportement bilinéaire de la contrainte seuil par rapport à la vitesse de déformation. En effet, on peut distinguer deux tendances dans l'évolution de la contrainte seuil : une évolution linéaire pour des petites à moyennes vitesses de déformation avec une faible pente et une évolution linéaire pour les moyennes à grandes vitesses de déformation avec une pente plus importante. Ainsi, comme suggéré par Roetling [54–56] et Bauwens, Bauwens-Crowet et leurs collaborateurs [57–64], seulement deux processus de relaxation, α_1 et α_2 , sont nécessaires pour décrire le comportement seuil des polymères sur de larges gammes de vitesses de déformation et de températures. Roetling [54] a remarqué que l'énergie d'activation du processus de plus faible énergie pouvait être relié à l'énergie d'activation de la relaxation secondaire β . En accord avec le principe de superposition temps-température, le processus α_1 se réfère à de faibles vitesses de déformation et à de hautes températures tandis que le processus α_2 se réfère à de hautes vitesses de déformation et à de basses températures. En accord avec l'hypothèse de Roetling [54], Bauwens-Crowet *et al.* [58] associent le processus α_2 à la relaxation β . Le processus α_1 , quant-à lui, est basé sur le concept de volume libre.

La dépendance à la vitesse de déformation de la déformation seuil est plus délicate à analyser. Sur la figure B.12(c), on constate, qu'à $85\text{ }^{\circ}\text{C}$, il existe une forte dispersion dans les résultats obtenus pour la déformation seuil pour les essais quasi-statiques. Pour les tests réalisés à $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ et à $23\text{ }^{\circ}\text{C}$, la dispersion est moindre. On constate, cependant, deux comportements bien distincts dans la sensibilité de la déformation seuil à la vitesse de déformation et à la température. En considérant indépendamment les essais quasi-statiques et les essais dynamiques, on constate que la déformation seuil augmente avec la vitesse de déformation. Alors qu'en quasi-statique, la déformation seuil augmente avec la température, en dynamique, pour une même vitesse de déformation, le phénomène inverse est observé. La déformation seuil à $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ est supérieure à celle mesurée à température ambiante. Ainsi, à température ambiante, on observe un saut dans l'évolution de la déformation seuil en fonction de la vitesse de déformation. Ce phénomène pourrait être attribué au fort comportement viscoélastique du matériau en dynamique comme on a pu le voir sur la figure B.11. Cependant, il pourrait également être attribué au changement de comportement du matériau entre quasi-statique et dynamique à $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ et $23\text{ }^{\circ}\text{C}$. En effet, alors qu'à $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$, le matériau se trouve dans sa région de transition vitreuse lors de tests quasi-statiques, il présente un comportement vitreux en dynamique. De même, à $23\text{ }^{\circ}\text{C}$, le matériau passe de la région caoutchoutique pour des sollicitations quasi-statiques à la région de transition vitreuse pour des sollicitations dynamiques. Cette hypothèse semble plus crédible étant donné que pour les couples $(T, \dot{\epsilon})$ sollicitant le matériau dans sa zone de transition vitreuse (essais quasi-statique à $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$, essais dynamiques à $23\text{ }^{\circ}\text{C}$), la déformation seuil présente des valeurs similaires.

L'analyse de la dépendance à la température et à la vitesse de déformation du PPVC nous a permis de nous rendre compte qu'il existait une légère différence dans la réponse mécanique du PPVC, en dynamique, pour les trois matériaux. Cette sensibilité est due, en partie, aux effets de propagation des ondes élastiques qui ne peuvent être négligés lors d'essais sur les barres d'Hopkinson comme l'a démontré Dioh *et al.* [199, 200]. En combinant les observations faites pour la dépendance à la température en dynamique (figure B.11) et pour la dépendance à la vitesse de déformation (figure B.12), on

remarque que le matériau TH2 présente, de manière générale, une limite d'élasticité plus importante que les deux autres matériaux.

Bien qu'il existe une dispersion dans les résultats expérimentaux de la contrainte seuil, cette dernière présente clairement une dépendance bilinéaire à la vitesse de déformation. Le PPVC présenté dans cette étude est destiné à l'industrie automobile. Dans un tel contexte, au cours de son utilisation, le matériau est destiné à subir de grandes déformations à de grandes vitesses de déformation. Ainsi, dans le but de prévoir la limite d'élasticité de ce matériau sur de larges gammes de vitesses de déformation et de températures, il est nécessaire d'utiliser un modèle mathématique.

