



REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE  
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR  
ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE



UNIVERSITE DJILLALI LIABES DE SIDI BEL ABBES  
FACULTE DE TECHNOLOGIE  
DÉPARTEMENT DE GÉNIE MÉCANIQUE

Présenté Pour l'obtention du grade de

## **DOCTEUR EN SCIENCES**

SPÉCIALITÉ : Mécanique des matériaux et modélisation

Par

**ZAIM Abdel-Nour**

TITRE

---

**Effets des différents types de chargement sur l'évolution des propriétés  
mécaniques et physiques d'un thermoplastique en grande déformation**

---

Soutenu le : 21 /06 /2018

Devant le jury composé de:

<b>Mr. MAZARI Mohamed</b>	Pr	Président	UDL-SBA
<b>Mr. BOUCHOUICHA Benattou</b>	Pr	Directeur de thèse	UDL-SBA
<b>Mr. OULD CHIKH El Bahri</b>	Pr	Co-directeur de thèse	Université de MASCARA
<b>Mr. ZEMRI Mokhtar</b>	Pr	Examineur	UDL-SBA
<b>Mr. BENHAMENA ALI</b>	Pr	Examineur	Université de MASCARA
<b>Mr. GHAZI Abdelkader</b>	MCA	Examineur	Université de MASCARA

**Année Universitaire 2017/2018**

## **Remerciements**

Ce travail de thèse a été réalisé au Laboratoire de Matériaux et Systèmes Réactifs " LMSR "Université Djillali Liabès de Sidi Bel Abbes.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude et mon respect ainsi que mes sincères remerciements à mon directeur de thèse, **Mr. Benattou BOUCHOUICHA**, Professeur à la faculté de technologie de l'Université de Sidi Bel Abbes. **Mr. Benattou BOUCHOUICHA** m'a accueilli dans son équipe de recherche, m'a réservé beaucoup de son temps à la discussion et m'a facilité les conditions pour mener à bien ce travail dont j'ai tiré de bénéfiques connaissances, j'en serai éternellement reconnaissant.

J'ai apprécié avec gratitude toute aide scientifique et moral de **Mr. Ould chikh El Bahri, Professeur** à la faculté de génie mécanique de l'université de Mascara. Je le remercie profondément pour ces conseils et son soutien constant tout le long de ma thèse, surtout au moment pénible passé lors de la soumission de mon article. Sa patience et sa sympathie m'ont beaucoup apporté tout le long de ces années et m'accompagneront encore longtemps.

Mes remerciements s'adressent également à **Mr. EL MEGUENNI Mohammed**, Docteur en mécanique et expert en simulation des polymères de l'école Polytechnique de Lille, je retiendrai sa grande disponibilité, son soutien. Je le remercie également aux temps qu'il m'a consacrés à la discussion par Skype et au moment de ces vacances en Algérie et même lorsque j'étais en stage à Lille en 2015, il m'a rendu visite. Je le remercie profondément de son précieux aide scientifique pour bien structurer ce travail, et pour tous ces conseils le long de ces années de thèse.

Je remercie tous les membres du laboratoire LMSR de l'université de Sidi Bel Abbes, une pensée spéciale aux professeurs, **Mr. ZEMRI Mokhtar**, **Mr. MAZARI Mohamed**, **Mr. BENGUEDIAB Mohamed** et **Mr ACHOUR TARIK**. Je remercie également **Mr. SLIMANE Abdelkader**; maitre de conférences à l'université D'Oran et **Mr. MANKOUR Abdel Djailil**; maitre de recherche au centre des techniques spatial D'Oran, pour leurs aides pendant la soumission de mon article.

Mes remerciements s'adressent également à **Mr. BOUZIANE Mohamed Mokhtar**, Maitre de conférences à la faculté de génie mécanique de l'université de Mascara, que je le remercie particulièrement pour sa grande disponibilité, son soutien, et l'exemple qu'il incarne

pour tous ces chercheurs. Qu'ils trouvent ici le témoignage d'une immense reconnaissance et d'un profond respect.

Je tien à remercier **Mr. MILOUDI Abdelkader**, Maître de conférence à la Faculté de Technologie, département de génie mécanique de l'Université de Sidi Bel Abbes pour son soutien scientifique et ces précieux conseils.

Mes remerciements s'adressent à Monsieur le Président et aux membres du jury **Mr. BENHAMENA Ali** et **Mr. GHAZI Abdelkader**, qui me font l'honneur de participer à l'évaluation de ce travail. Ils ont également contribué par leurs remarques et suggestions à améliorer la qualité de ce travail, et je leur en suis très reconnaissant.

Passons aux collègues de l'université de Mascara et de Sidi Bel Abbes. Je ne peux citer tout le monde, mais une pensée particulière ira vers ceux que j'ai connus dès les premières heures de mon arrivée au laboratoire LMSR. Je souhaite également à tous les doctorants de notre équipe de recherche la réussite.

J'adresse mes remerciements à **Mr. Jean-Michel GLOAGUEN**; directeur de laboratoire de structure et propriétés de l'État solide pour leur accueil dans son équipe, me donnant accès à la machine de traction pour réaliser les essais. Sans oublier le professeur **Mr. BOURAOUI Chokri** et son équipe de l'école technique des ingénieurs de Sousse, dont j'ai passé d'agréables séjours.

Je dédie ce travail à la mémoire de mon cher Père, à ma mère, mes trois sœurs et mon frère et leurs enfants.

Enfin, je tiens à exprimer ma grande reconnaissance envers ma compagne et mes très chers garçons « **Yasser, Abdelkader et Mouatez** » qui ont toujours cru en moi, qui ont été très présents pour me soutenir durant toutes ces années difficiles et qui m'ont rendu la vie de tous les jours fortement agréable.

## ***RESUME***

En l'absence de connaissances poussées sur les thermoplastiques et les mélanges d'élastomères, l'étude entreprise dans ce travail de thèse a pour ambition d'aboutir à une meilleure compréhension de leur comportement de façon très large. L'étude des micros mécanismes de déformation et d'endommagement de ces matériaux à partir de son comportement mécanique est une meilleure connaissance des processus physiques, qui constituent la problématique de cette thèse. Divers techniques sont employées, notamment DSC, DMA et les essais de traction avec la vidéo traction pour la caractérisation du mélange de Poly téréphtalate de butylène (PBT) et de poly oxyde de tétra méthylène (PTMO). Ces techniques nous ont permis d'avoir plusieurs paramètres microstructuraux à savoir la cristallinité, le degré de vieillissement, la température de transition vitreuse, qui nous semble en effet un paramètre physique indispensable pour la mise en œuvre des polymères.

Dans le but d'étudier l'effet de certains paramètres comme la fraction volumique initiale du vide, l'exposant de durcissement et la triaxialité des contraintes sur la contrainte équivalente de coalescence (l'instabilité plastique) une modélisation du mélange d'élastomère a été faite. Cette modélisation nous a permis de conclure que la triaxialité des contraintes a un effet majeur sur la contrainte de coalescence des cavités par rapport aux autres facteurs.

***Mots clé:*** Thermoplastique / élastomère / viscoélasticité / triaxialité / coalescence cavité / L'endommagement

## ***ABSTRACT***

In the absence of extensive knowledge of thermoplastics and elastomer blends, the study undertaken in this thesis aims to lead to a better understanding of their behavior in a very broad way. The study of the micro-mechanisms of deformation and damage of these materials, from its mechanical behavior, is a better knowledge of the physical processes, which constitute the problematic of this thesis. Various techniques are employed, including DSC, DMA and tensile video tests for the characterization of the Polybutylene terephthalate (PBT) and tetramethylene oxide (PTMO) blend. These techniques allowed us to have several microstructural parameters namely the crystallinity, the degree of aging, the vitreous transition temperature, which seems to us, in fact, an indispensable physical parameter for the implementation of polymers. In order to study the effect of certain parameters such as the initial volume fraction of the void, hardening exponent and the stress triaxiality on the coalescence equivalent stress (plastic instability), a modeling of the elastomer mixture been made. This modeling allowed us to conclude that the triaxiality of the stresses has a major effect on the coalescence stress of the cavities with respect to the other factors.

***Key words:*** Thermoplastic /elastomer / viscoelasticity / triaxiality / cavity coalescence / Damage

## الملخص

في غياب معرفة واسعة للدائن الحرارية والخلائط المرنة ، تهدف الدراسة التي أجريت في هذه الرسالة إلى الفهم الأفضل لسلوكهم بطريقة واسعة للغاية. دراسة الآليات الدقيقة لتشوه وتلف هذه المواد عن طريق سلوكها الميكانيك و التي تعتبر إشكالية هذه الأطروحة ;تتمثل في معرفة الأفضل لخصائصها الفيزيائية. هذه الأطروحة هي عبارة عن دراسة تجريبية بحتة لمزيج من تيريفثاللات البولي بيوتيلين وأكسيد الميثيلين رباعي ، الذين ينتمون إلى عائلة البوليمرات. استعملت لهذا الغرض تقنيات مختلفة، كال DSC، DMA واختبارات الشد. لقد سمحت هذه التقنيات أن نتحصل على العديد من الخصائص المجهرية مثل التبلور، ودرجة الشيخوخة، ودرجة حرارة التحول الكريستال، والذي يبدو لنا في الواقع هي خصائص لا يجب ان نستغني عنها بالنسبة للبوليمرات. لقد تم التركيز بشكل خاص في هذه الدراسة على تحديد التغير في الحجم، وخاصة مع إضافة مواد ذات طابع اللينة ، تبين لنا من الناحية النوعية أن عمليات الضرر التي ساهمت في ظهور تشوه البلاستيك هي تشوه حجمي مرن وتشوه من خلال التجويف. لقد سمحت لنا النمذجة بأن نستخلص أن التوترات ثلاثية المحاور لها تأثير كبير على التحام الفجوات مقارنة بالعوامل الأخرى.

**الكلمات المفتاحية:** اللدائن الحرارية / المطاط الصناعي / اللزوجة / ترياكسياليتي / التجويف / التجانس / الأضرار

# ***SOMMAIRE***

<b>Notations</b>	5
<b>Introduction Générale</b>	8
<b>Préambule</b>	12
<b>CHAPITRE I : Etat de l'Art sur les thermoplastiques</b>	
I.1 Introduction	18
I.2 Polymères semi-cristallins	22
I.2.1 Déformation et endommagement des polymères semi-cristallins	24
I.2.1.1 Micro mécanismes de déformation	25
I.2.1.2 Micro mécanismes d'endommagement	27
I.2.2 Comportement mécanique en grandes déformations	29
I.2.2.1 Variation volumique sous sollicitation mécanique	31
I.3 Polymères amorphe	34
I.3.1 Déformation des polymères amorphe	35
I.3.1.1 La striction	38
I.3.1.2 Bandes de cisaillement	38
I.3.1.3 Plasticité	39
I.3.2 Effet de la pression hydrostatique	41
I.3.3 Mécanismes physiques de déformation des polymères amorphe	41
I.3.4 Modélisation des polymères amorphe par endommagement	42
I.3.4.1 L'endommagement à l'échelle microscopique	42
I.3.4.1.1 Endommagement par cavitation	42
I.3.5 Modèles micromécaniques d'endommagement	43
I.4 Conclusion	44
<b>CHAPITRE II : Présentation des mélanges élastomères (TPE)</b>	
II.1 Introduction	45
II.2 Analyse thermomécanique des mélanges d'élastomères	47
II.3 Déformation des thermoplastiques d'élastomères	54
II.3.1 Comportement mécanique des mélanges d'élastomères	55
II.3.2 Mécanisme de cavitation et de plasticité	57
II.4 Conclusion	59
<b>CHAPITRE III : Etude de l'instabilité plastique en grande déformation « PBT »</b>	
III.1 Introduction	60
III.2 Localisation des contraintes sur éprouvette plates	62
III.3 Matériau et méthodes expérimentales	66
III.3.1 Matériau	66
III.3.1.1 Poly téréphtalate de butylène (PBT)	66
III.3.2 Préparation et géométrie des éprouvettes	67
III.4 Résultats et analyse	68
III.4.1 Caractérisation du comportement plastique	68
III.4.2 Instabilité plastique	72
III.4.3 Évolution de l'endommagement	78
III.5 Conclusion	80



**CHAPITRE IV : Caractérisation expérimentale du PBT-PTMO**

IV.1	Introduction	81
IV.2	Détermination des paramètres physiques du PBT et PBT-PTMO	81
IV.2.1	Présentation du matériau	81
IV.2.2	Techniques d'analyses thermiques	83
IV.2.2.1	Analyse DSC « Échantillons non vieillis »	83
IV.2.2.2	Analyse DSC « pour échantillons vieillis »	86
IV.2.2.3	Analyse mécanique dynamique (DMA)	86
IV.3	Essais mécaniques	87
IV.3.1	Préparation et géométrie des éprouvettes en « PBT/PTMO »	87
IV.3.2	Essai de traction uni axiale	88
IV.3.2.1	Principe de la technique d'Ombroscopie	88
IV.3.2.2	Essai de traction uni-axiale à vitesse de déformation variable	89
IV.4	Résultats expérimentaux	90
IV.4.1	Essai DSC « Echantillons non vieillis »	90
IV.4.2	Essai DSC « Echantillons vieillis »	94
IV.4.3	Étude DMA	95
IV.4.4	Essai de Traction	99
IV.4.4.1	Effet de la vitesse de déformation	99
IV.4.5	Caractérisation du comportement plastique	99
IV.4.5.1	Seuil de plasticité	99
IV.4.6	Caractérisation de la déformation volumique	101
IV.5	Conclusion	104

**CHAPITRE V : Modélisation de l'endommagement du PBT-PTMO**

V.1	Introduction	106
V.2	Matériau et technique de calcul	107
V.3	Technique de calcul de la cellule unitaire	108
V.3.1	Géométrie	108
V.3.2	Conditions aux limites axisymétriques	110
V.4	Résultats numériques et discussion	113
V.5	Influence de la triaxialité	125
V.6	Conclusion	133

**CHAPITRE VI : prépondérance des paramètres de coalescence de vide**

VI.1	Introduction	134
VI.2	Méthodologie des plans d'expériences	135
VI.3	Matériau et méthode expérimentale	136
VI.4	Approche expérimentale de conception	136
VI.4.1	Choix des intervalles d'étude	139
VI.4.2	Intervalle d'étude du taux de triaxialité « $T$ »	139
VI.4.3	Intervalle d'étude de la fraction cavitaire « $f_0$ »	139
VI.4.4	Intervalle d'étude du coefficient de durcissement « $n$ »	139
VI.5	Résultats & discussion	140
VI.5.1	Analyse des effets par facteur d'entrée	140
VI.5.1.1	Effet de la triaxialité « $T$ »	140
VI.5.1.2	Effet du coefficient de durcissement « $n$ »	142
VI.5.1.3	Effet de la fraction volumique « $f_0$ »	142

## SOMMAIRE

---

VI.5.2 Analyse d'effets par interaction de facteur	143
VI.5.3 Analyse des effets du modèle sur la réponse	146
VI.5.4 Modèles mathématiques	146
VI.5.5 Validation du modèle	148
VI.6 Modélisation et critère d'endommagement	148
VI.6.1 Optimisation	148
VI.7 Conclusion	149
<b><i>Conclusion et perspectives</i></b>	150
<b><i>Annexe</i></b>	152
<b><i>Références bibliographiques</i></b>	169

## NOTATION

# Notations

<i>Symboles</i>	<b>Signification</b>	<b>[unité]</b>
$\sigma_n$	Contrainte nominale	[MPa]
$\sigma_v$	Contrainte vraie	[MPa]
$\sigma_0$	Limite d'élasticité	[MPa]
$\sigma_y$	Limite d'écoulement	[MPa]
$\epsilon_n$	Déformation nominale	/
$\epsilon_v$	Déformation vraie	/
$(\epsilon_v)_{cav}$	Déformation de volume par cavitation	/
$\epsilon_{3el}$	Composante élastique vraie	/
$\epsilon_{sh}$	Déformation par cisaillement	/
$\dot{\epsilon}$	Vitesse de déformation	[s <sup>-1</sup> ]
$\nu$	coefficient de Poisson	/
$T_g$	Température de transition vitreuse	[C°]
$T_m$	Température de fusion	[C°]
$T_c$	Température de cristallisation	[C°]
$\Delta H_f$	Enthalpie de fusion	[j/g]
$\Delta H_c$	Enthalpie de cristallisation	[j/g]
$\chi_c$	Taux de cristallisation	%
$E''$	Module de perte	[Pa]
$E'$	module de conservation	[Pa]
$tg(\delta)$	Facteur d'amortissement	/
$\varphi$	Potentiel d'écoulement plastique	/
$\Phi$	Critère de plasticité macroscopique	/
$n$	Indicateur du durcissement du comportement elastoviscoplastique	/
$q_1$	Paramètre d'endommagement du modèle GTN	/
$q_2$	Paramètre d'endommagement du modèle GTN	/
$f$	Porosité	/
$f_0$	Valeur initiale de la porosité	/
$f^*$	Porosité effective	/

$f_c$	Porosité critique du début de coalescence	/
$D$	Taux d'endommagement	/
$T$	Taux de triaxialité des contraintes	/
$\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{Totale}$	Variation volumique totale	/
$\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{élastique}$	Variation volumique élastique	/
$W$	Largeur maximale de l'éprouvette	[mm]
$t_0$	L'épaisseur de l'éprouvette	[mm]
$R_0$	Rayon de l'entaille de l'éprouvette	[mm]
$\beta, T$	Triaxialité des contraintes	/
$m$	coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation	/
$K, h$	Constantes de matériau	/
$V(\varepsilon)$	loi de comportement viscoélastique	/
$H(\varepsilon)$	durcissement graduel en grandes déformations	/
$C(\varepsilon)$	Crochet de traction	/
$g\left(\frac{\dot{\varepsilon}}{\varepsilon}\right)$	sensibilité de la vitesse de déformation	/
$V$	Volume initial.	mm <sup>3</sup>
$E_z, E_\rho$	déformations macroscopiques principales	/
$E_{eq}$	déformation équivalente	/
$\Sigma_\rho, \Sigma_z$	Contraintes principales	[MPa]
$\Sigma_h$	contrainte hydrostatique (moyenne)	[MPa]
$\Delta V_e$	Correction approximative du changement volumique	Mm <sup>3</sup>
$\Sigma_{eq,}^{max}$	Contrainte équivalente maximale de coalescence	[MPa]

### Abréviations

DSC	Analyse calorimétrique différentielle
DMA	Dynamique mécanique analyse

---

SAXS	Diffusion de Rayon X aux petits angles
VER	Élément de volume représentatif
UV	Rayonnement ultra-violet
MEB	Microscope à balayage électronique
PMMA	Poly méthacrylate de méthyle
PBT	Poly butylène Téréphtalate
PTMO	poly oxyde de tétra méthylène
COPE	copolymères
PE	Polyéthylène
PS	Polystyrène
PP	Polypropène
PEHD	Polyéthylène à haute densité
PVDF	Fluorure de polyvinylidène
PC	Polycarbonate
PBT/PTMO	Mélange d'élastomère
MODDE 5	Plans d'expérience
PP-g-MAH	polypropylène greffé anhydride maléique
NR-g- MAH	caoutchouc naturel greffé à l'anhydride maléique

# INTRODUCTION GENERALE

## *INTRODUCTION*

Les matériaux métalliques ont été largement remplacés par des polymères techniques comme le polyéthylène (PE), polypropylène (PP), Poly-butylène téréphtalate (PBT), afin d'obtenir des réductions de poids et de coût. Depuis maintenant plusieurs dizaines d'années, la recherche et le développement de nouvelles générations de polymères mènent à la création de matériaux présentant des propriétés toujours plus intéressantes. D'une mise-en-œuvre aisée, leur utilisation s'est logiquement généralisée à la plupart des secteurs de l'industrie : textile, optique, automobile, agroalimentaire, aéronautique, cosmétique, etc.

En 1960, le monde de l'industrie a assisté au développement des thermoplastiques élastomères nés de la volonté d'allier les qualités techniques telles que la résistance et la transformabilité des plastiques techniques aux performances des élastomères thermodurcissables, ce qui se traduit par une mise-en-œuvre améliorée et une productivité renforcée. Néanmoins, les (TPE) jouissent d'une croissance soutenue en raison de leur combinaison inhabituelle avec des propriétés remarquables. Pendant le service, ces matériaux se comportent comme des élastomères (par exemple, le caoutchouc naturel vulcanisé) mais, contrairement aux élastomères classiques, ils peuvent être traités au moyen de techniques et d'équipements classiques utilisés pour tous les thermoplastiques.

Les thermoplastiques élastomères (TPE) résultent de l'association de deux matériaux différents aussi bien par leurs propriétés mécaniques que chimiques pour tenter d'avoir d'excellentes caractéristiques de performances. Les deux constituants du composite sont : la matrice et le renfort qui, en se combinant donnent un matériau hétérogène. Les matériaux constituant le composite sont généralement choisis en fonction de l'application que l'on souhaite en faire par la suite. La mise-en-œuvre, les propriétés mécaniques requises, ou encore la résistance au choc seront souvent les critères de choix pour ces composites. Plus particulièrement, les matériaux composites à matrice organique trouvent de plus en plus d'applications.

L'amélioration de ces systèmes composites a été initialement orientée vers des plastiques d'ingénierie de haute technicité, présentant un excellent compromis : densité / propriétés mécaniques. Ces matériaux composites doivent leur essor essentiellement à l'industrie vestimentaire, le sport, l'industrie pharmaceutique, la médecine, l'industrie



alimentaire, l'automobile, l'aéronautique et la pétrochimie. Il existe de nombreux systèmes composites en développement, par exemple, on trouve les thermoplastiques renforcés par des particules qualifiés de borne inférieure en matière de renforcement mécanique. Néanmoins, le succès commercial de certains produits, ainsi que les résultats intéressants sur les relations structure / propriétés de tels systèmes ont conduit les recherches académiques ainsi qu'industrielles à un autre regard sur ce type de composites. D'où, la grande majorité des élastomères thermoplastiques (TPE) qui sont des copolymères associant des blocs mous et durs, tels que le polyamide-b-polyéthers, polyuréthane-b-polyester, ou polyéther-b-polyesters.