B.4.5 Modélisation de la contrainte seuil

On a pu observer, sur la figure B.12(b), la dépendance bilinéaire de la contrainte seuil à la vitesse de déformation. Différents modèles issus de la littérature [46–48, 57, 66] permettent de rendre compte de la sensibilité à la vitesse de déformation et à la température de la contrainte seuil des matériaux polymères amorphes. Ces différentes théories considèrent le comportement seuil comme un processus thermiquement activé afin de prendre en compte les effets de température et de vitesse de déformation. Cependant, peu de modèles permettent de modéliser le comportement seuil des polymères sur une gamme de température allant de la région vitreuse à la région caoutchoutique.

Comme présenté au chapitre 2, dans notre équipe, Richeton *et al.* [65, 66] ont proposé une nouvelle formulation du modèle coopératif basée sur le travail de Fotheringham et Cherry [67, 68]. Ce modèle est basé sur la notion de mouvements coopératifs des segments de chaînes polymères. La nouvelle formulation proposée par Richeton *et al.* [65, 66] utilise le principe de superposition temps-température pour modéliser la contrainte seuil. Une explication détaillée du modèle coopératif est donnée au chapitre 2. La contrainte normalisée par la température est décrite par l'expression :

$$\frac{\sigma_y}{T} = \begin{cases} \frac{\sigma_i(0) - mT}{T} + \frac{2k}{V} \sinh^{-1} \left(\frac{\dot{\epsilon}}{\dot{\epsilon}_0 \exp \left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT} \right)} \right)^{1/n} & \text{si } T \leq T_g \\ \frac{2k}{V} \sinh^{-1} \left(\frac{\dot{\epsilon}}{\dot{\epsilon}_0 \exp \left(-\frac{\Delta H_\beta}{RT_g} \right) \exp \left(\frac{\ln 10 \, c_1^g (T - T_g)}{c_2^g + T - T_g} \right)} \right)^{1/n} & \text{si } T \geq T_g \end{cases}, \quad (\text{B.9})$$

avec V le volume d'activation, ΔH_β l'énergie d'activation de la relaxation β , $\sigma_i(0)$ la contrainte interne à 0 K, $\dot{\epsilon}_0$ une constante pré-exponentielle, n un paramètre décrivant le caractère coopératif dû au processus de relaxation, T la température absolue, c_1^g et c_2^g les paramètres de la loi WLF déterminés à la température de transition vitreuse T_g , m une constante matériau approximativement égale à $\sigma_i(0)/T$, k la constante de Boltzmann et R la constante des gaz parfaits.

Précédemment, nous avons été amenés à déterminer l'évolution de la contrainte seuil en fonction de la température et de la vitesse de déformation pour chacun des trois matériaux étudiés. En combinant ces données avec l'équation B.9, nous sommes capables de construire la courbe maîtresse de notre matériau à une température de référence de -30°C . La courbe maîtresse du PPVC à -30°C est tracée sur la figure B.13. Dans un souci de simplification, on propose de ne pas différencier les matériaux. Ainsi, une forte dispersion des données est observée pour le comportement dynamique à -30°C et 23°C due à la proximité de la région de transition vitreuse. On peut noter sur la figure B.13 une bonne adéquation entre les résultats expérimentaux et le modèle numérique.

La courbe maîtresse, tracée sur la figure B.13, a été obtenue après le décalage horizontal et vertical des données expérimentales. Le décalage horizontal permet de déterminer l'énergie d'activation. Le décalage vertical permet de déterminer la contrainte interne du matériau. Étant donné la faible quantité de données disponibles dans la région vitreuse, la contrainte interne et la constante matériau

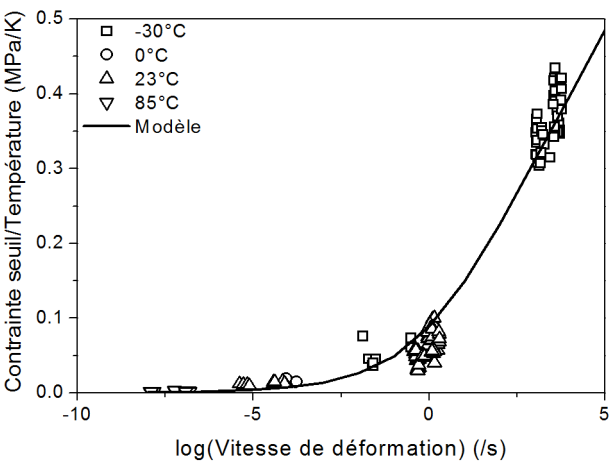


Figure B.13 – Courbe maîtresse du PPVC construite à $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ en confondant les données obtenues pour les trois matériaux.

m sont considérées nulles. Les paramètres V , n et $\dot{\epsilon}_0$ sont déterminés par la meilleure approximation des données expérimentales avec le modèle coopératif. Les données utilisées pour le modèle sont répertoriées dans le tableau B.2.