Une des multiples branches de la science des matériaux polymères concerne aujourd'hui l'étude de leurs propriétés mécaniques, en particulier leur renforcement par des élastomères réticulés et non réticulés. Un des défis actuels reste de comprendre et d'appréhender les processus de déformation et de l'endommagement de ces mélanges de polymères aux différents types de sollicitations mécaniques.

Les polymères thermoplastiques sont particulièrement intéressants pour leurs bonnes propriétés mécaniques, leur tenue thermique, et leur résistance aux solvants. La modification efficace de leur résistance au choc par le mélange de deux constituants chimiquement différents fut une avancée considérable dans le domaine des polymères. En ajoutant des phases de natures molles à des phases dures de dimensions submicroniques dans une matrice polymère à la température ambiante, il est possible d'augmenter considérablement l'énergie dissipée lors d'un choc et de passer d'un comportement fragile à un comportement ductile. Dans ce cadre, la société DSM connue à l'échelle mondiale dans l'industrie des plastiques s'est efforcée depuis plusieurs années de conférer au (PBT), connu pour une meilleure résistance aux chocs par adjonction d'une autre phase à base d'élastomère. La poursuite de ces efforts passe aujourd'hui par une meilleure compréhension du phénomène de transition ductile-fragile dans ce type de matériaux.

À l'heure actuelle, Ces matériaux composites hétérogènes sont devenus un riche domaine de recherche, compte tenu des phénomènes microscopiques régissant le comportement macroscopique causé par la dépendance de leurs comportements mécaniques aux propriétés des matériaux élémentaires et les interfaces. Dans ce contexte, l'indentification des mécanismes d'endommagement mis en jeu, jusqu'à la rupture demande une meilleure connaissance en terme de microstructure et de propriétés mécaniques, ce qui peut justifier l'importance d'une théorie telle que l'homogénéisation. La modélisation des approches

micromécaniques de la microstructure et de l'endommagement sont d'une grande utilité pour essayer de comprendre tout ce qui se passe vraiment à l'intérieur de la microstructure. En plus de ces efforts, plusieurs essais mécaniques sont menés pour faire valider les modèles et déterminer les propriétés mécaniques ainsi que la résistance des matériaux.

En l'absence de connaissances poussées sur ce type de matériau, l'étude entreprise dans ce travail de thèse a pour ambition d'aboutir à une meilleure compréhension de son comportement mécanique et physicochimique de façon très large. Avant d'aborder la présentation et la discussion des résultats obtenus dans ce travail de thèse, nous allons rappeler dans un premier chapitre l'état des lieux des connaissances sur le comportement des polymères semi-cristallins ainsi les thermoplastiques-élastomères, leur microstructure et leur morphologie.

Le plan de cette thèse se présente en quatre grandes parties :

Une première partie consacrée à l'étude de la matrice de base du polymère ; c'est un poly-téréphtalate de butylène (*PBT*) ou téréphtalate de poly-butylène, un semi-cristallin thermoplastique faisant partie de la famille des polyesters. Ce polymère couramment transformé par injection plastique est obtenu par polycondensation de l'acide téréphtalique et du butane-1,4-dio.

Comme tous les polyesters le poly-téréphtalate de butylène (*PBT*) est très sensible à l'hydrolyse à l'état fondu. Celle-ci est provoquée par l'humidité présente dans la matière qui se transforme en vapeur d'eau lors de la mise-en-œuvre. Cette réaction entraîne une coupure des chaînes macromoléculaires réduisant ainsi leur masse molaire. De ce fait, il est impératif de commencer notre étude par cette matière avant sa transformation, c.-à-d. avant de faire le mélange avec l'élastomère pour obtenir un *TPE*.

Le deuxième volet est une caractérisation thermomécanique des propriétés physiques de la microstructure du mélange par des tests purement expérimentaux à savoir l'analyse enthalpique différentielle DSC et l'analyse dynamique DMA. Les propriétés mécaniques ont été déterminées par des essais de traction uni-axiale à différentes vitesses de déformation. D'autres techniques (vidéo-traction) se sont effectuées au laboratoire de Lille en France, ils ont permis d'étudier l'endommagement par cavitation de ce mélange.

Le troisième volet de cette thèse est consacré à la modélisation numérique de l'effet de la triaxialité des contraintes, du volume de la cavité et du durcissement du matériau sur l'endommagement par cavitation à l'échelle micromécanique d'un VER, par le code de calcul Abaqus. Le dernier volet, est une optimisation par la méthodologie des plans d'expériences de l'effet de trois facteurs d'entrés sur le point de coalescence de vide du mélange d'élastomère.

## ***Préambule***

Les matériaux métalliques ont été largement remplacés par des polymères techniques comme le polyéthylène (PE), polypropylène (PP), Poly-butylène téréphtalate (PBT), afin d'obtenir des réductions de poids et de coût. Depuis maintenant plusieurs dizaines d'années, la recherche et le développement de nouvelles générations de polymères mènent à la création de matériaux présentant des propriétés toujours plus intéressantes. D'une mise-en-œuvre aisée, leur utilisation s'est logiquement généralisée à la plupart des secteurs de l'industrie : textile, optique, automobile, agroalimentaire, aéronautique, cosmétique, etc.

En 1960, le monde de l'industrie a assisté au développement des thermoplastiques élastomères nés de la volonté d'allier les qualités techniques telles que la résistance et la transformabilité des plastiques techniques aux performances des élastomères thermodurcissables, ce qui se traduit par une mise-en-œuvre améliorée et une productivité renforcée. Néanmoins, les (TPE) jouissent d'une croissance soutenue en raison de leur combinaison inhabituelle avec des propriétés remarquables. Pendant le service, ces matériaux se comportent comme des élastomères (par exemple, le caoutchouc naturel vulcanisé) mais, contrairement aux élastomères classiques, ils peuvent être traités au moyen de techniques et d'équipements classiques utilisés pour tous les thermoplastiques.

Les thermoplastiques élastomères (TPE) résultent de l'association de deux matériaux différents aussi bien par leurs propriétés mécaniques que chimiques pour tenter d'avoir d'excellentes caractéristiques de performances. Les deux constituants du composite sont : la matrice et le renfort qui, en se combinant donnent un matériau hétérogène. Les matériaux constituant le composite sont généralement choisis en fonction de l'application que l'on souhaite en faire par la suite. La mise-en-œuvre, les propriétés mécaniques requises, ou encore la résistance au choc seront souvent les critères de choix pour ces composites. Plus particulièrement, les matériaux composites à matrice organique trouvent de plus en plus d'applications.

L'amélioration de ces systèmes composites a été initialement orientée vers des plastiques d'ingénierie de haute technicité, présentant un excellent compromis : densité / propriétés mécaniques. Ces matériaux composites doivent leur essor essentiellement à l'industrie vestimentaire, le sport, l'industrie pharmaceutique, la médecine, l'industrie alimentaire, l'automobile, l'aéronautique et la pétrochimie. Il existe de nombreux systèmes

composites en développement, par exemple, on trouve les thermoplastiques renforcés par des particules qualifiés de borne inférieure en matière de renforcement mécanique. Néanmoins, le succès commercial de certains produits, ainsi que les résultats intéressants sur les relations structure / propriétés de tels systèmes ont conduit les recherches académiques ainsi qu'industrielles à un autre regard sur ce type de composites. D'où, la grande majorité des élastomères thermoplastiques (TPE) qui sont des copolymères associant des blocs mous et durs, tels que le polyamide-b-polyéthers, polyuréthane-b-polyester, ou polyéther-b-polyesters.

Une des multiples branches de la science des matériaux polymères concerne aujourd'hui l'étude de leurs propriétés mécaniques, en particulier leur renforcement par des élastomères réticulés et non réticulés. Un des défis actuels reste de comprendre et d'appréhender les processus de déformation et de l'endommagement de ces mélanges de polymères aux différents types de sollicitations mécaniques.

Les polymères thermoplastiques sont particulièrement intéressants pour leurs bonnes propriétés mécaniques, leur tenue thermique, et leur résistance aux solvants. La modification efficace de leur résistance au choc par le mélange de deux constituants chimiquement différents fut une avancée considérable dans le domaine des polymères. En ajoutant des phases de natures molles à des phases dures de dimensions submicroniques dans une matrice polymère à la température ambiante, il est possible d'augmenter considérablement l'énergie dissipée lors d'un choc et de passer d'un comportement fragile à un comportement ductile. Dans ce cadre, la société DSM connue à l'échelle mondiale dans l'industrie des plastiques s'est efforcée depuis plusieurs années de conférer au (PBT), connu pour une meilleure résistance aux chocs par adjonction d'une autre phase à base d'élastomère. La poursuite de ces efforts passe aujourd'hui par une meilleure compréhension du phénomène de transition ductile-fragile dans ce type de matériaux.

À l'heure actuelle, Ces matériaux composites hétérogènes sont devenus un riche domaine de recherche, compte tenu des phénomènes microscopiques régissant le comportement macroscopique causé par la dépendance de leurs comportements mécaniques aux propriétés des matériaux élémentaires et les interfaces. Dans ce contexte, l'indentification des mécanismes d'endommagement mis en jeu, jusqu'à la rupture demande une meilleure connaissance en terme de microstructure et de propriétés mécaniques, ce qui peut justifier l'importance d'une théorie telle que l'homogénéisation. La modélisation des approches micromécaniques de la microstructure et de l'endommagement sont d'une grande utilité pour

essayer de comprendre tout ce qui se passe vraiment à l'intérieur de la microstructure. En plus de ces efforts, plusieurs essais mécaniques sont menés pour faire valider les modèles et déterminer les propriétés mécaniques ainsi que la résistance des matériaux.

En l'absence de connaissances poussées sur ce type de matériau, l'étude entreprise dans ce travail de thèse a pour ambition d'aboutir à une meilleure compréhension de son comportement mécanique et physicochimique de façon très large. Avant d'aborder la présentation et la discussion des résultats obtenus dans ce travail de thèse, nous allons rappeler dans un premier chapitre l'état des lieux des connaissances sur le comportement des polymères semi-cristallins ainsi les thermoplastiques-élastomères, leur microstructure et leur morphologie.

Le plan de cette thèse se présente en quatre grandes parties :

Une première partie consacrée à l'étude de la matrice de base du polymère ; c'est un poly-téréphtalate de butylène (*PBT*) ou téréphtalate de poly-butylène, un semi-cristallin thermoplastique faisant partie de la famille des polyesters. Ce polymère couramment transformé par injection plastique est obtenu par polycondensation de l'acide téréphtalique et du butane-1,4-dio.

Comme tous les polyesters le poly-téréphtalate de butylène (*PBT*) est très sensible à l'hydrolyse à l'état fondu. Celle-ci est provoquée par l'humidité présente dans la matière qui se transforme en vapeur d'eau lors de la mise-en-œuvre. Cette réaction entraîne une coupure des chaînes macromoléculaires réduisant ainsi leur masse molaire. De ce fait, il est impératif de commencer notre étude par cette matière avant sa transformation, c.-à-d. avant de faire le mélange avec l'élastomère pour obtenir un *TPE*.

Le deuxième volet est une caractérisation thermomécanique des propriétés physiques de la microstructure du mélange par des tests purement expérimentaux à savoir l'analyse enthalpique différentielle DSC et l'analyse dynamique DMA. Les propriétés mécaniques ont été déterminées par des essais de traction uni-axiale à différentes vitesses de déformation. D'autres techniques (vidéo-traction) se sont effectuées au laboratoire de Lille en France, ils ont permis d'étudier l'endommagement par cavitation de ce mélange.

Le troisième volet de cette thèse est consacré à la modélisation numérique de l'effet de la triaxialité, du volume de la cavité et du durcissement du matériau sur l'endommagement

par cavitation à l'échelle micromécanique d'un VER, par le code de calcul Abaqus. Le dernier volet, est une optimisation par la méthodologie des plans d'expériences de l'effet de trois facteurs d'entrés sur le point de coalescence de vide du mélange d'élastomère.

Parmi les différentes applications de ces polymères d'études dans le domaine de l'industrie, on peut citer quelques exemples mentionnés ci-dessous :

### *Applications du PBT/PTMO*





### ***Bâtiment et construction***

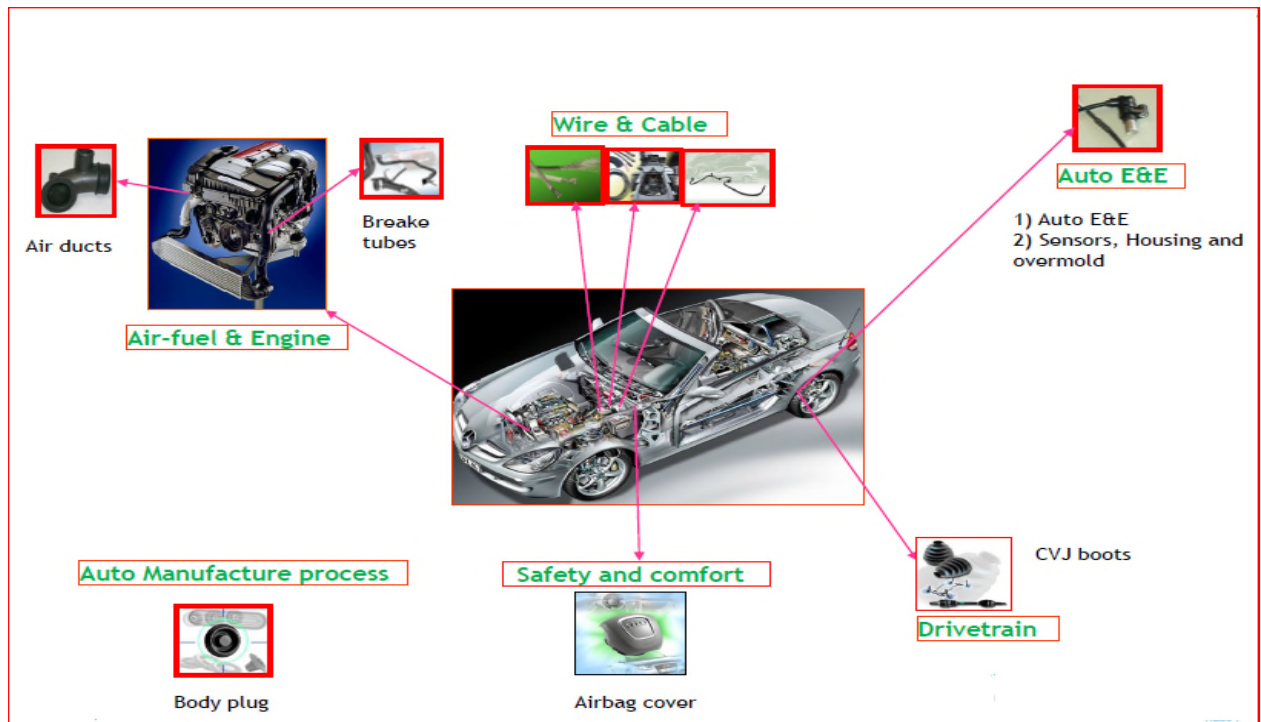


### ***Applications automobiles***

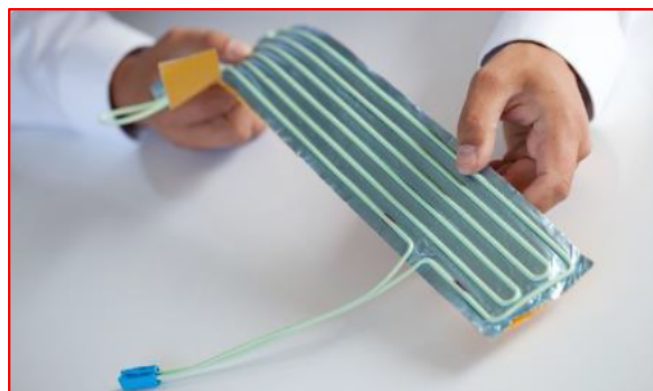
Pourquoi le PBT/PTMO dans les applications automobiles?

- Une excellente ductilité à basse température assure un déploiement sûr ;
- Stabilité à haute température;
- Traitement facile, temps de cycle rapides ;
- Bonne tenue à la fatigue ;
- Résistant aux graisses, aux huiles et aux carburants ;
- Plage de température de - 40°C à + 190°C.





## Électrique et électronique



## *Chapitre I*

# Eléments Bibliographiques Etat de l'Art sur les thermoplastiques

*Ce chapitre présente, un ensemble de connaissances sur le comportement mécanique des thermoplastiques, leurs microstructures et morphologie. Nous passerons par la suite à décrire brièvement les principaux déformations et d'endommagement en grandes déformations de ces matériaux. Par ailleurs, les principales approches dédiées à l'étude mécanique de l'endommagement des matériaux seront brièvement présentées. Afin de mieux décrire le comportement des thermoplastiques et répondre aux problèmes mis en évidence dans ce travail, un état de l'art sur les polymères amorphe et semi cristallin est présenté pour bien illustré notre étude et ses objectifs.*

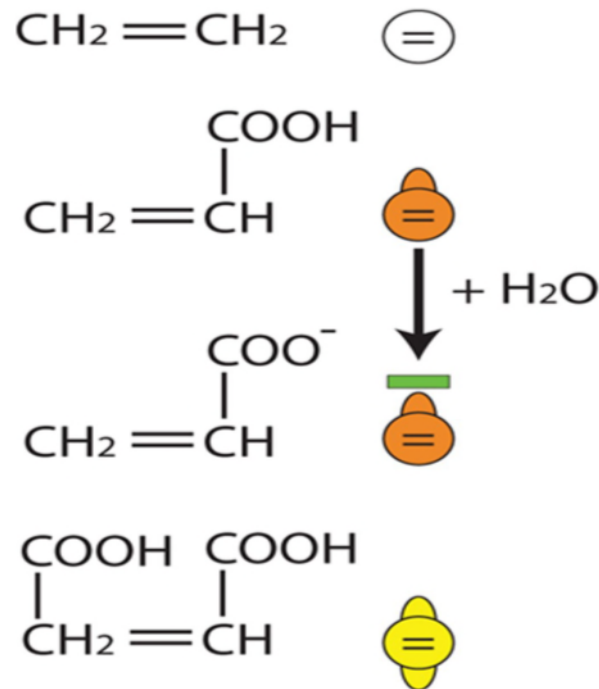
## I.1 Introduction

Le présent chapitre est consacré à la présentation de l'état de l'art sur la déformation des polymères amorphes et semi-cristallins. Avant de s'intéresser au comportement de la morphologie de ces deux types de polymères, il est important de présenter une caractérisation microstructurale de ces matériaux afin de disposer d'une bonne connaissance de leur état de référence. Cette caractérisation fait l'objet de la première partie de ce chapitre. La seconde partie présente une vue globale du comportement mécanique de ces polymères à partir des observations déjà effectuées lors des essais thermomécaniques simples, ainsi que d'illustrer de façon simple les principaux effets agissant sur les réponses mécaniques de ce type de matériau. Par la suite, nous présenterons les divers mécanismes de déformation et d'endommagement pouvant intervenir lors des sollicitations mécaniques. Nous allons rappeler aussi, les différentes études réalisées permettant de décrire la déformation plastique. Enfin, la dernière partie du chapitre est consacrée à la description des différents mécanismes physiques d'endommagement et de quelques modèles associés.

Les polymères sont constitués de longues chaînes macromoléculaires ; chaque macromolécule est formée de plusieurs dizaines à plusieurs milliers d'unités de répétition identiques et liées entre-elles par des liaisons primaires. On peut définir la chaîne par homopolymères s'il existe un seul type d'unité de répétition, et par copolymère dans le cas où on trouve plus de deux espèces de monomères. L'unité structurale ou le segment élémentaire est un élément du monomère contenant une seule liaison capable de rotation. Cet élément est caractérisé par sa longueur et l'angle qu'il fait avec les deux segments élémentaires voisins.

La composition chimique du monomère, la disposition des atomes et des liaisons, l'ordre d'enchaînement et les aspects topologiques (architecture), ce sont les caractéristiques à travers lesquelles on peut donner une définition de la structure de la macromolécule. En général, on peut former un polymère à partir des neuf éléments chimiques suivants : le carbone, l'hydrogène, l'azote, l'oxygène, le fluor, le silicium, le phosphore, le soufre et le chlore[1]. Le squelette de la macromolécule est le plus souvent composé d'atomes de carbone. Mais on peut trouver également d'autres atomes ou des groupements latéraux attachés au squelette par une liaison primaire. La structure chimique est très importante car elle conditionne les interactions inter et intramoléculaires, et par conséquent, les propriétés physiques et mécaniques du polymère. La disposition des atomes et les groupements latéraux le long de la chaîne est appelée configuration. Cette configuration telle qu'elle, est irréversible. Elle détermine

l'arrangement spatial des atomes. Deux macromolécules peuvent par exemple être définies par des monomères contenant les mêmes atomes mais se différencient par la disposition et les liaisons entre ces atomes, figure I.1.



**Figure I.1:** Représentation schématique d'un monomère (éthylène en blanc, acide acrylique en orange, maléique en jaune).

Par contre, la conformation est un arrangement spatial d'une molécule réversible c.-à-d. momentané. Il s'agit de rotations autour des liaisons simples ou liaisons covalentes. Le passage d'une conformation à une autre se fait grâce au franchissement d'un seuil énergétique. Certaines conformations ont plus de probabilité d'être obtenues que d'autres car leur énergie potentielle est minimale ; on parle de conformation stable comme par exemple la conformation correspondant à un angle de rotation de  $0^\circ$  ou la conformation gauche (angle inférieur à  $120^\circ$ )[2]. Cette barrière énergétique peut être franchie grâce à l'augmentation de la température.

On peut définir aussi la structure moléculaire par deux types de liaisons, une liaison forte intramoléculaire et d'autres faibles inter-chaines (liaison hydrogène ou de *Van der Waals*), leur énergie est souvent inférieure à  $50 \text{ kJ/mol}$ . Ces liaisons existent entre deux atomes de deux molécules voisines mais également entre deux atomes d'une même molécule, rendus voisins par le repliement de la chaîne. La cohésion entre les chaînes est donc assurée par ces liaisons secondaires. La rupture des liaisons faibles sera causée soit par l'élévation de la température ou bien par l'application d'une contrainte tandis que les liaisons fortes seront conservées. Les liaisons atomiques le long de la chaîne moléculaire sont de type covalent. Elles sont de forte

intensité ( $300$  à  $1500$   $kJ/mol$ ) mais peuvent rendre la chaîne plus flexible si la température est suffisante, de sorte que la macromolécule prenne une forme de pelote. L'organisation de la macromolécule a son importance dans son identification. Par réaction de polymérisation, il est possible d'obtenir des polymères : à molécules linéaires, ramifiées ou réticulées.