	PPVC
ΔH_{β} (kJ mol ⁻¹)	92
$\sigma_i(0)$ (MPa)	0
m (MPa K ⁻¹)	0
V (m ³)	2.0×10^{-28}
$\dot{\epsilon}_0$ (s ⁻¹)	2.3×10^{20}
n	3.6

Tableau B.2 – Propriétés matériau et paramètres du modèle coopératif pour le PPVC.

B.4.6 Observations de la microstructure des matériaux

Les essais mécaniques et rhéologiques ont été complétés par des observations microscopiques. À l'issue des tests de traction quasi-statique à température ambiante, des échantillons ont été prélevés dans des éprouvettes pour chacun des trois matériaux. Deux zones sont examinées au microscope électronique à balayage. Le premier échantillon a été prélevé dans la partie de l'éprouvette qui se trouve entre les mors de la machine de traction. Ainsi, ce premier échantillon est supposé n'avoir subi aucune déformation en cours d'essai. Il permettra donc d'analyser la microstructure du PPVC avant que celle-ci n'ait subi des déformations irréversibles. Le second échantillon a été prélevé dans la zone utile de l'éprouvette. Au cours de l'essai, ce second échantillon aurait subi de grandes déformations.

B.4.6.1 Zone non-déformée

Quelque soit le matériau, pour les échantillons correspondant à la zone non-déformée de l'éprouvette de traction, le faciès de rupture est de type fragile. On observe, sur la figure B.14, la présence de bulles sphériques de différents diamètres. De nombreuses bulles de faibles diamètres se trouvent sur la surface inférieure des trois échantillons. Ces bulles peuvent être attribuées au dégazage qui se produit à la fin du procédé de mise en forme du matériau. Des bulles de diamètre plus important apparaissent à la même hauteur pour les trois épaisseurs. La présence et la répartition identique des bulles dans l'épaisseur du matériau seraient à attribuer au procédé de fabrication.

La surface des bulles apparaît lisse. Cependant, on distingue, sur la figure B.15, de nombreuses inclusions. Les micrographies sont présentées pour le matériau TH2, néanmoins, des observations similaires peuvent être faites pour les deux autres matériaux.

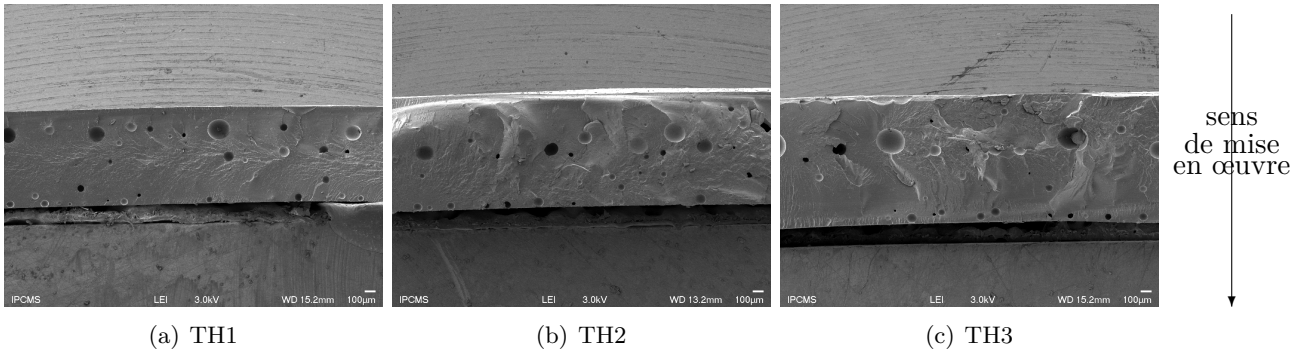


Figure B.14 – Observations MEB du PPVC effectuées sur la zone non-déformée d’une éprouvette de traction pour les trois épaisseurs.

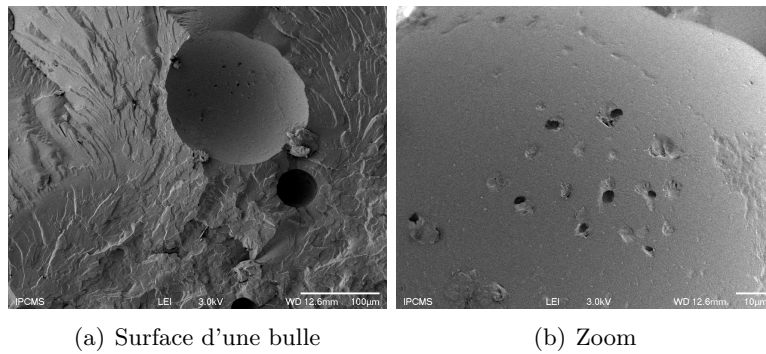


Figure B.15 – Surface d’une bulle et agrandissement. Micrographies obtenues pour l’épaisseur TH2.

À la surface du matériau, on observe également la présence de particules cubiques, en clair sur la figure B.16. Dans la zone non-déformée, ces particules apparaissent de manière éparse et individuelle. En raison de la similitude des phénomènes observés pour les trois matériaux, seul le matériau TH2 est présenté.

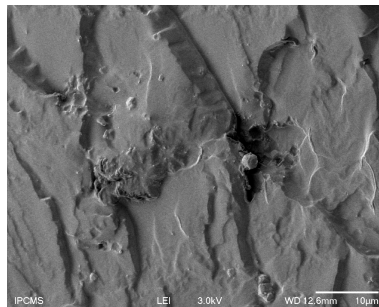


Figure B.16 – Présence de particules cubiques à la surface du matériau. Micrographie obtenue pour l’épaisseur TH2.

B.4.6.2 Zone déformée

Les échantillons correspondant à la zone déformée de l’éprouvette de traction ont été prélevés dans la zone utile de l’éprouvette. Sous l’effet de l’effort de traction appliqué, les bulles se sont étirées comme on peut le voir sur la figure B.17. De plus, les bulles semblent être plus nombreuses que dans la zone non-déformée. Cependant, leur origine n’a pu être déterminée.

Le faciès de rupture apparaît de type fragile (voir figure B.17). Cependant, en réalisant un grossissement progressif du matériau, présenté sur la figure B.18 pour le matériau TH2 mais transposable

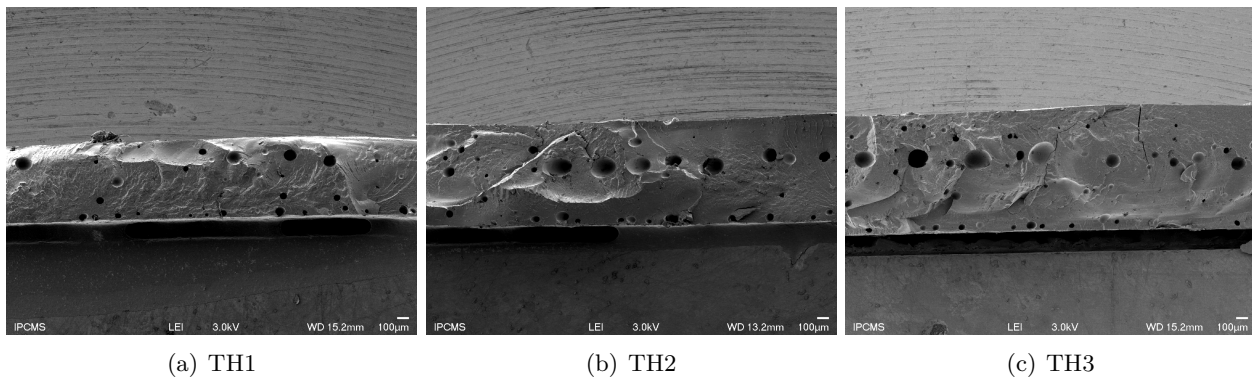


Figure B.17 – Observations MEB du PPVC. Les échantillons sont issus de la section utile d’une éprouvette de traction pour les trois épaisseurs.

aux deux autres matériaux, on constate l’apparition d’amas de particules cubiques qui n’étaient pas présents dans la zone non-déformée (voir figure B.16). Ces zones apparaissent en de nombreux endroits de la surface fracturée.