Les polymères à molécules linéaires sont formés de longues chaînes moléculaires composées par des atomes de carbone ou des groupements d'atomes attachés par des liaisons covalentes. Le monomère comporte donc deux extrémités et sur le squelette qui peuvent se greffer à d'autres atomes. Ces molécules peuvent être souples et flexibles car les groupements d'atomes peuvent facilement effectuer des rotations autour des liaisons covalentes. Elles sont souvent enchevêtrées et forment des nœuds physiques de réticulation.

Les molécules ramifiées sont des molécules linéaires comportant des branches latérales attachées au squelette principal, ce sont les ramifications. Dans ce cas, le monomère comporte plus de deux extrémités formant un réseau tridimensionnel de macromolécules (polymère à molécules réticulées). Ce réseau est obtenu chimiquement et il se crée des points de jonction (nœuds chimiques de réticulation) entre les atomes des différentes molécules. Ces nœuds sont inaltérables car ils sont formés par des liaisons covalentes. Par contre, les nœuds physiques peuvent disparaître par élévation de température ou bien sous une sollicitation. Les propriétés mécaniques et physiques peuvent être obtenues suivant le type d'architectures de la chaîne, les molécules à chaînes linéaires sont en général souples alors que les polymères à chaînes réticulées sont plus rigides.

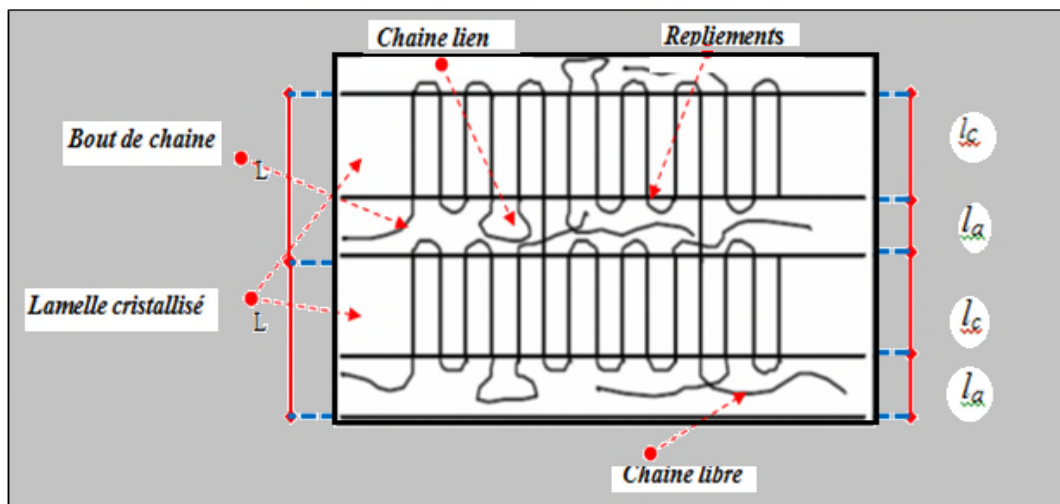
Les propriétés physiques et mécaniques telles que le module de Young ou la viscosité évolue en fonction de la masse molaire. En général, les masses molaires des chaînes macromoléculaires sont élevées (entre  $3,104g/mol$  et  $106g/mol$ ) et proviennent d'un compromis entre bonnes propriétés physiques associées à des masses élevées et à la facilité de mise-en-forme réclamant des masses molaires plutôt faibles[2]. On peut citer d'autres caractéristiques physiques permettant de caractériser les macromolécules, comme la distance quadratique moyenne entre les extrémités d'une chaîne, la longueur étirée de la chaîne et le rayon de giration qui est la distance quadratique moyenne des segments depuis le centre de gravité de la chaîne ; figure I.2[3].

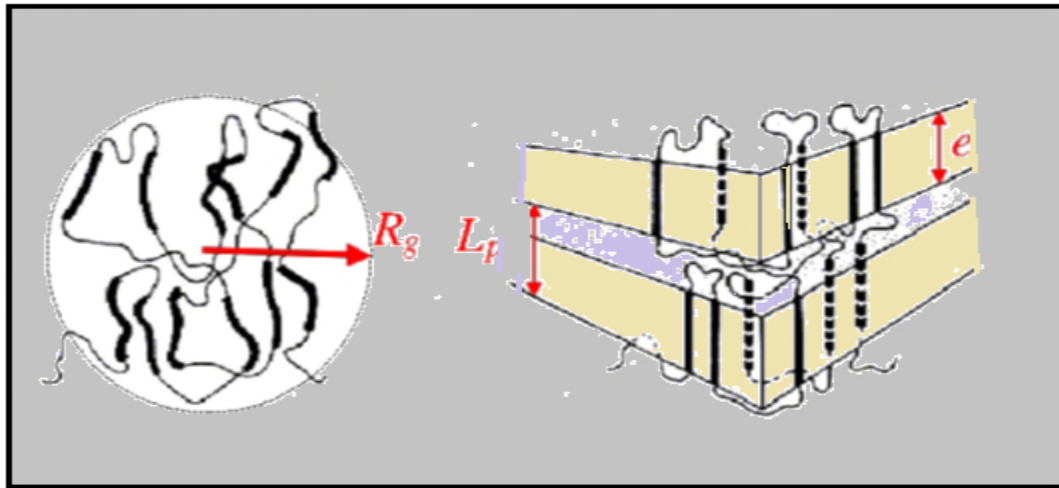
Une autre spécificité qui définit un polymère et qui est fonction de sa structure moléculaire est sa capacité à cristalliser (vitesse de cristallisation). Lorsque les chaînes sont linéaires de motifs simples, elles peuvent s'ordonner facilement et tendent à cristalliser

rapidement. Donc, le taux de cristallisation dépend des conditions de cristallisation telles que le temps de refroidissement ou de la température. Par contre, les chaînes comportant des groupements latéraux encombrants ou présentant une rigidité élevée cristallisent difficilement donnant seulement des polymères amorphes tels que les polymères à chaînes réticulées.

Ces polymères sont en général classés dans deux grandes familles suivant leur comportement thermomécanique : Les thermoplastiques et les élastomères. Les thermoplastiques sont des polymères à chaînes linéaires ou ramifiées. Ils peuvent être complètement amorphes ou semi-cristallins. A basse température, leur rigidité est élevée mais celle-ci diminue à haute température. Ils ont tendance à avoir un comportement liquide lorsqu'ils dépassent la température de fusion et rigide après refroidissement. Leur mise-en-forme se fait le plus souvent à chaud et ils peuvent être réchauffés et remis en forme de manière répétitive.

Les élastomères sont des matériaux amorphes. Ils sont constitués de chaînes réticulées dont les points de jonction sont obtenus par vulcanisation. La vulcanisation leur permet d'être très souples et déformables car le taux de réticulation est faible. Leur déformabilité est élevée et réversible car les pontages obtenus lors de la vulcanisation assurent la mémoire de l'état initial.





*Figure I.2 : organisation en lamelles cristallines formées de repliements de chaînes macromoléculaires [3].*

## I.2 Polymères semi-cristallins

L'hétérogénéité de la structure des polymères semi-cristallins rend plus complexes l'étude des mécanismes de déformation et d'endommagement. Les polymères semi-cristallins ont pour la plupart une ténacité élevée qui répond aux exigences de produits devant résister à des conditions d'utilisation sévères. Afin de comprendre le comportement mécanique des polymères semi-cristallins, on va définir au préalable la microstructure et la morphologie de ces matériaux. Un polymère est formé à partir d'un fondu ; il est constitué de chaînes organiques polymérisées, appelées chaînes macromoléculaires qui vont s'organiser de façon plus ou moins aléatoire au cours de l'élaboration. Pour qu'un polymère cristallise il faut que sa chaîne macromoléculaire montre une forte régularité, et que sa cinétique de cristallisation ne soit pas trop lente. Les polymères cristallisables auront une configuration régulière (iso-tactique ou syndio-tactique) ainsi qu'une conformation globale régulière (zig-zig planaire ou hélice pour les polymères thermoplastiques). Les chaînes macromoléculaires marquent toujours des irrégularités dans l'enchaînement des motifs monomères composant la chaîne où la présence d'une ramification va avoir pour effet de modifier et de limiter la cristallisation.

C'est pourquoi les polymères ayant cristallisé sont appelés polymères semi-cristallins car les polymères ne sont jamais entièrement cristallisés. Aussi, coexistent-ils dans un semi-cristallin à matière cristallisée et à matière amorphe [4].

L'épaisseur des lamelles cristallines est d'environ de 10 nanomètres ; celles-ci ont généralement tendance à s'empiler lors de la cristallisation pour former des fibrilles. Ainsi, une

chaîne de polymère peut participer à plusieurs lamelles. Les sphérolites sont décrits par un arrangement radial des fibrilles formées à partir d'un centre de nucléation ; figure I.3.

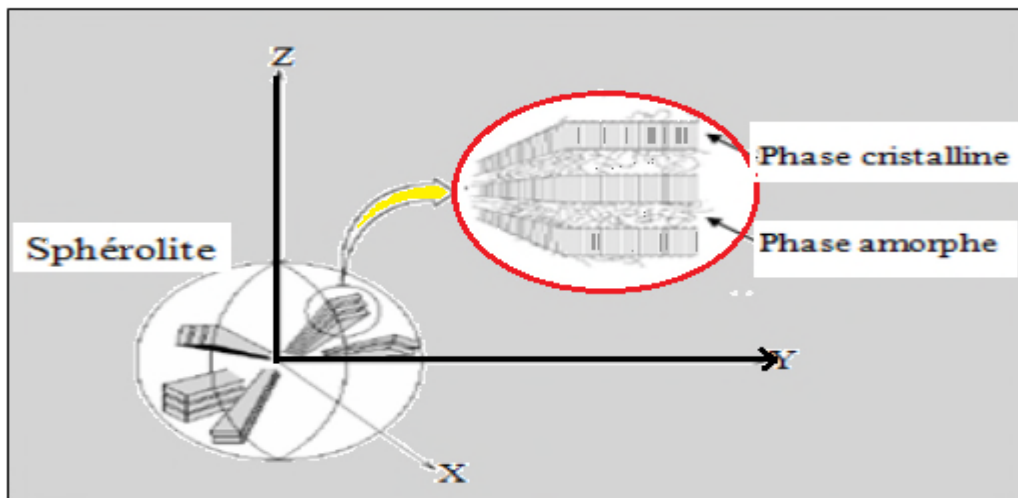


Figure I.3 Empilement des lamelles cristallines avec vue globale du sphérolites[5].

L'organisation de ces lamelles (fibrilles) pourra donner naissance à des sphérolites. Les sphérolites sont généralement de forme sphérique dont la taille dépend du type de polymère et du processus thermique. La dimension des sphérolites peut varier du micromètre au millimètre [6]. La croissance des lamelles commence à partir d'un centre pour occuper tout l'espace. L'enveloppe sphérique des sphérolites lors de leur croissance est modifiée lorsqu'ils finissent par se toucher. Ils présentent finalement un contour d'aspect polygonal ; figure I.4. La direction de croissance des sphérolites correspond à une direction cristallographique bien particulière. Cette organisation associée à un caractère fortement anisotrope des cristaux polymères leur confère des propriétés optiques intéressantes.

L'histoire thermique et les agents de nucléation jouent un rôle important dans l'organisation des lamelles cristallines (Cangemi et Meimon, 2002) [7], les conditions de refroidissement local durant les procédés de mise-en-forme connues, peuvent conduire à des morphologies variant dans l'épaisseur du produit. Par exemple, dans les zones de refroidissement rapide, la microstructure à sphérolites aura de très petites tailles même négligeables avec un faible taux de cristallinité. En revanche, pour un refroidissement lent, la microstructure comprend des sphérolites plus gros comportant des vides. Le taux de cristallinité sera alors plus élevé (Hamouda, 2000)[8]. D'autres organisations locales existent à l'échelle atomique caractérisée par un ordre à longue portée (maille cristalline). Les paramètres structuraux de cette organisation sont encore plus petits que l'épaisseur de lamelle cristalline.



La figure I.6 permet de rendre compte de ces différents niveaux d'organisation hiérarchique en partant de la structure sphérolitique jusqu'à la maille cristalline.

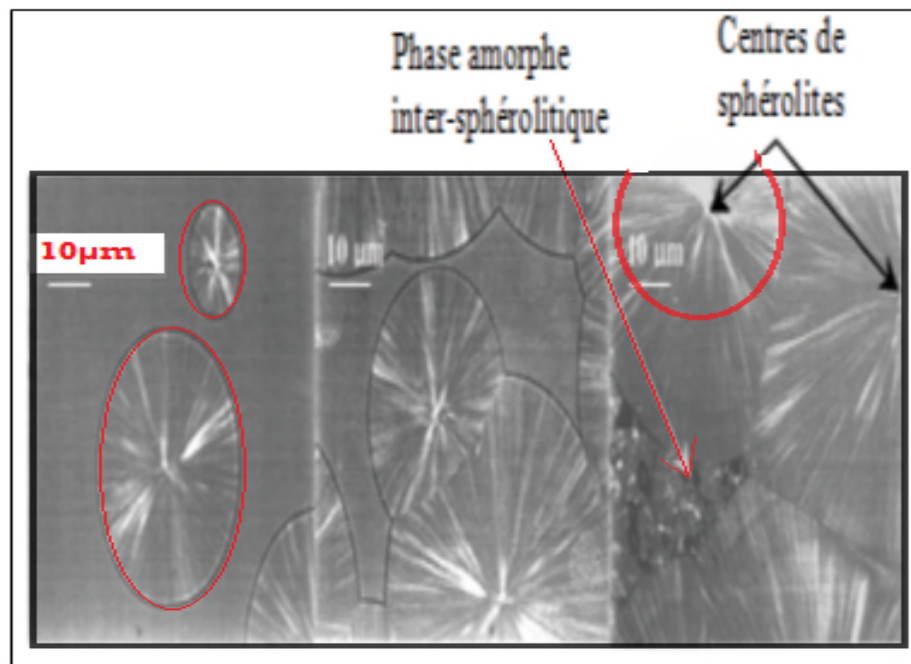


Figure I.4 croissance de sphérolites[6].

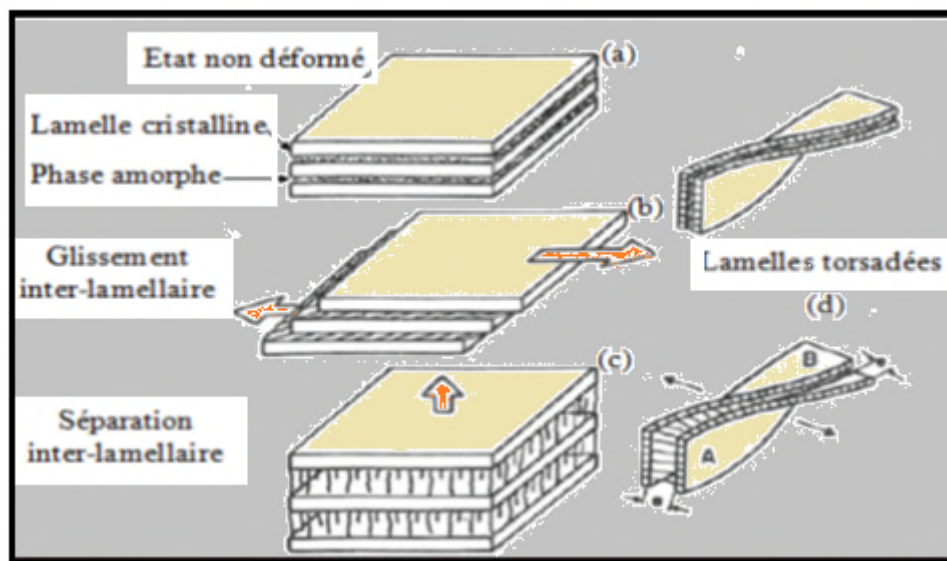
### I.2.1 déformation et endommagement des polymères semi-cristallins

L'analyse du comportement et des propriétés mécaniques de ces matériaux exige des connaissances précises des mécanismes de déformation et d'endommagement. En sollicitation mécanique, la morphologie des polymères semi-cristallins induit des mécanismes de déformations particuliers. Ces mécanismes de déformation sont étroitement liés à la présence des deux phases, amorphe et cristalline. A température ambiante, la phase amorphe peut être à l'état vitreux, ou à l'état caoutchouteux. A noter que la phase amorphe inter-lamellaire des polymères semi-cristallins peut présenter des caractéristiques différentes du polymère amorphe, en particulier à la température de transition vitreuse (Vigier et al. 1992)[6]. Dans les semi-cristallins, la phase amorphe est dispersée et allongée entre les phases cristallines causant une déformation par glissement cristallographique lors d'une sollicitation. Des travaux récents suggèrent un mécanisme de dé-tricotage de la phase cristalline provoqué par la phase amorphe (Monasse et al. 2007)[9]. En revanche, à l'échelle de la morphologie sphérolitique, il faut prendre en compte la distribution des cristallites dans le sphérolite, ainsi que la présence de cristallites imparfaites aux frontières.

### I.2.1.1 Micro-mécanismes de déformation

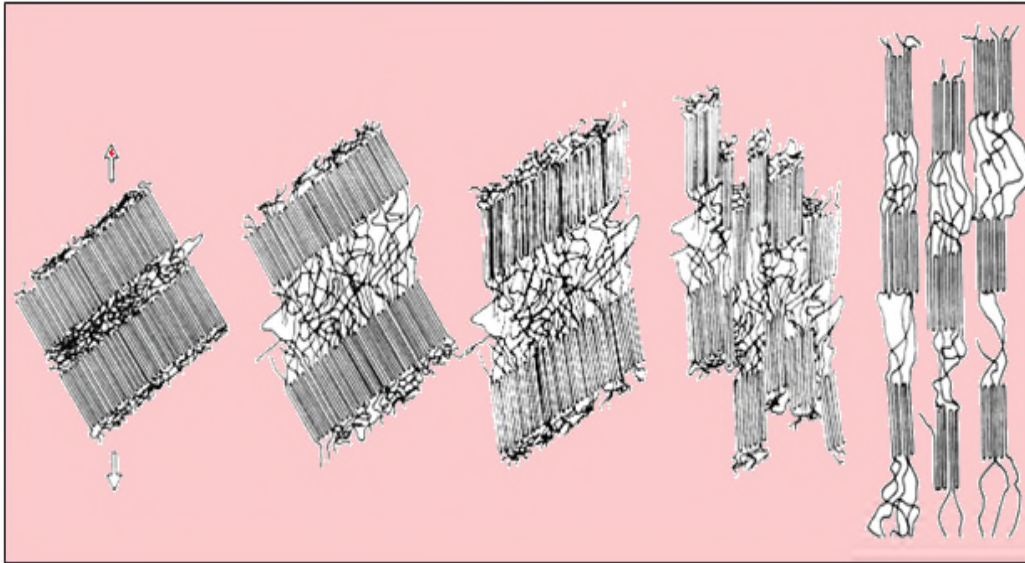
Lors d'une sollicitation uni-axiale les mécanismes de déformation vont tout d'abord avoir lieu dans la phase amorphe (zones amorphes inter-lamellaires), plusieurs auteurs ont utilisé le modèle à deux phases pour présenter la déformation des polymères semi-cristallins [10], figure : I.5. La faible épaisseur de la couche amorphe et l'activation du mécanisme de séparation nécessite une contrainte assez élevée. En traction, ce phénomène peut être à l'origine de la création de cavités inter-lamellaires [11,12], et les mécanismes cristallographiques vont avoir lieu de manière à basculer progressivement les chaînes dans la direction d'étirement.

La destruction des lamelles par fragmentation en blocs cristallins plus petits reliés par des chaînes étirées donne la naissance à une structure micro-fibrillaire, ce qui a été montré par Peterlin (1971)[13]. La figure I.5, montre bien l'évolution d'une morphologie lamellaire en une morphologie micro-fibrillaire.



**Figure I.5** : Mécanismes de déformation de la phase amorphe dans les polymères semi-cristallins [12]

Les déformations à l'échelle d'un sphérolites sont complexes en raison de l'organisation spatiale des lamelles cristallines qui le constituent. Ainsi, les zones amorphes et les lamelles cristallines s'y déforment en traction, en cisaillement, ou en compression selon leur orientation dans le sphérolites par rapport à l'axe de sollicitation [11].



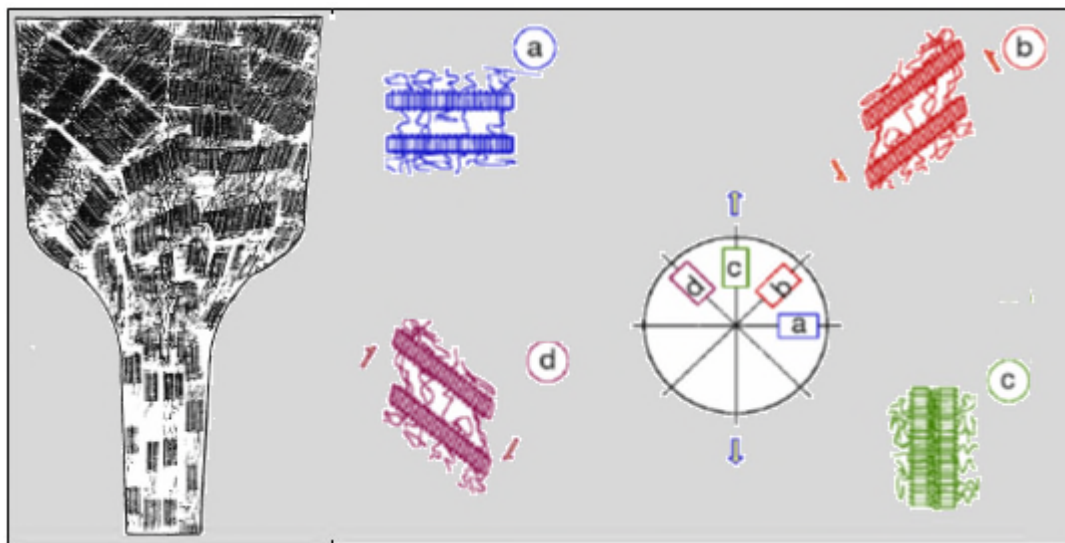
**Figure I.6 :** évolution d'une morphologie lamellaire en une morphologie micro-fibrillaire[13].