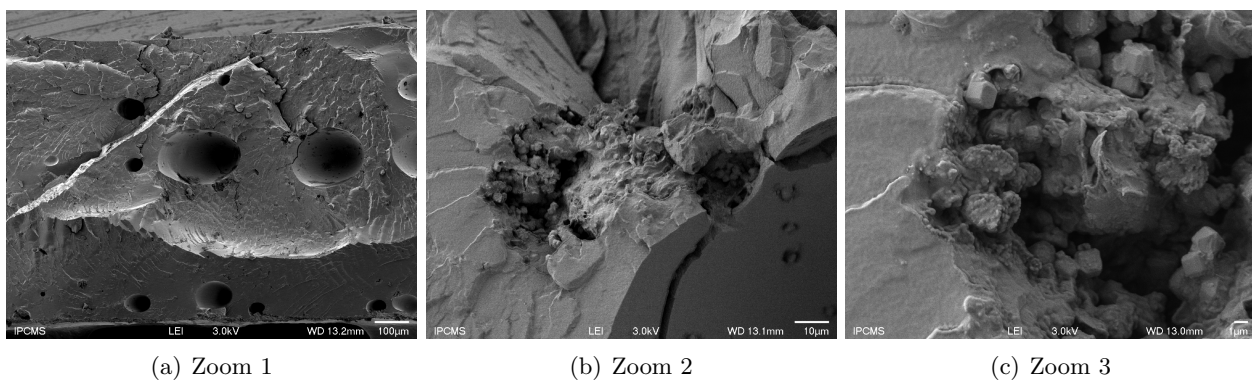


Figure B.18 – Observations MEB du PPVC effectuées sur la zone déformée d’une éprouvette de traction pour l’épaisseur TH2.

B.4.6.3 Composition chimique

Afin d’avoir une meilleure connaissance des différents éléments observés, une microanalyse X est effectuée sur trois zones de l’échantillon issues de la zone déformée du matériau TH2. Les différentes zones analysées sont identifiées sur la figure B.19(a). La zone SQ1 correspond à une zone témoin. La présence de particules cubiques dans cette zone est nulle. La zone SQ2 correspond à un amas de particules cubiques et S3 coïncide avec une particule cubique.

Le spectre EDS des différentes zones est présenté sur la figure B.19(b). Ainsi, la composition chimique en divers endroits du matériau peut être déterminée. La zone témoin SQ1 et la zone SQ2 présentent un spectre EDS similaire. On notera cependant, pour la zone SQ2, une plus faible intensité en carbone et chlore, et une intensité légèrement plus élevée en sodium, aluminium et silicium. La présence de Al, Na, Si peut être attribuée à la présence des particules cubiques. En effet, l’analyse de leur composition chimique révèle une forte présence d’oxygène, d’aluminium, de sodium et de silicium, une faible quantité de carbone et l’absence de chlore. Ces quatre principaux éléments (O, Na, Al, Si) sont la preuve de la présence d’aluminosilicate de sodium, classiquement utilisé comme stabilisant des mélanges de PVC [201–204].

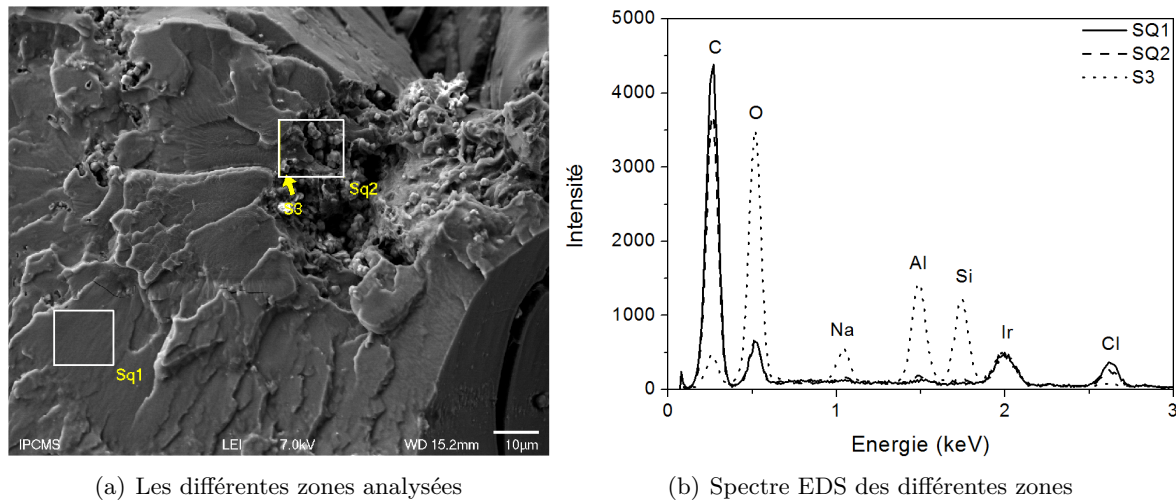


Figure B.19 – Analyse de la composition chimique de différentes zones dans un échantillon d'épaisseur TH2. (C carbone, O oxygène, Na sodium, Al aluminium, Si silicium, Ir iridium, Cl Chlore). L'iridium correspond à l'élément utilisé pour métalliser les échantillons ce qui explique que l'intensité pour les trois zones soit identique.

B.5 Conclusion

Une étude thermique et mécanique a été réalisée pour trois épaisseurs d'un nouveau PVC plastifié sur de larges gammes de températures et de vitesses de déformation. Au cours des analyses expérimentales réalisées, les trois épaisseurs ont été considérées comme des matériaux indépendants afin de pouvoir quantifier l'influence du procédé de fabrication sur le comportement du PPVC. Les principales conclusions de ce travail sont :

- Les effets du procédé de fabrication sur les propriétés thermiques (dégradation, calorimétrie et température de transition vitreuse) n'est pas significative.
- Le comportement mécanique n'est pas influencé par le procédé de fabrication à faibles vitesses de déformation. Cependant, les tests de compression dynamique ont montré qu'il existait une différence non-négligeable entre les trois matériaux. Il apparaît que le matériau TH2 présente les meilleures propriétés pour la contrainte d'écoulement.
- Le module d'élasticité, la contrainte seuil et la déformation seuil du PPVC sont non-linéairement dépendants à la température.
- La contrainte à rupture et l'élongation à rupture du PPVC sont linéairement dépendants à la température dans la gamme de températures testées (de $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$ à $23\text{ }^{\circ}\text{C}$). Ainsi, les propriétés à rupture ne semblent pas être influencées par la température de transition vitreuse (qui apparaît autour de $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$).
- La contrainte seuil présente une dépendance bilinéaire à la vitesse de déformation. La sensibilité de la déformation seuil à la vitesse de déformation semble plus délicate à quantifier. En effet, la déformation seuil augmente avec la vitesse de déformation sur chacune des portions de courbes décrivant les états quasi-statique et dynamique. Cependant, alors que celle-ci augmente avec la température pour des chargements quasi-statiques, le comportement inverse est trouvé lors de chargements dynamiques. Une plus ample procédure expérimentale est nécessaire pour confirmer ou infirmer cette constatation.
- La dépendance à la vitesse de déformation et à la température de la contrainte seuil peut être modélisée par un modèle mathématique. Ainsi, le modèle coopératif a été utilisé pour construire la courbe maîtresse du PPVC à $-30\text{ }^{\circ}\text{C}$. Une bonne adéquation a été trouvée entre les résultats expérimentaux et le modèle numérique malgré une forte dispersion des résultats en dynamique.
- Des micrographies obtenues à l'aide d'un microscope électronique à balayage montrent la présence de bulles dans le matériau. Après déformation, ces bulles sont plus nombreuses. Leur taille est dépendante de leur position dans le matériau. Plusieurs agrandissements ont montré la

présence d'amas de nodules cubiques. Une microanalyse X a permis d'identifier la composition chimique de ces nodules cubiques comme étant de l'aluminosilicate de sodium, classiquement utilisé comme un composant stabilisateur des mélanges de PVC.

Les résultats de ces différentes analyses vont permettre de concevoir une structure avec des propriétés optimales pour l'application visée. Pour la conception de structures pour des applications de choc, il apparaît que le matériau TH2 présente le meilleur compromis prix/performance dû notamment à un meilleur comportement à l'écoulement en dynamique.