En traction uni-axiale, deux niveaux de déformation et trois zones sont habituellement considérés, figure I.6. Dans les premiers stades de la déformation, les régions amorphes intersphérolites sont sollicitées préférentiellement, favorisant ainsi une déformation homogène et réversible. Progressivement, la déformation devient non-uniforme suite à la variation de l'orientation des lamelles cristallines autour de l'axe de sollicitation, et de la localisation de la déformation dans certaines régions [10,11,14].

Selon, Addiego (2006)[11], la déformation est initiée au centre du sphérolite, puis se propage vers les zones périphériques. Les lamelles étant perpendiculaires à la direction de traction figure I.7. Le mécanisme le plus actif est la séparation inter-lamellaire qui en grandes déformations, peut provoquer une extension importante des molécules de liaisons dans la phase amorphe conduisant à la formation de cavités et à la fragmentation des lamelles en petits blocs. Dans les zones diagonales (a), les lamelles sont soumises à la fois à un glissement et à une séparation inter-lamellaire.

Les cristallites tournent vers l'axe de traction entraînant la fragmentation des cristaux. Le sphérolite perd progressivement sa forme sphérique initiale pour prendre une forme ellipsoïdale. Les zones polaires possèdent une plus grande résistance à la déformation du fait de l'orientation des lamelles parallèlement à l'axe de sollicitation introduisant à la fois la séparation et le cisaillement inter-lamellaire. L'apparition de la déformation est retardée par rapport aux autres zones. Toutefois, lorsqu'elle a lieu, elle provient de la fragmentation des

lamelles cristallines à cause de la compression latérale due à la déformation des zones diagonales.



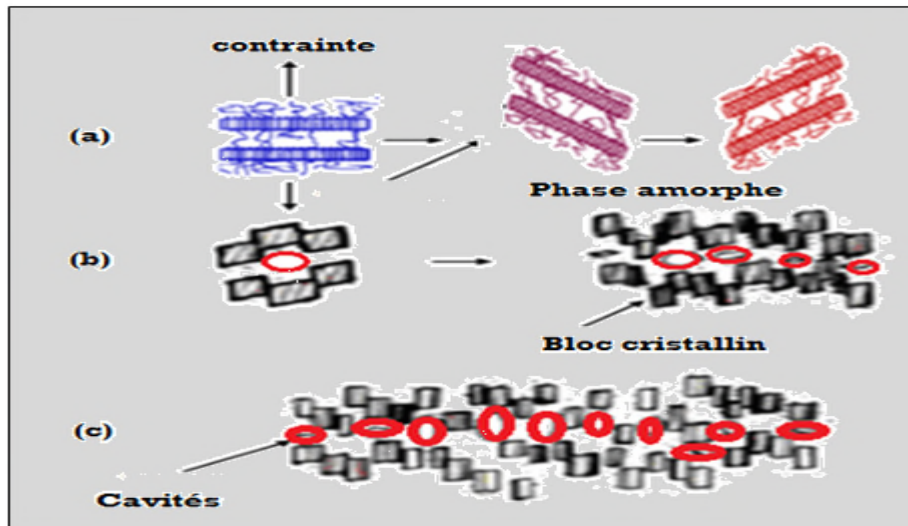
*Figure I.7 : déformation d'une sphérolite en traction uni-axiale [12].*

### I.2.1.2 Micro-mécanismes d'endommagement

L'hétérogénéité de la structure des polymères semi-cristallins rend l'étude de l'endommagement des polymères complexe. Selon la littérature, l'endommagement couvre plusieurs mécanismes : cavitation, craquelures, décohésion aux interfaces (pour un matériau renforcé par des charges), etc. Etant donné que l'endommagement est dû à la naissance d'un certain nombre de micro-vides dans le matériau, il s'accompagne d'une **variation de volume**. Les micro-mécanismes sont généralement liés à la fragmentation, et à l'orientation des lamelles cristallines dans le sens de la sollicitation [13]. Ce phénomène survient lors du passage d'une structure sphérolitique à fibrillaire. Deux types de cavitation peuvent intervenir dans les polymères semi-cristallins :

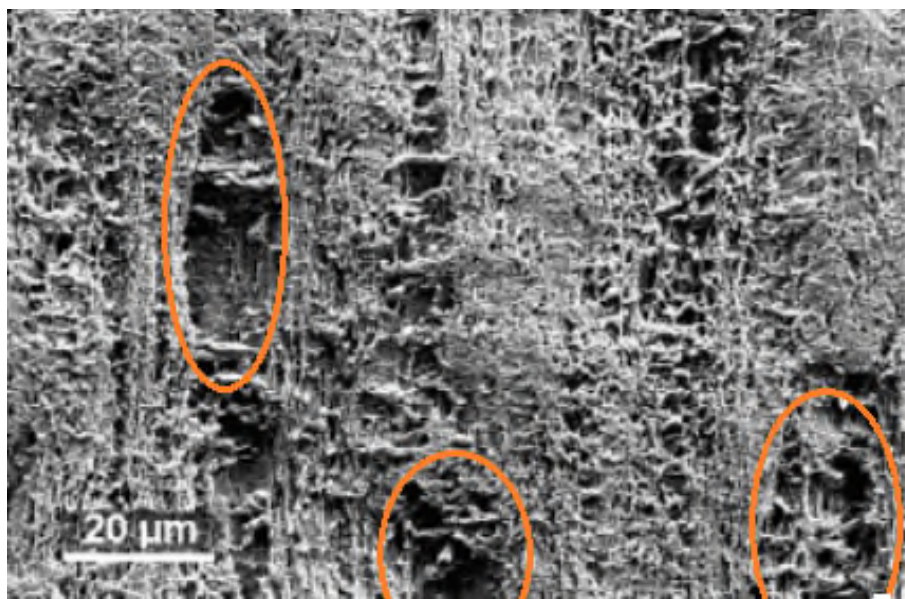
- cavités formées au moment de la cristallisation,
- cavités formées au cours de la sollicitation.

Selon Galeski, (2003)[15] et Pawlak (2007)[14], la cavitation pour un *PEHD* en sollicitation uni-axial se manifeste par un blanchiment du matériau près de la limite d'élasticité. Ce phénomène est dû à la présence de plusieurs cavités qui vont croître lorsque la sollicitation mécanique va augmenter en fragmentant les lamelles cristallines en petite taille, figure I.8.



*Figure I.8 microcavités dans un polymère semi-cristallin[16].*

Selon Pawlak, 2007[14], les micro-vides apparaissent dans les régions périphériques des sphérolites pour les faibles déformations, mais pour des états de déformation plus sévères ces craquelures seront de plus en plus nettes. A environ 70% de déformation, ils ont remarqué des phénomènes de rupture suivant le contour des sphérolites engendré par un début de modification de la morphologie. À partir de 93% de déformation, ils ont observé que cette morphologie sphérolitique se met à disparaître dans sa totalité. Selon Addiego (2006)[11] à environ 130% de déformation, les polymères semi-cristallins vont engendrer une structure micro-fibrillaire avec des cavités orientées suivant l'axe de sollicitation, figure I.9.

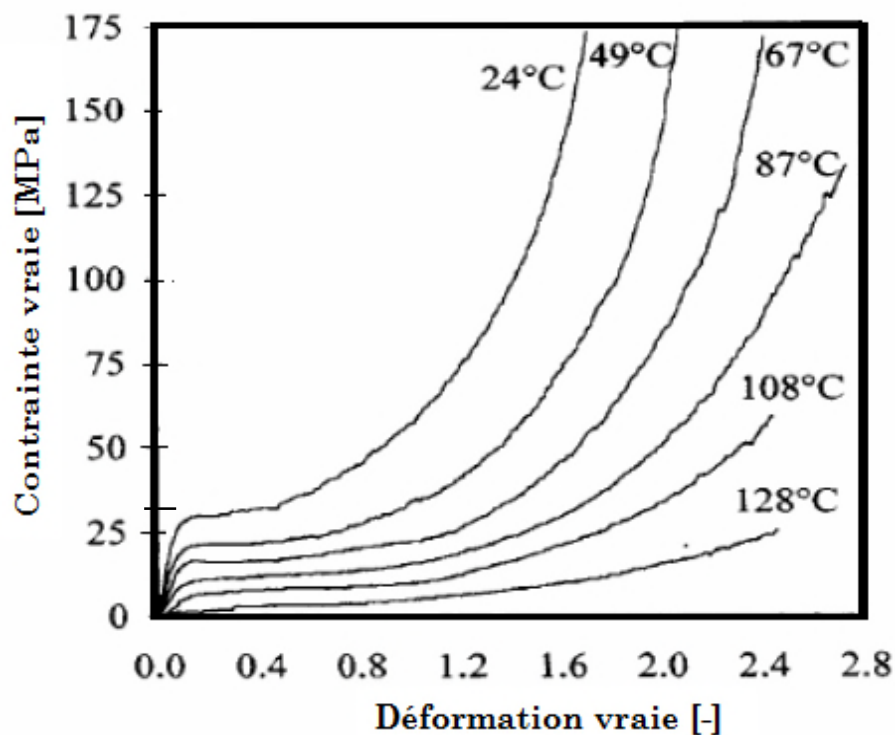


*Figure I.9 : formation de défauts microstructuraux par MEB à 130% de déformation[11].*

## I.2.2 comportement mécanique en grandes déformations

De nombreux paramètres influent sur le comportement du polymère à savoir les conditions de mise-en-œuvre, de sollicitations et d'environnement (milieu, température, pression). Les effets au niveau macroscopique des mécanismes de déformation à l'échelle moléculaire des matériaux polymères semi-cristallins sont difficilement quantifiés. Pour les niveaux faibles de déformation, le polymère est élastique linéaire en sollicitation statique (traction uni-axiale) et viscoélastique linéaire (DMA). Pour les grandes déformations, il est caractérisé par un comportement viscoélastique non linéaire avant le seuil d'élasticité suivi par un comportement plastique ou viscoplastique [17].

Il est possible de mettre en évidence différents domaines de comportement en soumettant un polymère semi-cristallin à une sollicitation de traction uni-axiale, figure I.10. Ces domaines sont caractérisés par la perte de linéarité du comportement et par la recouvrance, c'est-à-dire la capacité du matériau à retrouver son état initial.



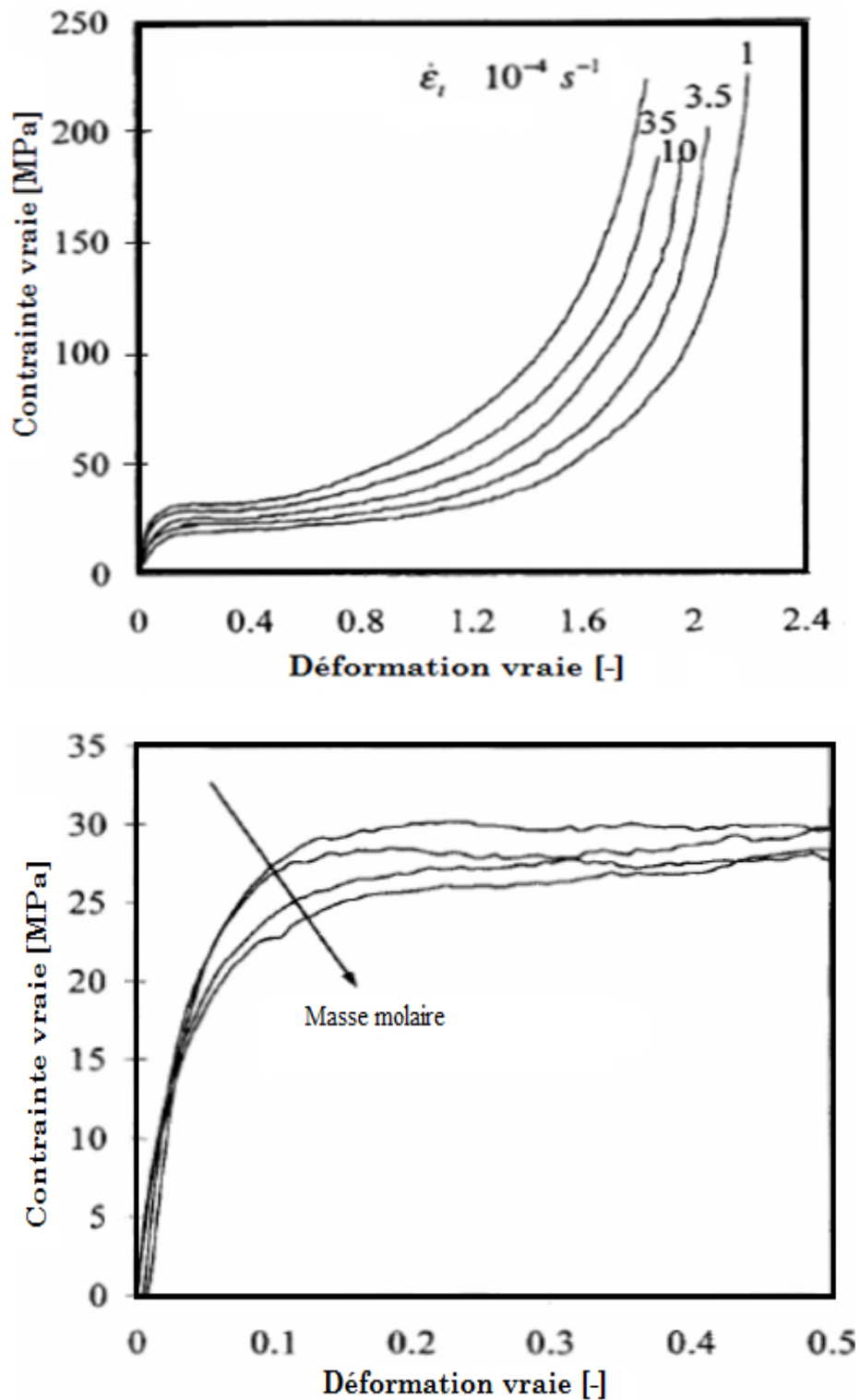


Figure I.10 : Influence de : température, vitesse et masse molaire sur le comportement d'un semi-cristallin en traction [18].

Ce comportement des polymères est particulièrement lié au fait que les macromolécules ne réagissent pas toujours instantanément à l'application d'une sollicitation. Les différentes chaînes moléculaires constitutives tentent de répartir les contraintes imposées en se réarrangeant physiquement jusqu'à adopter une configuration d'équilibre. Comme tous les

polymères, le comportement des polymères semi-cristallin est très sensible aux conditions d'essai comme la vitesse de déformation et la température. Plusieurs études ont été réalisées pour caractériser cette sensibilité[11];[18]. Ces courbes montrent que lorsque la vitesse de déformation diminue ou lorsque la température augmente, la limite d'élasticité diminue. Le phénomène de durcissement plastique diminue également d'intensité. À noter que, l'influence des paramètres moléculaires tels que la masse molaire, la cristallinité, l'architecture des chaînes, sur le comportement mécanique macroscopique a été mise en évidence par plusieurs auteurs (Olasz et Gudmundson,2006 [19]; Hillmansen et al.2000[18]).

### I.2.2.1 Variation volumique sous sollicitation mécanique

La déformation volumique doit surement apporter des informations complémentaires importantes pour la caractérisation mécanique d'un polymère. Il fait partie des données essentielles à considérer lors de la modélisation du comportement. C'est une façon précise pour étudier les effets de la triaxialité à partir d'une sollicitation unidirectionnelle. Plusieurs auteurs ont montré que la déformation plastique des polymères purs et chargés est de nature non isochore [20],[21]. A travers ces recherches, ils ont identifié tous les mécanismes intervenant à cette variation de volume. Cette variation de volume peut être définie par :

$$\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{Totale} = (1 + \varepsilon_1)(1 + \varepsilon_2)(1 + \varepsilon_3) - 1 \quad (I-1)$$

$\varepsilon_1$ ,  $\varepsilon_2$  et  $\varepsilon_3$  : sont les déformations nominales dans les trois directions perpendiculaires du repère de traction. En faisant souvent l'hypothèse de l'isotropie transverse ( $\varepsilon_2 = \varepsilon_3$ ), plusieurs auteurs ont essayé de déterminer la variation de volume dû à la cavitation ou bien aux d'autres mécanismes de déformations. D'après la loi de comportement des polymères, on doit avoir une contribution élastique et non élastique, donc on peut avoir la relation suivante :

$$\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{Totale} = \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{élastique} + \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{anélastique} \quad (I-2)$$

Selon Bucknall et al. (1972) la variation de volume des polymères sous sollicitation uniaxiale peut-être décomposée en trois parties distinctes :



$$\left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{Total} = \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{élastique} + \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{cavitation} + \left(\frac{\Delta V}{V_0}\right)_{cisaillement} \quad (I-3)$$

À noter que la déformation par cisaillement n'introduit aucune variation de volume. Les auteurs [22] ont modifié la déformation volumique nominale totale (modèle de Bucknall) par la déformation volumique de Hencky.

$$\varepsilon_V = \ln \left( \frac{V}{V_0} \right) \quad (I-4)$$

La décomposition de Bucknall devient :

$$\varepsilon_V = \ln \left( \frac{V}{V_0} \right)_{élastique} + \ln \left( \frac{V}{V_0} \right)_{Cavitation} + \ln \left( \frac{V}{V_0} \right)_{cisaillement} \quad (I-5)$$

Cette formulation de changement de volume a été reprise dans de nombreuses études par (Heikens et al., 1981)[23]; et (Gloaguen et Lefebvre, 2001)[24]. Dans le travail d'Addiego et al. (2006)[25]<sup>25</sup>, la même décomposition de la variation de volume a été introduite dans la formulation de Hencky. Une nouvelle composante de la variation de volume liée à l'orientation et qui considère les trois mécanismes de variation de volume (l'effet élastique de la pression hydrostatique sur les liaisons de Van Der Waals ( $\varepsilon_{v,el}$ ), le réarrangement moléculaire dû à l'orientation ( $\varepsilon_{v,or}$ ) et la formation de craquelures  $\varepsilon_{Vcr}$ ). Selon (Pawlak, 2007) [14]; (Addiego, 2006) [11], la déformation volumique dans les polymères semi-cristallins, figure I.11, montrent que la phase viscoélastique s'accompagne d'une légère augmentation de volume et l'écoulement plastique marque un début par une densification, soit par une légère augmentation de la variation volumique. Alors que pour les grandes déformations, la déformation plastique s'accompagne d'une dilatation plus ou moins grande. (G'sell et al. ,1992[26]) à observer pour certains polymères, que le durcissement s'accélère brusquement à partir d'une déformation seuil. Au-delà de ce point d'inflexion, le volume diminue jusqu'à la rupture.

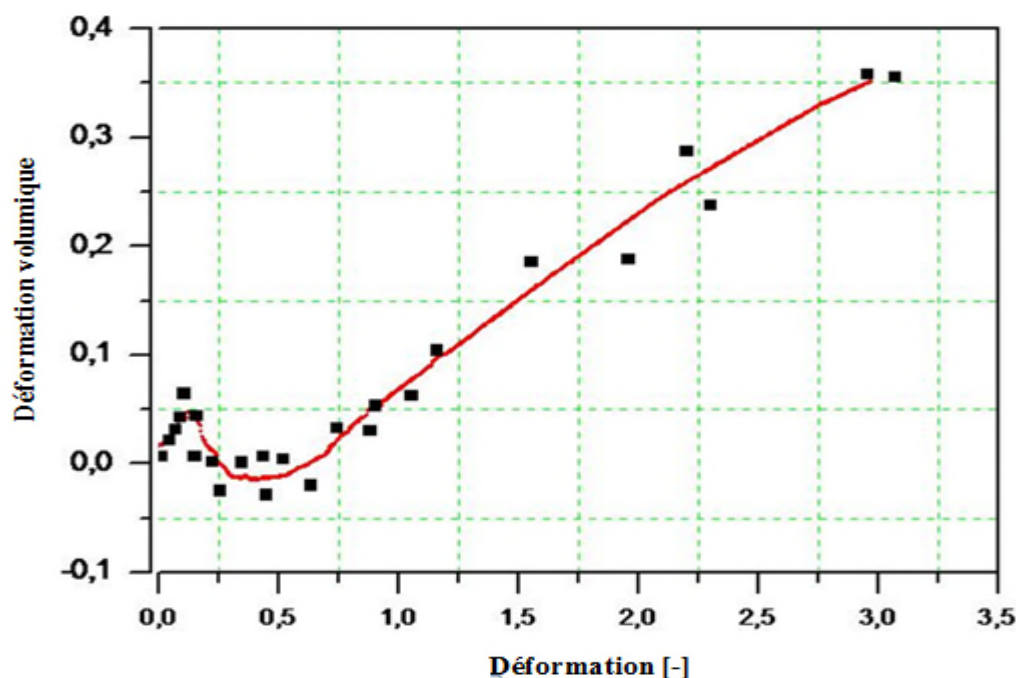


Figure I.11 déformation axiale et volumique d'un semi-cristallin[14].

Parmi les observations effectuées par certains auteurs concernant la variation de volumes pour les polymères semi-cristallins, on peut citer les travaux de :

Naqui et Robinson, 1993[27]; ils ont expliqué l'expansion élastique due à l'action de la contrainte hydrostatique sur les liaisons de Van Der Waals et l'effet du coefficient de Poisson.

Gaucher-miriet al., 1997[28] ; ont étudié la compaction de la phase amorphe provoquée par la diminution de la distance intermoléculaire amorphe, tandis que les chaînes sont étirées et orientées entre les lamelles cristallines dans les sphérolites déformés.

G'sellet al., 2004[29]; ils ont discuté la destruction de l'ordre cristallin qui commence par l'activation de la fragmentation progressive des cristallites, ce qui génère un transfert des chaînes cristallines vers les amas amorphes.

Castagnet et Deburck, 2006[30], ont admis que la cause principale de l'augmentation du volume en grandes déformations était bien les mécanismes de cavitation, donc la cavitation commence dans les zones périphériques des sphérolites et se continue par une croissance et coalescence des micro-vides au cours de la micro-fibrillation.

Addiego, 2006[11]; Cangemi et al., 2004 [7], ont étudié l'effet de la température et de la vitesse de déformation sur l'évolution de la variation volumique. Ces effets varient d'un matériau à l'autre, mais d'une manière générale en grandes déformations, on peut noter que lorsque la

température décroît ou la vitesse de déformation augmente, la déformation volumique augmente, figure I.12.

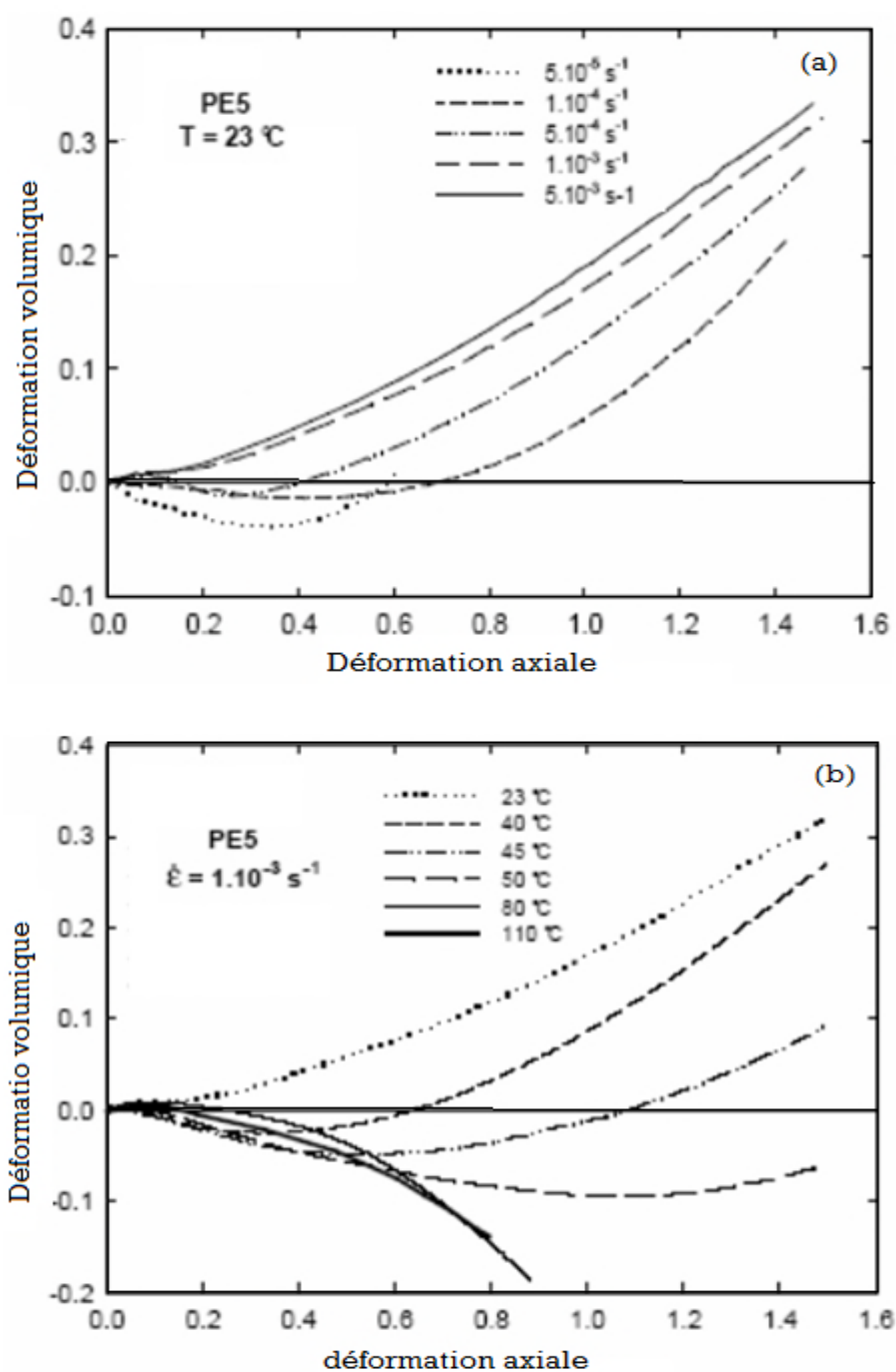


Figure I.12 : Influence de la vitesse de déformation et de la température sur la variation de volume du PEHD en traction[11].

### I.3 Polymères amorphes

Les polymères amorphes sont des polymères à chaînes moléculaires orientées de manière aléatoire, avec un arrangement spatial des macromolécules irréguliers. Deux causes principales

sont à l'origine de l'incapacité des polymères amorphes à cristalliser, soit leur structure est trop encombrée par des groupements latéraux empêchant l'alignement des chaînes, soit la viscosité du matériau est trop élevée à la température de fusion empêchant les mouvements moléculaires nécessaires à la cristallisation de se faire. Les polymères amorphes qui sont dépourvus de phase cristalline sont transparents. Les propriétés physiques des polymères amorphes sont conditionnées par la mobilité moléculaire due normalement à l'espace existant entre les molécules et la viscosité. Aux températures très élevées, le polymère se comporte comme un liquide fluide car la mobilité moléculaire est grande. Les unités constitutives se déplacent indépendamment les unes des autres. Lorsque la température est comprise entre ( $T_g$  et  $1,5 T_g$ ), le polymère devient liquide avec une viscosité et un temps de relaxation plus élevés, il s'agit de l'état caoutchouteux du polymère. Avec la diminution de température on aura aussi une atténuation de l'énergie thermique et une diminution du volume spécifique du polymère. Les chaînes sont de plus en plus compactées, il existe donc moins de vides où les unités constitutives peuvent se déplacer. Lors du refroidissement du matériau lorsque l'on dépasse la  $T_g$  (température de transition vitreuse), on se retrouve à une mobilité moléculaire très faible et un temps de relaxation très élevé. Avec cette température de transition vitreuse plusieurs propriétés physiques subissent des changements on peut citer par exemple le module de Young. A basse température, le polymère aura un module de Young de l'ordre de  $1000MPa$ , alors qu'au-dessus de la température de transition vitreuse, le module de Young est de l'ordre de  $1MPa$ .

### **I.3.1 Déformation des polymères amorphes**

Lors d'une sollicitation mécanique, les polymères amorphes peuvent avoir deux comportements en rupture distincts, fragile si le craquelage est le processus dominant et ductile si c'est la déformation plastique par bande de cisaillement qui apparaît[31]. La localisation de la déformation plastique sous bande de cisaillement est associée à l'adoucissement intrinsèque du matériau au-delà d'un seuil de contrainte, figure I.13, qui conduit à l'apparition d'une instabilité plastique sous la forme d'une bande de cisaillement[32]. Les auteurs[31,33], ont observé ces bandes de cisaillement en compression d'un polystyrène. La compression génère une concentration de contraintes en surface du matériau, formant des microbandes parallèles qui se propagent le long de l'échantillon à un angle de  $40^\circ$  à  $45^\circ$  de la direction de compression. D'autres travaux ont confirmé la formation de ces bandes de cisaillement sur d'autres polymères (PVC, époxy, PMMA,...) en mode de traction. La figure, 1.13, montre des microbandes dans un polystyrène et un PMMA déformés en compression.

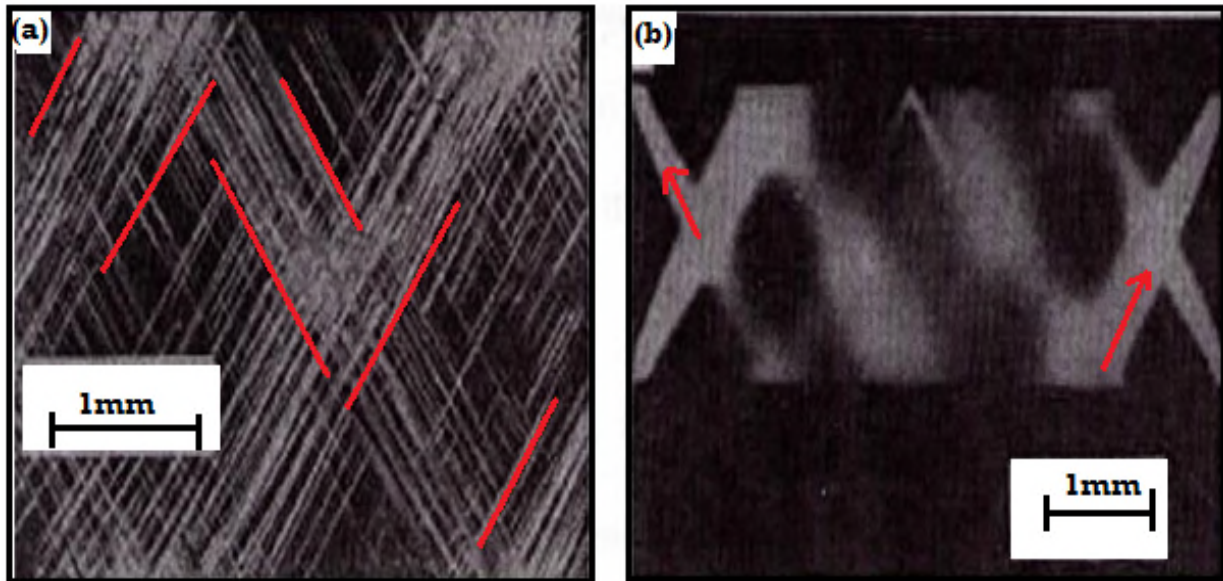


Figure I.13: bandes de cisaillement observées en compression d'un : (a) polystyrène, (b) PMMA [31,33].

Par contre, une craquelure apparaît géométriquement semblable à une fissure pontée par des fibrilles de matière. Le craquelage implique une déformation plastique à une échelle plus petite que celle correspondant aux bandes de cisaillement. Ces deux mécanismes sont viscoplastiques et peuvent apparaître simultanément mais seulement à des conditions de température et de vitesse de déformation. Le craquelage est contrôlé par la plus grande contrainte principale et entraîne la formation de vide figure, I.14 ; par contre, les bandes de cisaillement sont contrôlées par la contrainte de cisaillement sans formation de vide, c'est pourquoi la variation volumique en cisaillement est toujours nulle.

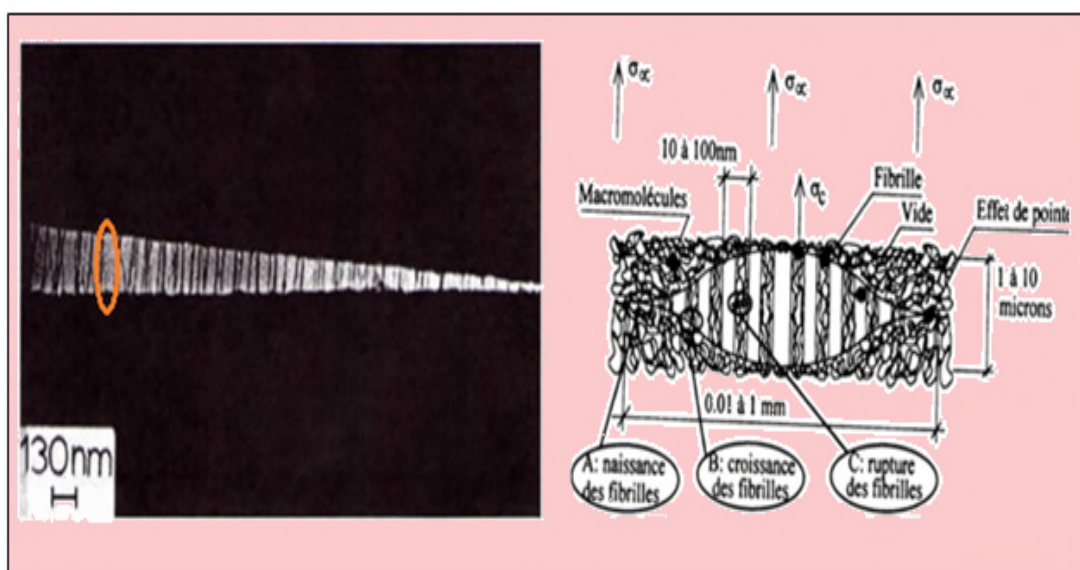


Figure I.14 : Développement d'une craquelure perpendiculairement à la direction de traction [18].

L'observation de ces mécanismes dépend bien du matériau, de la température et de la sollicitation [18], dans le cas le plus général :

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

La figure I.15, représente la cohabitation des deux mécanismes, bandes de cisaillement (traits inclinés) et craquelures (traits horizontaux) d'un échantillon de polycarbonate sollicité en traction à température ambiante.



*Figure I.15 : craquelures et bandes de cisaillement dans un polycarbonate sollicité en traction à température ambiante[34]*

L'évolution de la contrainte vraie en fonction de la déformation vraie en traction uniaxiale montre l'existence d'un maximum de la contrainte, appelé contrainte d'écoulement, suivi d'un adoucissement puis d'un durcissement aux grandes déformations. Ceci conduit à distinguer trois régions :

**Région-I:** le matériau manifeste un comportement viscoélastique non linéaire dépendant de l'intensité de la contrainte appliquée. (Quinson, 1995)[34], a constaté un développement de la déformation anélastique au début de l'essai et l'absence de la déformation viscoplastique.

**Région-II:** phase d'adoucissement du matériau ; dont la contrainte diminue jusqu'à la contrainte de saturation, caractéristique de l'écoulement plastique.

**Région-III:** comportement viscoplastique où le matériau durcit progressivement suite à l'orientation des macromolécules le long de la direction de déformation.

### I.3.1.1. La striction

Ce phénomène de striction est présenté par certains polymères, elle apparait lorsque la déformation du matériau perd de la stabilité. Cette striction est due normalement au développement de bandes de cisaillement très localisées à partir d'un défaut géométrique. La propagation de ce phénomène est le résultat d'une triaxialité des contraintes résultant d'une diminution locale de la section [35](calculé peut-être par le facteur de Bridgman [36,37]). La méthode considérée permet de prévoir non seulement l'apparition de la striction, mais aussi la vitesse de propagation d'une manière lente et stable ou forte [37,38]. Les auteurs [39,40], considèrent que la striction correspond à un maximum de la force, figure I.16.

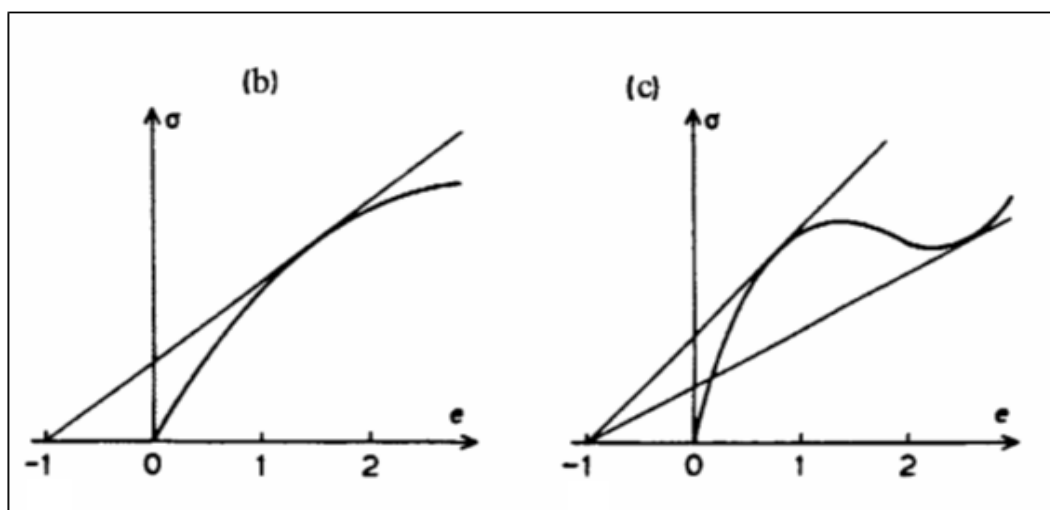


Figure I.16 :Construction selon«[39,40]»b) une tangente d'où striction qui s'amorce;c) deux tangentes d'où striction et propagation stable[31].

### I.3.1.2. Bandes de cisaillement

La naissance de bandes de cisaillement se localise dans des zones à forte concentration de contraintes [41]. L'apparition de ces bandes est fréquemment associée au développement de

plasticité dans le matériau, Argon [42], montre qu'elles sont en fait antérieures à celle-ci. Leur existence a été constatée lors d'essais de compression au cours desquels le développement de craquelures est peu probable, elles se caractérisent par une inclinaison de l'ordre de 45° par rapport à la contrainte extérieure imposée. Deux types de bandes de cisaillement sont à distinguer : des bandes fines, généralement qualifiées de diffuses (couvrant un domaine relativement grand), et des bandes plus larges se développant individuellement[33].

### I.3.1.3 Plasticité

Les bandes de cisaillement sont l'une des manifestations visibles des micro-mécanismes de déformation associés à la plasticité. Leur propagation et leur multiplication sont donc contrôlées par la déformation plastique du polymère [43]. Dès qu'elles s'étendent à une fraction non négligeable du matériau, elles conduisent au développement d'une plasticité macroscopique. Selon la théorie d'Eyring[44], l'écoulement plastique est un phénomène thermiquement activé. Dans l'état non sollicité mécaniquement, la plasticité correspond au franchissement par les molécules d'une barrière d'énergie très élevée. L'application d'une contrainte modifie la hauteur de cette barrière et facilite le passage vers un état de moindre énergie. La vitesse de déformation et la température sont deux paramètres qui auront une influence sur la déformation plastique des polymères.

De nombreuses études expérimentales ont mis en évidence la variation de la contrainte d'écoulement avec la vitesse de déformation. (J,Koplik et al. 1988)[45], a montré que la sensibilité à la vitesse de déformation est déterminée dans le cas de traction et compression par l'un des coefficients  $\beta$  et  $m$  définis par l'équation suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} \beta = \left( \frac{\partial \sigma_y}{\partial \log(\dot{\epsilon})} \right)_{T,\epsilon} \\ m = \left( \frac{\partial \log \sigma_y}{\partial \log(\dot{\epsilon})} \right)_{T,\epsilon} \\ \beta = m\sigma. \end{array} \right. \quad (I-6)$$

Où  $m$  est le coefficient de sensibilité logarithmique à la vitesse de déformation. Le coefficient ( $m$ ) varie de 0,03 à l'état vitreux jusqu'à pratiquement zéro à l'état caoutchouteux, en passant



par un maximum vers la température de transition  $T_g$ , le crochet de traction devient très sensible à la vitesse de déformation au voisinage de la  $T_g$  et ensuite disparaît totalement pour les faibles vitesses. Suite à la nature transitoire du stade d'adoucissement, (Ouali et al. 1993)[46]. (Richeton et al. 2006)[47], ont étudié l'effet de la vitesse sur deux polymères de nature amorphe à travers des essais de compression uni-axiale effectués pour une température constante de  $25^\circ\text{C}$  et différentes vitesses de déformation. Ils ont observé une augmentation de la contrainte d'écoulement lorsque la vitesse de déformation augmente et particulièrement pour les vitesses de déformation les plus élevées. Mais pour les basses vitesses de déformation ils ont constaté que la réponse mécanique enregistrée est la même pour les deux polymères.

Selon (Arruda et al. 1995)[42], le comportement d'un polymère amorphe est influencé aussi par la température, figure I.17. À chaque fois que la température augmente, la limite élastique, le module de Young et le durcissement diminuent.

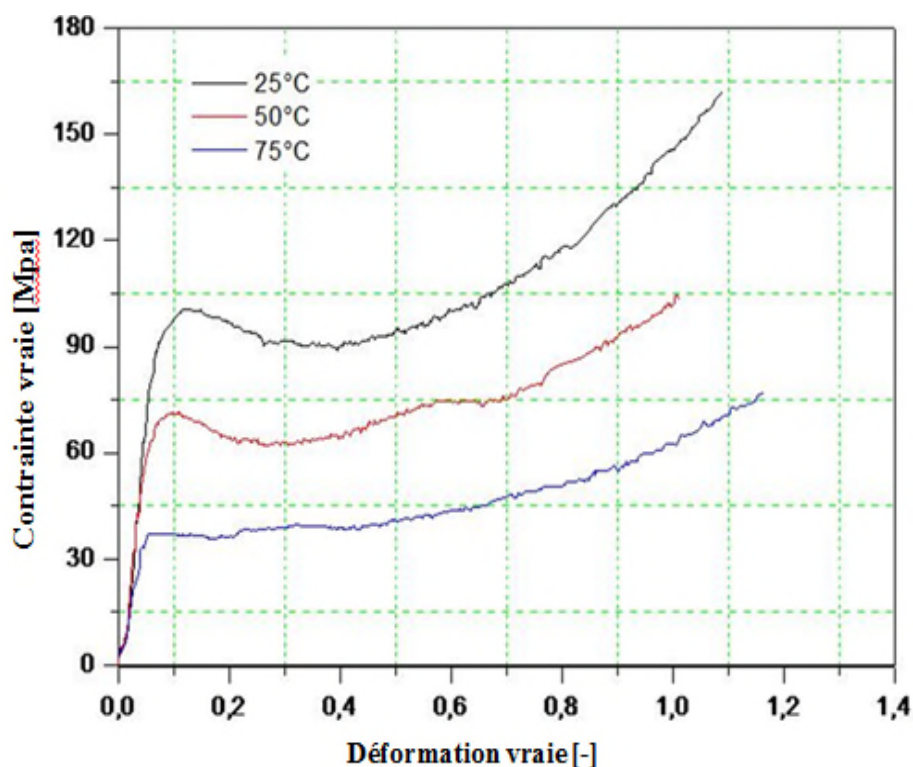


Figure I.17 : Effet de la température sur le comportement du PMMA (Arruda et al.,1995)[42].