Résumé

De nos jours, de nombreuses pièces mécaniques sont fabriquées en polymères. Ces matériaux présentent un comportement complexe très sensible à la vitesse de déformation et à la température. De nombreux modèles de comportement mécanique, tenant compte de cette double sensibilité, ont été développés au cours des dernières années dans le but de décrire le comportement élasto-viscoplastique des polymères en grandes déformations sur de larges plages de vitesses de déformation et de températures. Afin de prévoir la tenue de pièces mécaniques en polymère soumises à un ensemble de sollicitations complexes, l'utilisation de méthodes numériques, telles que la méthode des Éléments Finis (EF), s'avèrent incontournables. Cependant, la qualité de la prévision numérique est fortement dépendante de la loi de comportement utilisée. Ainsi, nous proposons d'étudier deux modèles de comportement qui ont été introduits dans deux codes de calcul par EF : un modèle phénoménologique simple, introduit dans CAST3M, et un modèle micromécanique, introduit dans ABAQUS/Explicit. Le modèle phénoménologique permet de modéliser le comportement mécanique des polymères vitreux en petites déformations sur une plage de vitesses de déformation et de températures réduite. Un essai de compression reproduisant le dispositif des barres d'Hopkinson a été simulé pour plusieurs vitesses de déformation et températures. Une bonne corrélation a été trouvée entre résultats expérimentaux et les prévisions numériques. De plus, de rapides estimations du coefficient de Taylor-Quinney et de la contrainte à l'interface, liée au frottement entre l'échantillon et les barres de compression, ont pu être trouvées. Le modèle micromécanique décrit le comportement des polymères amorphes en grandes déformations sur de larges gammes de vitesses de déformation et de températures. Il a été développé au sein de notre équipe de recherche par Richeton *et al.* [Int. J. Solids Struct. 44 (2007) 7938] et propose une dépendance à la vitesse de déformation et à la température de différentes propriétés matériau (module élastique, contrainte seuil, durcissement structural). Afin de modéliser le comportement de structures polymères soumises à des chargements dynamiques ou à de la mise en forme, un sous-programme *VUMAT* est écrit. Après validation de l'intégration numérique du sous-programme sur des essais de compression/traction simple, deux applications ont été simulées. La première application a consisté en la modélisation d'un essai d'impact d'une plaque polymère par un projectile hémisphérique. La seconde application est un essai de forgeage à froid. Dans les deux cas, les prévisions numériques sont en accord avec les résultats expérimentaux issus de la littérature.

Mots clés : Polymères amorphes, Réponse thermomécanique, Modélisation, Simulation numérique, VUMAT, Éléments Finis.

Abstract

Nowadays, numerous structural parts are made in polymeric materials. These materials exhibit a complex behavior strongly sensitive to strain rate and temperature. Numerous constitutive equations have been developed during the last decades in order to describe the elastic-viscoplastic behavior of polymers in finite strain for a wide range of strain rates and temperature. To provide for the holding of mechanical parts polymer subject to a complex set of loads, the use of numerical methods, such as Finite Element (FE) method, is unavoidable. However, the quality of the numerical prediction is strongly dependent to the used constitutive equations. Thus, we proposed to study two models of mechanical behavior implemented in two FE softwares : a simple phenomenological model, introduced in CAST3M, and a micromechanical model, introduced in ABAQUS/Explicit. The phenomenological model allows simulating the mechanical behavior of glassy polymers in small strains over a reduced range of strain rates and temperatures. A compressive test reproducing the Split Hopkinson Pressure Bar device is simulated for several strain rates and temperatures. A good correlation is found between experimental results and numerical predictions. Moreover, an estimation of Taylor-Quinney coefficient and the interfacial stress, due to the friction between the polymer sample and the compressive bars, have been found. The micromechanical model describes the mechanical behavior of amorphous polymers in finite strain over a wide range of strain rates and temperatures. It has been developed in our research team by Richeton *et al.* [Int. J. Solids Struct. 44 (2007) 7938] and proposes to take into account the strain rate and temperature dependence of various material properties (elastic modulus, yield stress, orientational hardening). In order to simulate the mechanical behaviour of polymeric structures under dynamic loadings or during forming processes, a *VUMAT* subroutine is written. After validation of the numerical implementation of the *VUMAT* subroutine for simple compressive/tensile tests, two applications were simulated. The first application is a normal impact test of a polymeric plate by a hemispherical projectile. The second application is a cold forging test. In both cases, numerical predictions are in agreement with the experimental results from the literature.

Keywords : Amorphous polymers, Thermomechanical response, Modelling, Numerical simulation, VUMAT, Finite Elements.