(G'Sell et Haudin, 1995)[41], ont étudié l'influence de la température sur le comportement plastique de deux polymères amorphes le polyéthylène (*PE*) et le polycarbonate (*PC*), ils ont observé que :

La limite élastique et le durcissement diminuent progressivement quand la température de l'essai augmente. Ils ont observé aussi une diminution de la contrainte d'écoulement quand la température approche de la transition vitreuse. À 150°C, ils ont constaté également une diminution de l'amplitude du crochet et le durcissement plastique qui donne une courbe similaire à celui d'un comportement hyper-élastique. Par ailleurs, ils ont constaté qu'au passage de la transition vitreuse, la loi de comportement d'un polymère semi-cristallin tend progressivement vers celle d'un polymère amorphe caoutchouteux. Ce constat conforte l'idée que le durcissement plastique des polymères vitreux est lié à l'orientation des macromolécules. Les auteurs (Richeton et al. 2006)[47], ont testé l'influence de la température sur le comportement mécanique des deux polymères amorphes (*PC*, *PMMA*) pour différentes vitesses de déformation. Ils ont confirmé que plus la température est proche de  $T_g$ , plus le taux d'écrouissage diminue et peut même disparaître pour les températures au-dessus de  $T_g$ .

### **I.3.2 Effet de la pression hydrostatique**

(Rabinowitz et al., 1970)[48], ont observé cet effet sur un PMMA par l'augmentation du niveau de contrainte et la déformation au seuil ainsi que le module élastique avec l'augmentation de la pression appliquée. Alors que (Spitzig et Richmond, 1979)[49], ont confirmé que l'augmentation de la pression entraîne l'élévation de la limite élastique d'une manière semblable à la réduction de la température et l'augmentation de la vitesse de déformation. (Rabinowitz et Breadmore, 1974)[50], ont remarqué que la limite élastique correspondant à un essai de traction est inférieure à celle obtenue en compression. Ils sont arrivés à conclure que, l'écoulement plastique exige une contrainte plus importante.

### **I.3.3 Mécanismes physiques de déformation des polymères amorphes**

La figure, I.18, présente un essai typique de traction sur un polymère thermoplastique amorphe à température proche de sa température de transition vitreuse. La courbe est tracée en contrainte nominale-déformation nominale.

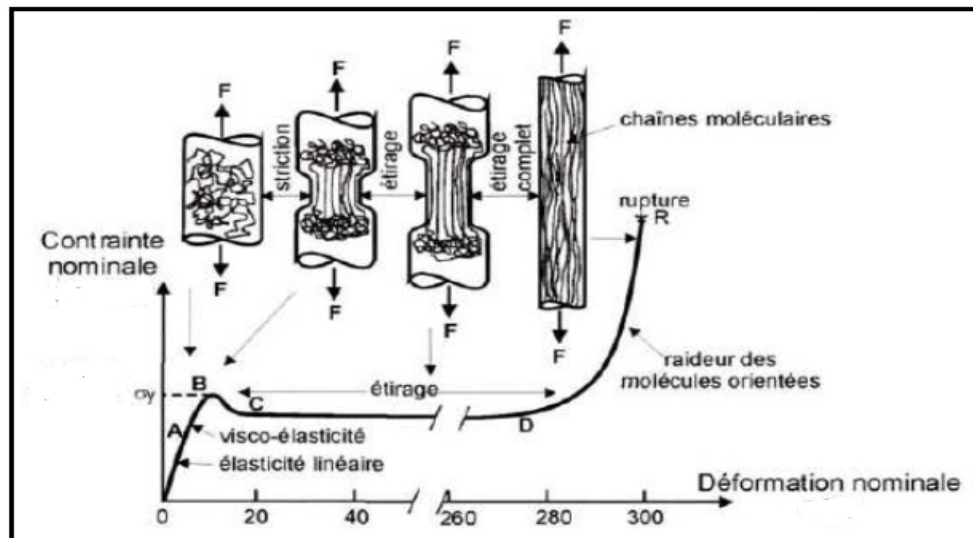


Figure I.18 déformation d'un polymère amorphe [52].

### I.3.4 Modélisation des polymères amorphes par endommagement

L'endommagement c'est la dégradation progressive des propriétés physiques et mécaniques d'un matériau soumis à une sollicitation monotone ou cyclique, et conduisant à la rupture. La dégradation se traduit par l'apparition de défauts microscopiques (microcavités et microfissures) se développent en volume ou à la surface, puis se propagent et coalescent pour conduire à la rupture.[51]

L'endommagement est généralement décomposé en trois étapes distinctes. La nucléation des défauts (germination). C'est la création de micro-défauts autour de discontinuités locales ou dans des zones à fortes concentrations de contraintes (triaxialité). La phase suivante sera l'apparition de la croissance des cavités et la dernière phase c'est la coalescence de ces cavités. Dans la littérature il existe plusieurs modèles pour décrire physiquement l'évolution de l'endommagement et ses effets sur le comportement mécanique. Les modèles micromécaniques (couplés ou non couplés), et les modèles phénoménologiques.

#### I.3.4.1 L'endommagement à l'échelle microscopique

##### I.3.4.1.1 Endommagement par cavitation

Plusieurs auteurs se sont intéressés au processus de cavitation tant du point de vue expérimental que théorique. Ils ont montré que les cavités apparaissent et croissent sous l'action d'une forte triaxialité des contraintes, plus particulièrement, sous un chargement élevé et purement hydrostatique. La cavitation est un micro-mécanisme d'endommagement souvent

observé lors de la déformation de polymères semi-cristallins comme le polyéthylène (Galeski 2003[14]). La cavitation est également un phénomène rencontré dans le cas des polymères renforcés par une seconde phase et qui apparaît soit en cœur de particules soit à l'interface matrice-particule. Cette cavitation doit normalement passer par trois mécanismes d'endommagement à l'échelle microscopique. Le premier mécanisme est la germination. Delmotte, 1992[53], a noté que ce mécanisme dépend de la nature, de la forme et de la taille des inclusions et que les inclusions de plus grande taille semblent être les plus activées au niveau d'amorçage de cavités. En effet, la formation des cavités sera soit par décohésion de l'interface matrice-particule soit par rupture de la particule, figure, I.19a. Le deuxième mécanisme est la croissance de la cavité, les microcavités voient leur taille croître, notamment sous l'effet de la tension hydrostatique qui est un facteur prédominant, figure I.19b. La croissance de la cavité peut prendre des formes durant la formation soit, sphériques, ellipsoïdales ou de fissures. L'adoucissement du comportement mécanique du matériau est observé dans cette phase de croissance. Le dernier mécanisme est la coalescence des cavités, il est dû au phénomène d'interaction entre les cavités, lorsque le taux de porosités atteint une valeur critique supérieure à 10%, figure, I.19c. La fin du stade de coalescence correspond à l'amorçage d'une fissure macroscopique qui conduira de manière irréversible à la rupture du matériau.

### **I.3.5 modèles micromécaniques d'endommagement**

Plusieurs approches ont été adaptées dans la littérature par de nombreux auteurs pour la modélisation des polymères ductiles. Parmi ces approches on peut citer la prise en compte d'un taux de porosités initiale proposé pour les matériaux métalliques et adapté par **Rice et Tracey, 1969**[54]. Un autre modèle présentant des cavités sphériques dans une matrice rigide parfaitement plastique a été proposé par **Gurson, 1978**[55].

La plupart de ces modèles micromécaniques sont basés sur l'étude de l'endommagement par (nucléation, croissance et coalescence), à travers la morphologie des cavités (ellipsoïdales, sphériques, cylindriques...), avec couplage ou sans couplage selon qu'ils s'intègrent ou non à la loi de comportement thermomécanique globale. Les modèles couplés, s'appuient sur le couplage de l'endommagement et de la loi de comportement mécanique, par le biais d'un potentiel plastique faisant intervenir la fraction volumique de micro vides.

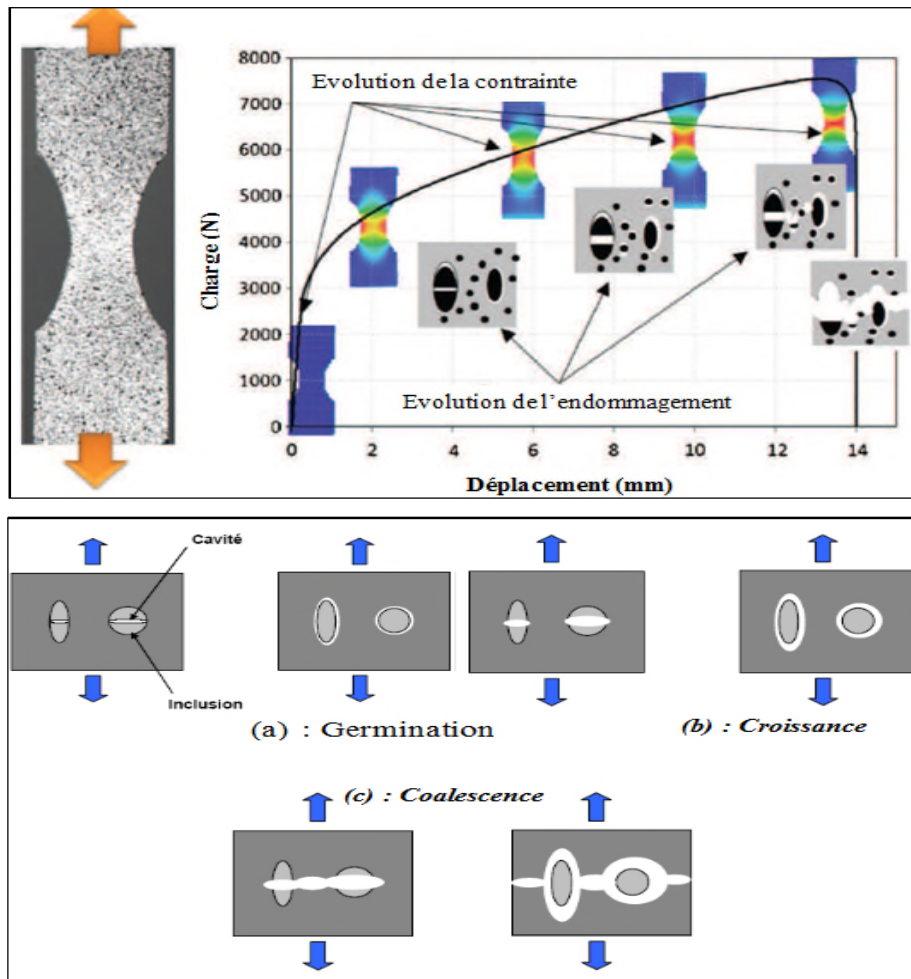


Figure I.19 : mécanismes microscopiques d'endommagement

#### I-4 Conclusion

Les polymères semi-cristallins ont une structure complexe faisant intervenir des hétérogénéités à plusieurs niveaux d'échelle. Peu de paramètres structuraux peuvent être obtenus expérimentalement, et ils sont tous interdépendants, ce qui rend très difficile la quantification de leur influence sur le comportement mécanique. Néanmoins, des approches théoriques permettent de mettre en évidence certains aspects, comme l'influence de facteur de forme sur le module de Young. Les mécanismes de déformation ont été identifiés à chaque niveau d'échelle. Toutefois, certaines interrogations persistent. Quels sont réellement les mécanismes à l'origine de la transformation fibrillaire ? Quand apparaissent-ils lors d'un essai de traction ? Comment quantifier leur influence sur le comportement mécanique ? Dans le cas de l'endommagement, la cavitation a clairement été mise en évidence et quantifiée par diverses méthodes. Par contre, il n'a pas été établi à l'heure actuelle une relation entre le taux de porosité et la variation de module élastique dans les polymères semi-cristallins. La cavitation est-elle la seule responsable de l'endommagement ?

## *Chapitre II*

### Thermoplastiques élastomères

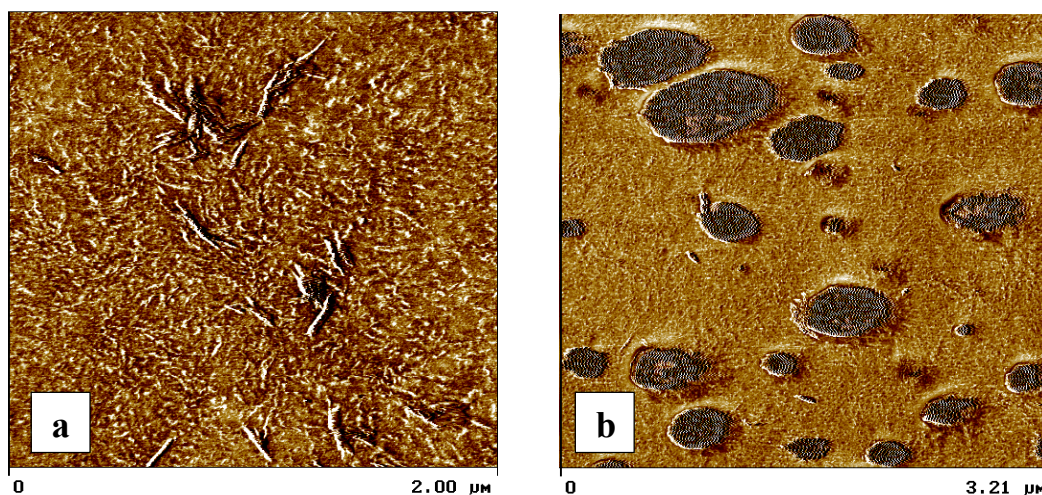
#### « TPE »

*Les polymères thermoplastiques sont particulièrement intéressants pour leurs propriétés mécaniques, et leur tenue thermique. La nette amélioration de leur résistance au choc par l'incorporation d'une autre phase d'élastomère fut une avancé majeurs dans le domaine des polymères. Dans ce chapitre l'accent sera mis sur les propriétés physico-chimiques et thermomécaniques des mélanges d'élastomères et des polymères thermoplastiques renforcé avec des particules d'élastomères. Nous mettrons en évidence la problématique liée à la plasticité et à l'endommagement par cavitation.*

## II.1 Introduction

Les polymères semi-cristallins peuvent être soit fragiles soit tenaces selon la température d'utilisation et l'intensité du chargement. Pour cette raison ces polymères ont subi des modifications par l'ajout d'une seconde phase montrée par la figure II-1b ou bien par combinaison d'un élastomère et un thermoplastique dans la chaîne polymère présentée par la figure II-1a, les élastomères naturels conduisent à l'amélioration de la ténacité et à l'augmentation de la ductilité des polymères vitreux [55,56]. Selon (P.A. Lovell et al)[56], lorsque le PMMA a été renforcé par des particules core-shell d'élastomère, il enregistre une bonne dispersion des particules obtenue par le processus du mélange.

La résistance à la rupture des polymères vitreux amorphes est considérablement améliorée par l'incorporation de particules, qui engendrent des cavités en induisant une déformation plastique étendue de la matrice [57]. Ce renforcement spectaculaire se fait au détriment de la rigidité. La technique consiste à disperser non plus une phase élastomère mais des particules inorganiques rigides. C'est le cas par exemple des systèmes P\MLMA-silice [58], où le renfort améliore les propriétés mécaniques du polymère en matière de rigidité au-dessus de la température de relaxation principale de la matrice, tout en lui maintenant ses qualités. Ceci fait de ces polymères chargés des produits de bonne qualité pour les systèmes optiques. L'ajout d'une phase inorganique au polymère introduit la possibilité d'un mécanisme supplémentaire qui amorce le cisaillement plastique.



*Figure II.1 : a) combinaison d'un élastomère / thermoplastique dans une chaîne polymère.  
b) mélange d'élastomère à base thermoplastique.*

Les élastomères thermoplastiques sont une classe de matériaux dans lesquels on essaie de combiner certaines propriétés souhaitables des élastomères - principalement la

récupération élastique et l'absorption d'énergie - avec la capacité de traitement des thermoplastiques courants.

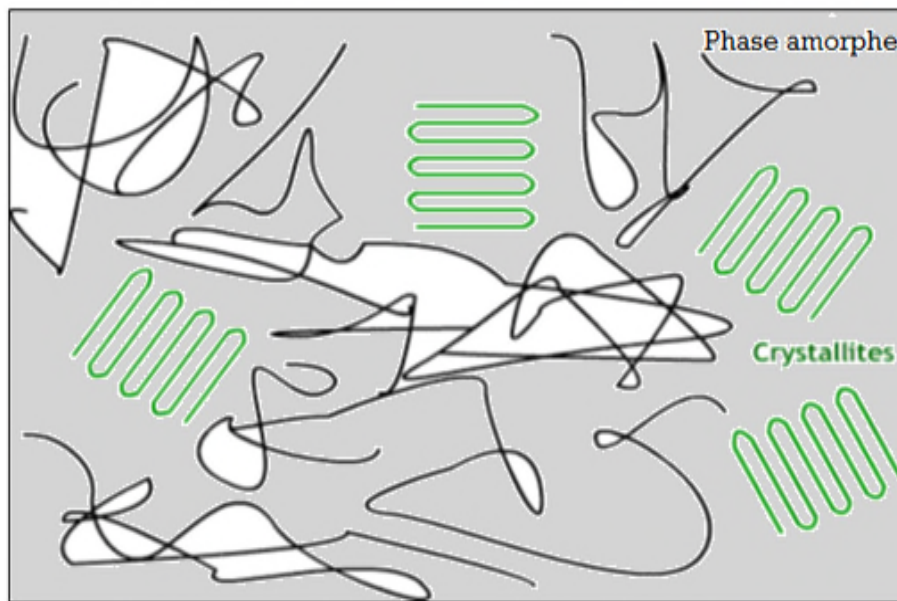
Pour se comporter comme un élastomère thermoplastique, le matériau doit être constitué de macromolécules, d'au moins deux types de segments à longue chaîne, qui vont se séquencer en phases séparées à l'état solide [59]. Un de ces segments de chaîne devrait posséder une température de transition vitreuse relativement faible et un bas point de fusion. Ils sont couramment dénommés les segments "mous", car ils forment une phase de type liquide à température ambiante et ont ainsi, le rôle de fournir le caractère élastomère au polymère. Les autres segments sont durs et capables de subir l'association intermoléculaire ou la cristallisation pour former une structure de réseau thermiquement réversible. Les réticulations physiques résultant de cette association des segments durs assurent la stabilité dimensionnelle. Ces exigences plutôt générales peuvent être satisfaites par divers types de conceptions moléculaires.

Il existe deux catégories de ces mélanges polymères à base d'élastomère, les copolymères à bloc à base de polystyrène (TPE-S), à base de polyuréthane (TPE-U), à base de polyamide (TPE-A) et à base de polyester (TPE-E). La deuxième catégorie appartient au mélange de deux polymères, thermoplastiques et élastomères qui se divisent en deux classes. Les mélanges non-vulcanisés (à base de polyoléfine (TPE-O)), et à base de polyamide) et les mélanges vulcanisés (à base de polypropylène (TPE-V)).

De nos jours, les élastomères thermoplastiques (TPE) jouent un rôle important dans le domaine des mélanges de polymères en raison de leur bonne ouvrabilité associée relativement à une bonne contribution élastique. Les (TPE) pourraient largement être classées en deux groupes distincts. La première consiste en un mélange simple, dans lequel la phase de caoutchouc est non vulcanisée. L'autre est largement connue comme thermoplastique vulcanisé dans laquelle la phase de caoutchouc est réticulée, typiquement in-situ pendant le procédé de mélange.

Les élastomères thermoplastiques (TPE) sont des matériaux polymères qui combinent les avantages des matériaux thermoplastiques avec des propriétés mécaniques remarquables et une bonne récupération élastique des caoutchoucs vulcanisés. Ces remarquables propriétés mécaniques de ces (TPE) sont dues à la combinaison des deux types de polymères, amorphe et cristallin, figure II-2.





*Figure. II-2 : Structure d'une chaîne de polymères (TPE)*

## II.2 Analyse thermomécanique des mélanges d'élastomères

Les caoutchoucs conventionnels sont réticulés par une liaison de valence primaire, tandis que les TPE sont réticulés par une liaison de valence secondaire, telle que des interactions de Van Der Waals ou de dipôle ou une liaison hydrogène. Ce type de réticulation se décompose à température élevée ou sous l'influence d'un solvant. Par conséquent, la phase dure agit comme des réticulations physiques qui se comportent comme les réticulations de soufre dans les caoutchoucs vulcanisés conventionnels. Puisque les élastomères thermoplastiques sont des systèmes à séparation de phase, chaque phase influence les caractéristiques des élastomères thermoplastiques et de nombreuses propriétés des polymères individuels sont retenues dans ces matériaux. Les températures de transition vitreuse inférieures et supérieures  $T_{g1}$ ,  $T_{g2}$  et le point de fusion cristallin  $T_m$  des phases déterminent la gamme de température d'application, figure II-3 [60].

Il existe dans la littérature plusieurs études de caractérisation des propriétés physico-chimiques sur les élastomères thermoplastiques. On peut citer les travaux (S. Benmesli, F. Riahi 2014)[59], ont étudié les propriétés dynamiques et thermiques par analyse de DMA et DSC. Leur objectif était de voir l'effet de greffage du caoutchouc naturel et le polypropylène avec de l'anhydride dans un mélange de proportion 70/30. L'étude des propriétés mécaniques dynamiques (DMA) a montré que, à des températures inférieures à la température de transition vitreuse il y a une diminution du module de stockage ( $E'$ ) et le module de perte ( $E''$ ) du mélange NR-g-MAH / PP-g-MAH. La figure II-4, présente la variation du module de perte

$E''$  en fonction de la température. Ce paramètre exprime la composante visqueuse et la capacité du matériau à dissiper de l'énergie.

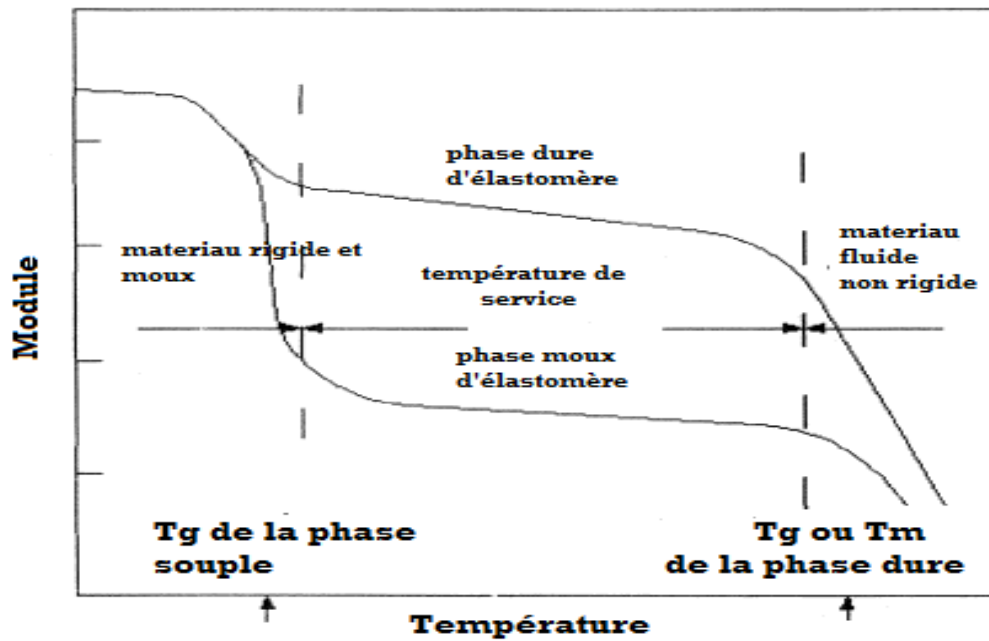
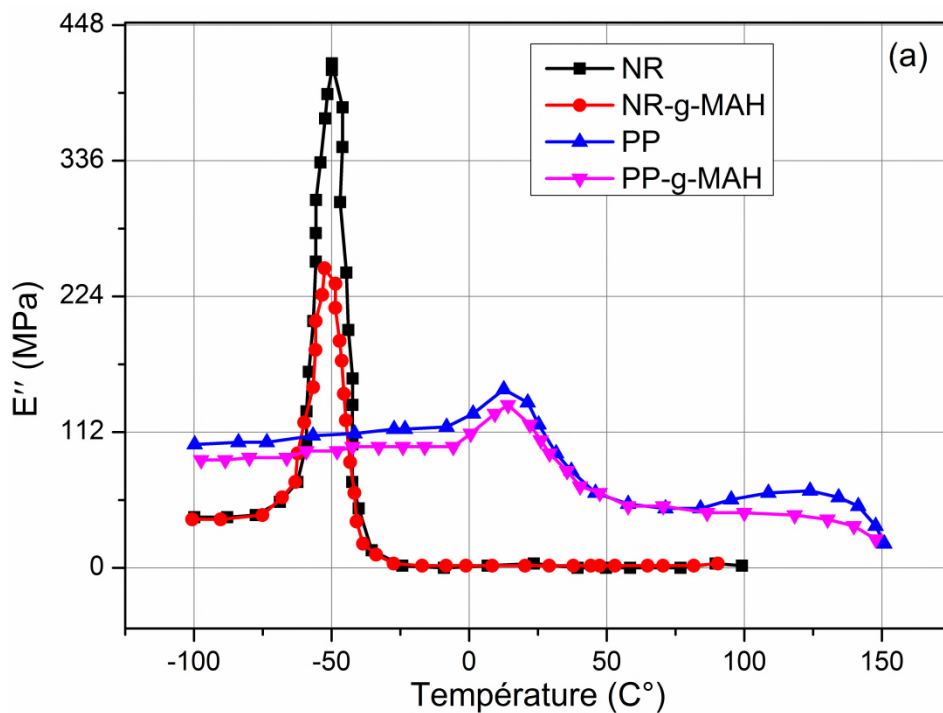
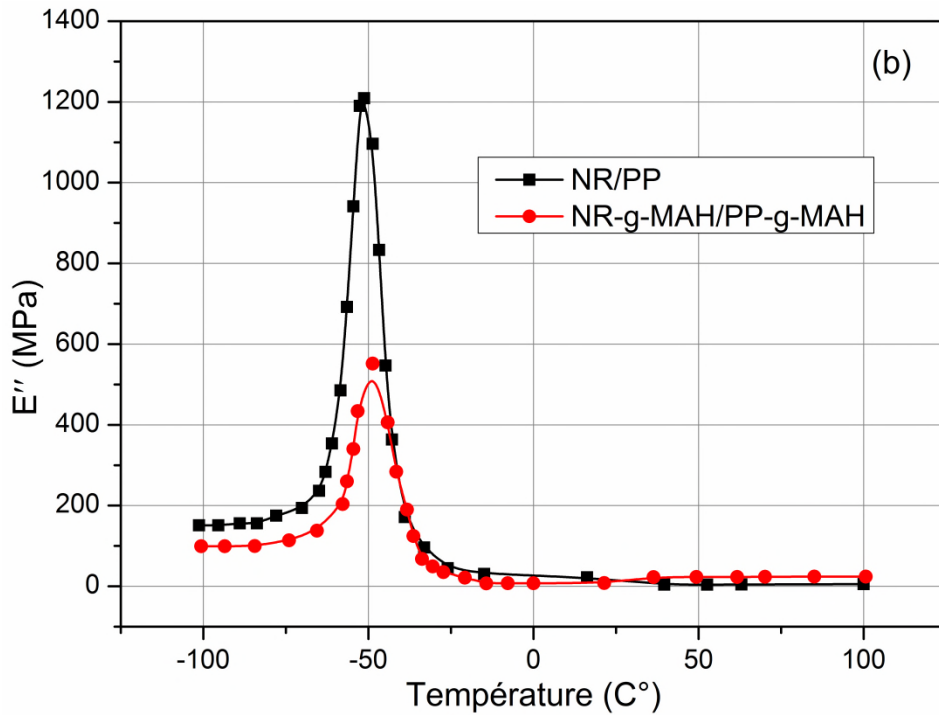


Figure II-3. Comportement du module à différentes températures d'un élastomère thermoplastique typique [60]

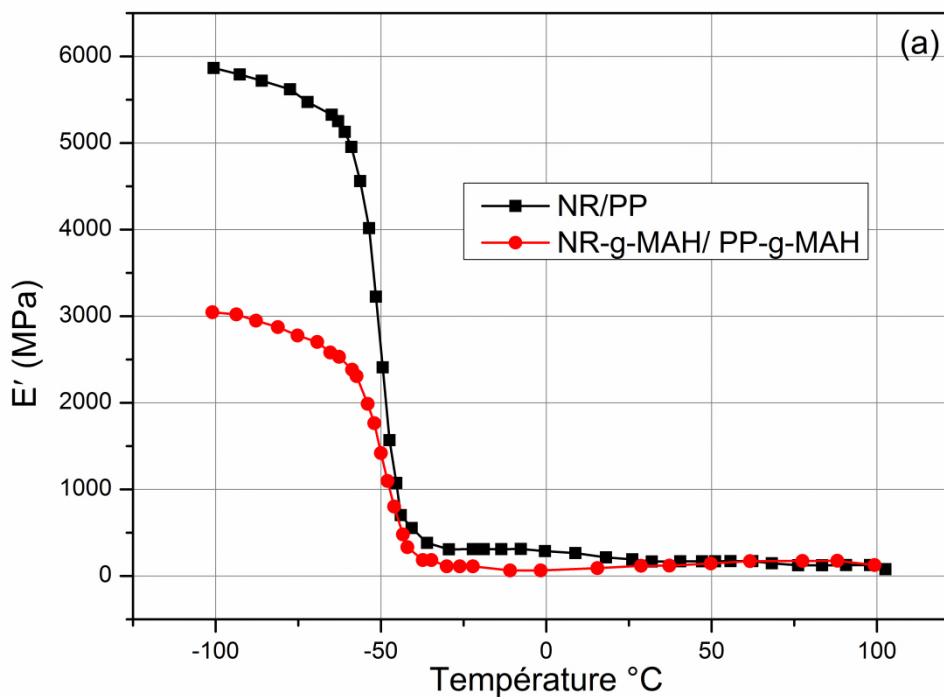
La variation du module de stockage  $E'$  en fonction de la température est représentée sur la figure II-5. ( $E'$ ) représente la composante élastique, c'est une indication de la capacité d'un matériau à stocker de l'énergie mécanique. Elle diminue avec la température ; aux basses températures le matériau à l'état vitreux présente une valeur élevée du module.





**Figure II-4 :** Variation du module de perte en fonction de la température d'un TPE (NR/PP et NR-g-MAH/PP-g-MAH) [59].

Durant le passage de l'état vitreux à l'état caoutchouteux,  $E'$  décroît rapidement jusqu'à une valeur constante. Cette région est le début de la mobilité des chaînes ; elle correspond à la température de transition vitreuse ( $T_g$ ). À des températures supérieures à ( $T_g$ ),  $E'$  enregistre une valeur minimale qui montre que le matériau est dans l'état caoutchouteux.



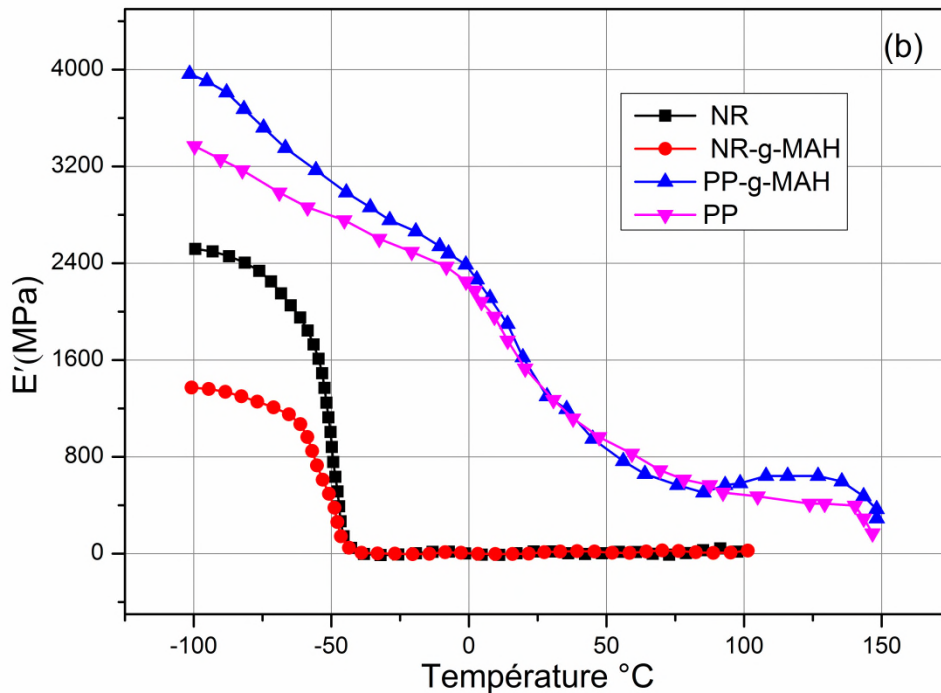


Figure II-5 : variation du module de stockage en fonction de la température d'un TPE et élastomère naturel[59].

D'après la figure II-6, on voit que la température de fusion et l'enthalpie de fusion sont restées inchangées, une légère diminution de cristallinité a été notée pour le mélange greffé, modifié chimiquement et non vulcanisé. Cependant, pour le mélange vulcanisé dynamiquement et greffé (NR-g-MAH / PP-g-MAH) une légère augmentation de la cristallinité fractionnaire a été notée. Cela peut être attribué à l'amélioration de l'interaction qui se développe entre les deux polymères après le greffage.

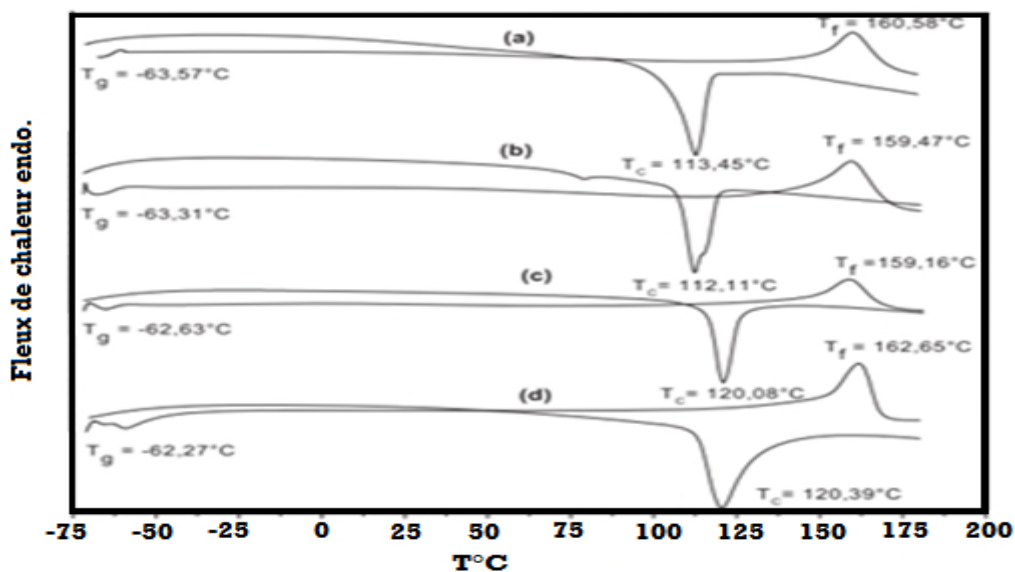
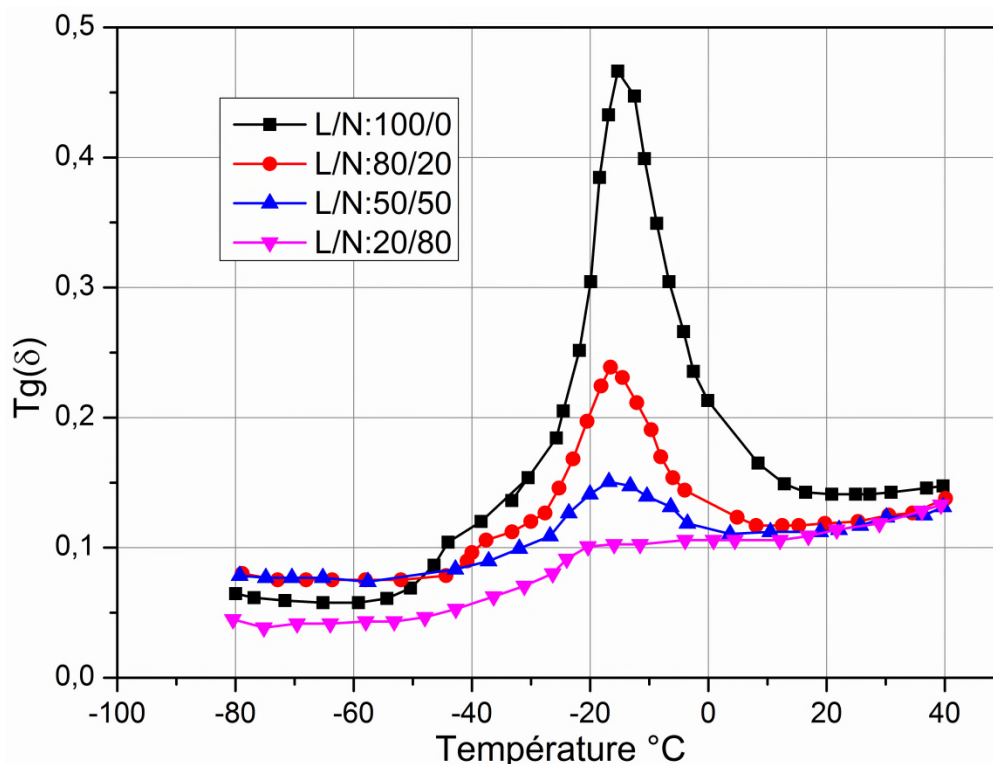


Figure II-6 : Analyse DSC : a) NR/PP, b) NR-g-MAH/PP-g-MAH, c) NR-g-MAH/PP-g-MAH/DCP, d) NR-g-MAH/PP-g-MAH/S8[59].

Les auteurs [59], montrent qu'aucune différence n'est observée entre les températures de transition vitreuse des mélanges pour les deux tests (DSC et DMA). Cela peut être dû à un effet d'équilibrage entre la modification chimique conférée par la présence de groupes anhydrides maléiques volumineux et la limitation de la mobilité de la chaîne à la suite de la vulcanisation dynamique.

Une nouvelle étude sur les propriétés mécaniques d'un mélange d'élastomère vulcanisé à base de polyéthylène de basse densité et de poudre ultrafine a été effectuée par [61]. La figure II-7, montre les résultats du facteur de perte appelé aussi facteur d'amortissement  $Tg(\delta)$  du thermoplastique élastomère avec les différents pourcentages d'élastomère. Ces auteurs ont constaté que, le faible facteur de perte reflète la haute rigidité de la phase rigide. En outre, dans le cas des mélanges, non seulement le facteur de perte s'accroît, mais ils ont observé également que la forme du pic s'élargit au sommet, ce qui est plus apparent dans les mélanges à fort taux d'élastomère.



**Figure II-7 :** facteur d'amortissement  $Tg(\delta)$  en fonction de la température et du taux d'élastomères [60]

Dans une autre étude de caractérisation d'un autre type de thermoplastique élastomère appelé polymères renforcés par des particules d'élastomères, les auteurs (RT-PMMA)[61], ont remarqué que la variation de la consommation d'énergie est très brutale au passage d'un comportement de type fragile à ductile, elle augmente de manière très

importante. La transition entre modes de rupture peut être observée lorsque l'on fait varier certains paramètres de rupture (vitesse, température...) ou suite à une modification des paramètres relatifs au mélange (taux de renfort, taille des particules...). L'ajout de cette deuxième phase (PMMA) apporte une certaine ductilité à la matrice vitreuse fragile (RT), à température ambiante (23°C) et à une vitesse de déformation de  $10^{-3}\text{s}^{-1}$ . Donc, la transition ductile fragile sera toujours rapportée au paramètre conduisant à la modification du comportement du matériau. En pratique, les essais sont souvent réalisés à des vitesses de déformation fixées et le paramètre variable est la température : ce qui est le contraire dans notre étude où nous avons fait varier la vitesse de déformation à la température ambiante. Généralement, le comportement est ductile pour des températures élevées à de faibles vitesses de déformation et il est fragile à basses températures et à grandes vitesses de déformation [62], ceci est montré sur la figure II-8.

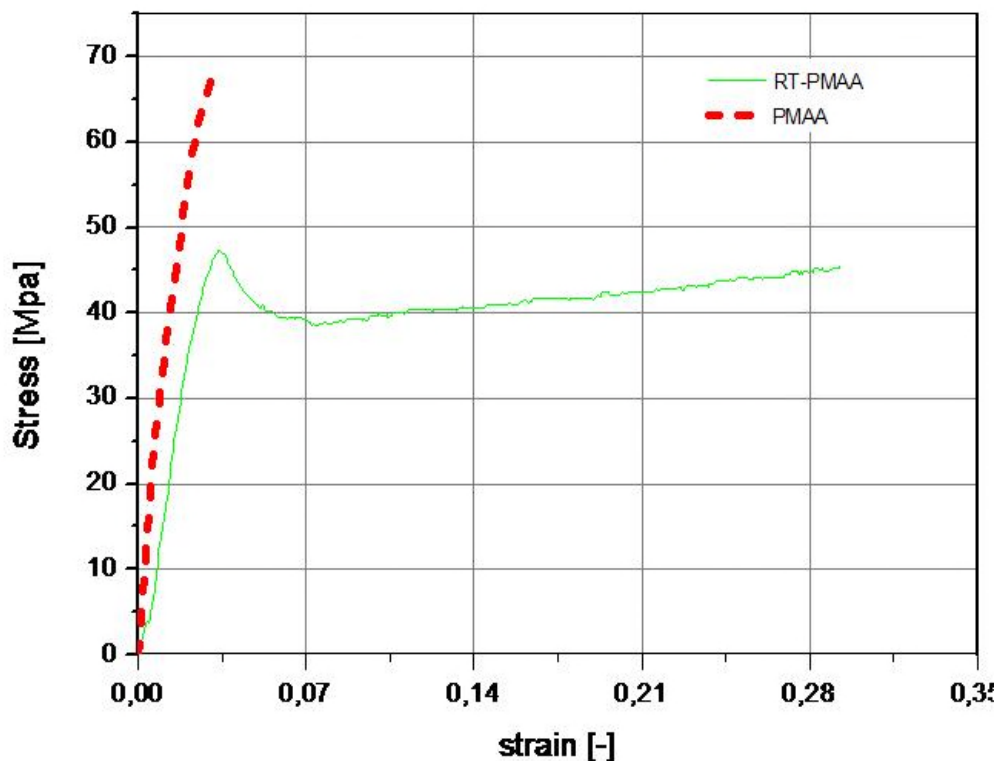


Figure II-8 : Essai de traction uni-axial d'un polymère fragile et renforcé à température ambiante, à  $10^{-3}\text{s}^{-1}$  [62].

Selon la géométrie de l'échantillon ou les conditions de sollicitation, un même matériau peut se rompre de façon fragile ou ductile (figure 1.13). Il faut noter que les notions de fragilité et de ductilité ne caractérisent pas le matériau mais son mode de rupture. Si la rupture a lieu dans le régime de déformation élastique avant le seuil

d'écoulement plastique, le comportement est fragile. L'énergie dissipée pendant la rupture est faible et la propagation de la fissure est souvent instable. Par contre, le comportement sera ductile s'il s'accompagne d'une déformation plastique étendue. La figure II-9(a,b), montre la réponse de trois types de polymères, en rupture fragile le (PMMA, PS) et ductile (PC) en traction et compression.

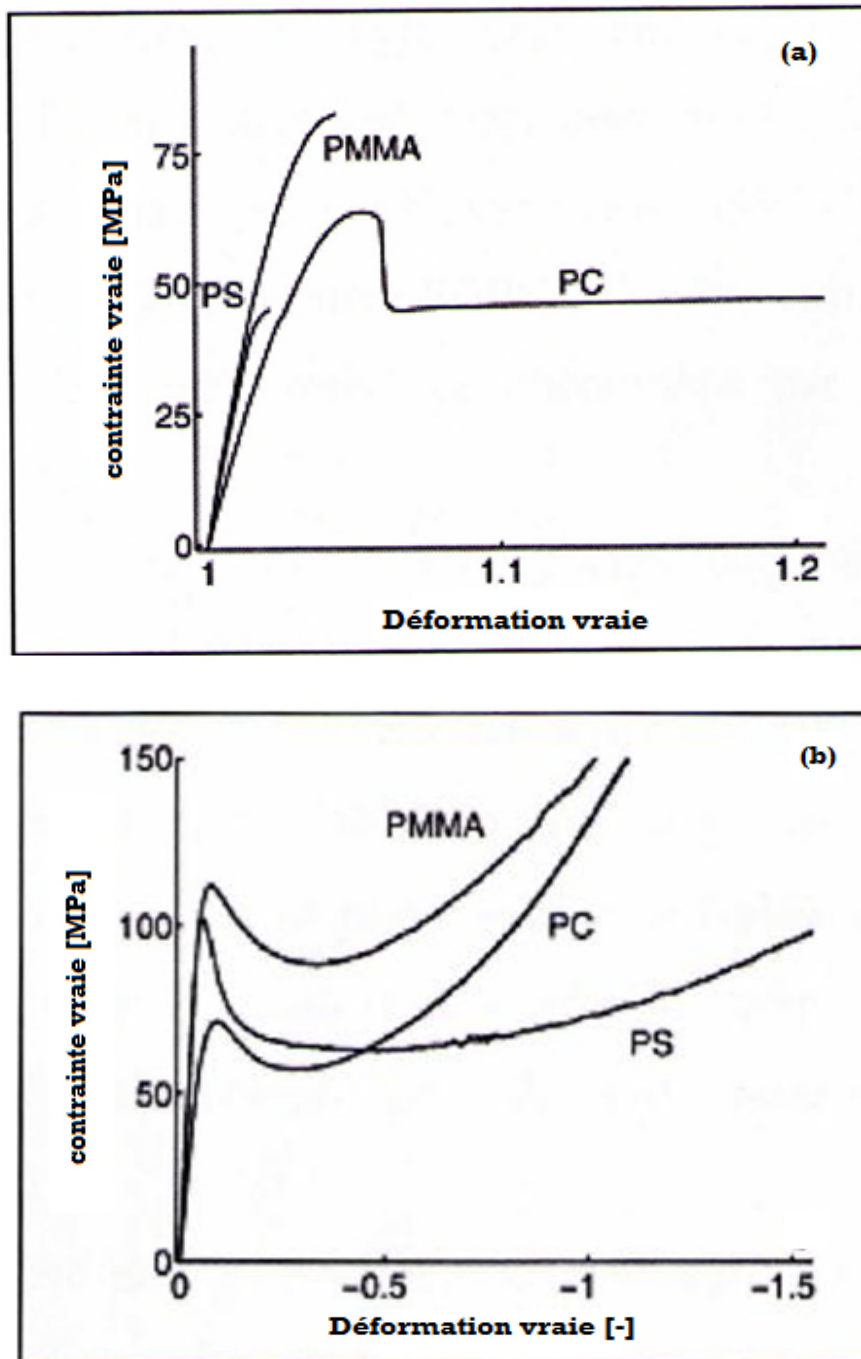
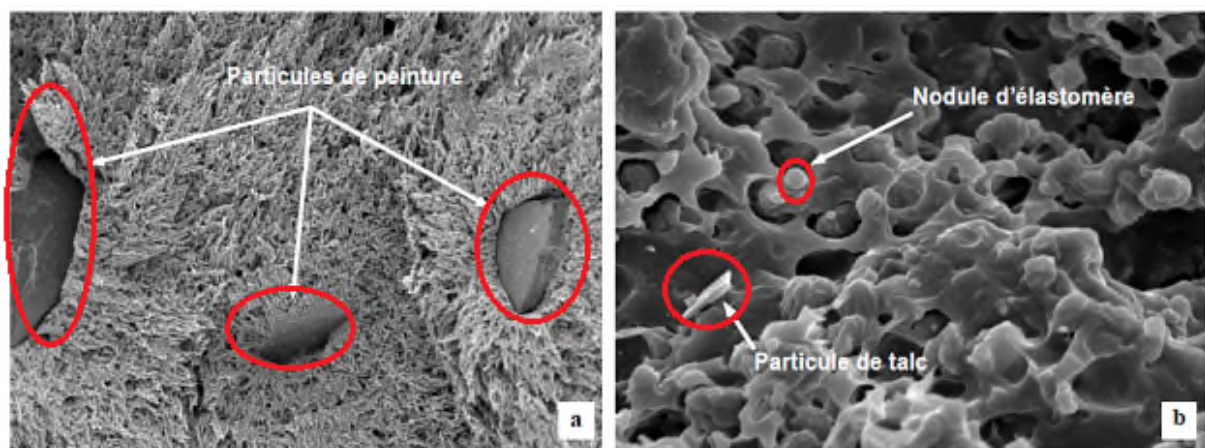


Figure II-9 : Réponse de trois polymères vitreux (a) en traction (b) en compression[63].

### II.3 déformation des thermoplastiques d'élastomères

L'ajout de particules d'élastomères de petites tailles dans des matrices de polymères semi-cristallins durs ou bien fragiles augmente leur résilience. L'intérêt réside dans la cavitation des particules, figure II-10, consommatrices d'énergie dans leur processus de croissance[63]. Les composites à matrice polymère avec un renforcement d'élastomère ont fait l'objet de nombreuses études basées sur les observations expérimentales et les simulations numériques, et ont permis de résumer le renforcement en la compétition entre deux mécanismes : la cavitation des particules et la déformation plastique par bandes de cisaillement.



**Figure II 10. 1.** Micrographies par MEB du faciès de rupture d'un mélange d'élastomère  
a) Particules de peinture, b) modules d'élastomère [63]

La mise-en-évidence expérimentale du phénomène de cavitation dans les mélanges d'élastomère est toujours délicate. Pour étudier le mécanisme de cavitation de manière plus quantitative, la technique la plus utilisée est l'essai de traction avec mesure de variation de volume [64]. Schirrer et al.[65], ont étudié la cavitation par la diffusion de la lumière et le changement de volume, ils ont montré que la technique de diffraction de lumière est un très bon indicateur de l'apparition de la cavitation. Ils ont remarqué aussi une formation de bandes de dilatation au début de l'endommagement (5% de déformation). Par contre, à un niveau de déformation plus élevé (8% de déformation), les diffuseurs n'ont aucune organisation.

La méthode citée précédemment ne peut détecter la cavitation qu'à partir d'une taille critique de cavité. Alors que la taille de la cavité peut atteindre environ 10nm de diamètre sans qu'elle soit détectée. Bucknall et al. [66,67], ont fourni une méthode pour observer le début de cavitation dans la particule, sans les complications qui surgissent quand le

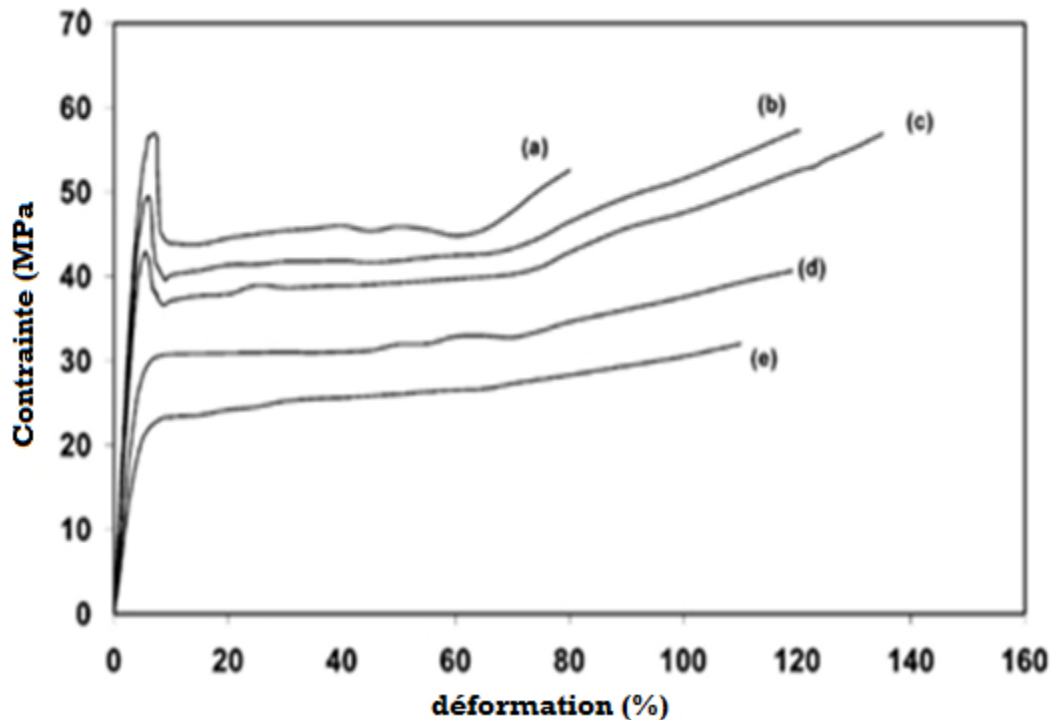


cisaillement et le craquelage multiple se produisent en même temps. Il ont utilisé des tests de contraction / expansion thermique [66] sur un (polystyrène-co-acrylonitrile) et (acrylonitrile-butadiène-styrène) qui leur permettent de déterminer le taux de particules cavités. Une autre investigation de Bucknall et al. [67] à travers laquelle ils ont montré que la cavitation des particules core-shell d'élastomère dans une matrice de PMMA peut être détectée en utilisant la spectrométrie thermique pour des valeurs de température de transition vitreuse associée à la phase d'élastomère.

Nous pouvons conclure que les différentes techniques de dispersion de la lumière ou de la spectroscopie thermique restent des méthodes utiles pour la mise-en-évidence de la nucléation. La mesure de l'augmentation de volume reste le moyen quantitatif le plus simple. Généralement c'est grâce aux observations expérimentales que la séquence d'évènements de mécanismes de déformation se produisant lors de la propagation de la fissure a été mise en évidence [68], et que l'hypothèse que la cavitation soit antérieure à la déformation plastique a été vérifiée par [62]; ils ont étudié la cavitation dans les particules d'élastomères à partir d'un modèle viscoplastique couplé au modèle de Gurson. Ainsi, l'apparition de la cavitation et le développement du cisaillement ont été identifiés expérimentalement à partir de la mesure de variation de volume. Finalement, pour résumer, il faut noter que la théorie et l'expérience mettent en lumière le rôle principal de la cavitation des particules : elle permet de relâcher localement la tri-axialité et d'amorcer la déformation plastique, qui s'étend et dissipe l'énergie avec l'augmentation de la contrainte[69].

### **II.3.1 Comportement mécanique des mélanges d'élastomères**

Un mélange d'un polymère de type PC avec un Co-poly-(éther-ester) à des compositions de poids différentes a été étudié par [70]. Les résultats obtenus pour ce mélange (PC / COPE) sont illustrés sur la figure II-11. La limite d'élasticité du mélange diminue également avec l'addition de (COPE), indiquant que la déformation plastique dans les mélanges commence à une contrainte inférieure par rapport à un (PC) pur. En effet, le (PC) pur a présenté un maximum de durcissement, accompagné par une formation de striction suivie par un durcissement par écrouissage. Le mélange contenant 20% en poids de COPE a donné des propriétés de traction optimales. Suite à cette étude ils ont confirmé que l'allongement et la résistance à la rupture étaient plus élevés pour ce mélange.



**Figure II-11 :** Réponse d'un mélange, a) PC/COPE (0%), b) PC/COPE (10%), c) PC/COPE(20%), d) PC/COPE(30%) et e) PC/COPE(40%)[70].

De nombreuses investigations sur l'endommagement plastique des mélanges de polymères ont été effectuées dans les conditions de chargement monotone et d'impact. Récemment, Meyer et Pruitt [71], ont étudié l'effet du chargement cyclique sur la morphologie, la structure et la relaxation du polyéthylène avec un ultra-haut poids moléculaire. Ils ont observé que le craquelage, la formation de micro-vides et l'alignement des lamelles ont influé sur la croissance de la déformation réelle et le nombre de cycles. Bai et al.[72], ont montré à travers des essais de chargement-déchargement cycliques, que l'augmentation du taux de cristallite d'un HDPE, pourrait changer le module d'élasticité.

Une autre étude intéressante sur l'endommagement plastique d'un mélange de polymère PP/PA6/POE-g-MA sous chargement cyclique a été entreprise. Les résultats obtenus sont la contrainte-déformation, la variation de volume et la dissipation d'énergie. Les résultats obtenus sont originaux et utiles pour bien comprendre le comportement mécanique des mélanges de polymères sous une grande déformation, figure II-12.

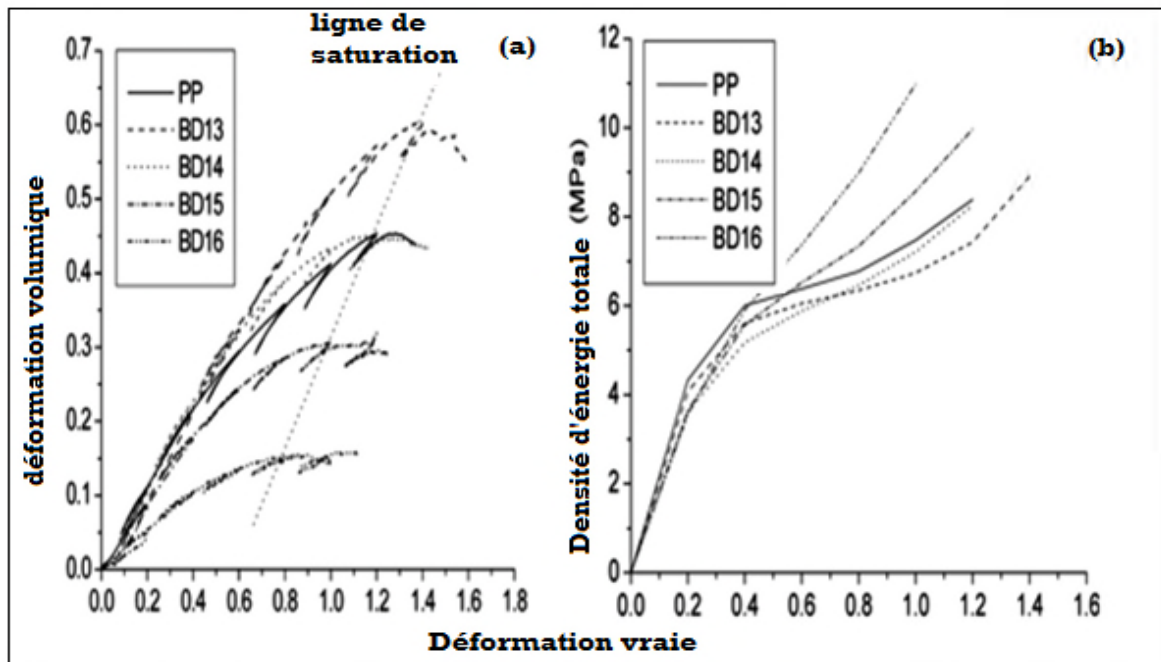


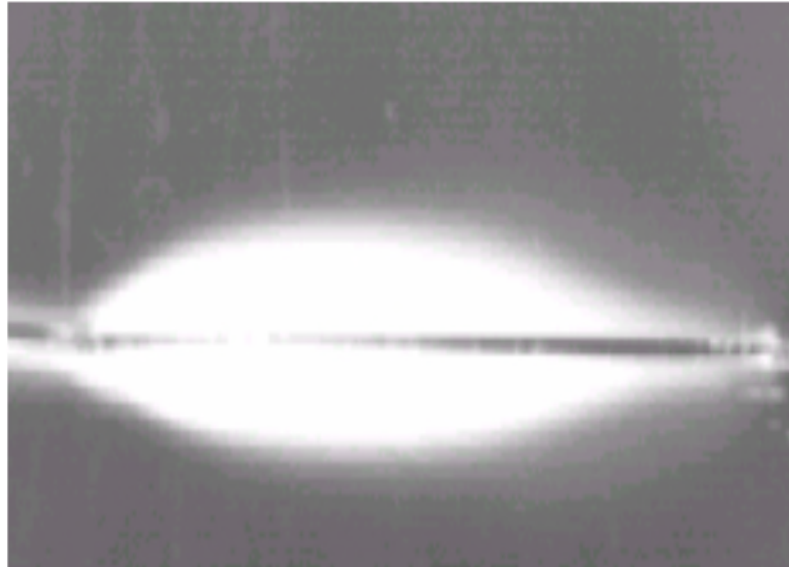
Figure II-12 : a) déformation volumique / déformation vraie sous tension cyclique  
b) variation d'énergie/déformation vraie [72] .

### II.3.2 Mécanisme de cavitation et de plasticité

Le fait de mélanger les particules à base d'élastomère dans une matrice polymère semi-cristalline était uniquement pour améliorer leurs propriétés de résistance à la rupture et à l'impact par rapport à la matrice pure. Parmi les domaines investigués, on peut citer le phénomène de cavitation de ces polymères qui apparaît dès le début de la sollicitation, même avant l'écoulement plastique macroscopique. La cavitation a été observée pour les polymères transparents par un blanchiment caractéristique, figure. II-13. Les travaux de Schirrer et al. [73], ainsi que ceux de Géhant[74], montrent que ce blanchiment est lié à la diffusion multiple de la lumière sur les cavités. On peut dire que le mécanisme de cavitation dans les polymères a un effet sur leurs comportements mécaniques. La cavitation permet notamment le développement d'écoulements plastiques par croissance de cavité. En rupture, cette dernière permet donc d'augmenter la dissipation en sommet de fissure. La présence de cavités dans un matériau polymère va créer notamment une variation volumique modifiant la répartition des contraintes en sommet de fissure.

La cavitation apparaît principalement dans les zones amorphes au-dessus de leur température de transition vitreuse. Elle est contrôlée par une contrainte hydrostatique [76,77]. Des études ont montré l'importance de cette contrainte lorsqu'elle est reliée à la contrainte appliquée au matériau [78]. Selon les travaux de [79], l'étude de la cavitation suivant un

critère basé sur un état de contrainte critique ne donne pas toujours des résultats meilleurs que pour un critère basé sur le bilan énergétique. Selon l'étude suivante [80], une sollicitation mécanique en phase caoutchouteuse est considérablement influencée par la forme et l'orientation des cavités.



*Figure II-13 : propagation de fissure et blanchiment dans un PMMA renforcé « choc » [75]*

Les auteurs de cette étude ont observé également dans des polymères semi-cristallins, que la cavitation engendre préférentiellement les domaines allongés perpendiculairement à la direction de traction. Mais Dans des matériaux tels que les polymères renforcés au choc, l'état de contrainte locale est lié à la morphologie locale. Ils ont considéré qu'une inclusion d'une forme déterminée est soumise à une sollicitation moyenne. Cette sollicitation moyenne peut-être évaluée en considérant des modèles de type auto-cohérent. L'inclusion est isolée dans un milieu infini dont la réponse mécanique est considéré comme la moyennée du matériau multi-phase.

Certaines formes, comme une fine écorce sphérique autour d'un noyau rigide par exemple, peuvent générer des non-linéarités géométriques [65]. Dans ces cas, les tenseurs de localisation dépendent aussi de l'amplitude de la sollicitation appliquée, même en petites déformations globales. Les auteurs Guild et Young [81], ont constaté qu'autour d'une particule soumise à une traction uni-axiale, avec une concentration de contraintes et un maximum de la contrainte de Von-Mises à l'interface dans le plan équatorial de la particule, est le lieu le plus favorable à l'apparition de bandes de cisaillement. Enfin, au niveau de l'interface, ils ont noté, du fait de la sollicitation choisie (absence de cisaillement), que la

décohésion de la particule n'est pas favorisée et que la transmission des contraintes entre la matrice et la particule est faible.

#### **II.4 Conclusion**

En général, un matériau industriel est optimisé suivant ces propriétés mécaniques mais cela n'est pas suffisant pour permettre une totale compréhension sur les micro-mécanismes de déformation et de leur couplage. En ce qui concerne la cavitation et la plasticité dans les polymères dont l'un des phases est un élastomère, l'utilisation des outils de la mécanique des milieux continus propose une aide à la compréhension du renfort au choc et vient en complément des outils et des modèles de la physico-chimie. Néanmoins, sur bien des points, la discussion reste ouverte. Il s'agit, entre autres, des interactions entre inclusions en élasticité, élasto-plasticité et visco-élastoplasticité.

### *Chapitre III*

## Etude de l'instabilité plastique en grande déformation du « Poly butylène Téréphtalate »

*L'effet de la triaxialité sur le comportement mécanique en grande déformation du thermoplastique «Poly butylène Téréphtalate », fera l'objet de ce chapitre. L'analyse des résultats sur des éprouvettes plates entaillées ont été effectuées afin de faire varier le taux de triaxialité des contraintes. On a aussi pour décrire le comportement de ce polymère, des modèles constitutifs ont été introduits non seulement pour prédire le comportement d'adoucissement du matériau en raison de la nucléation et de la croissance des vides, mais aussi pour déterminer la déformation volumique et l'endommagement du polymère.*

### III.1 Introduction

Les matériaux polymères sont de plus en plus utilisés dans plusieurs applications avec des spécifications rigoureuses et nouvelles. La modélisation du comportement, l'endommagement et la prédiction de la rupture sont par conséquent devenus une priorité. Ces problèmes demandent une nouvelle méthodologie d'analyse afin d'évaluer la capacité du matériau à résister à des charges complexes. C'est pourquoi le comportement de ces matériaux suscite actuellement un grand intérêt pour le monde de la recherche et de l'industrie. Afin d'analyser et déterminer le comportement réel de ce matériau (poly téréphtalate PBT), une méthode expérimentale spéciale est présentée.

Les vraies réponses de la contrainte-déformation en grande déformation plastique sont étudiées dans différents taux de triaxialité de contraintes avec une attention particulière sur l'évolution de la déformation volumique, leur séparation résultant de la déformation volumique élastique, de la contrainte volumique plastique et du cisaillement pur. L'effet de la triaxialité de contraintes sur l'instabilité plastique et la contrainte de rupture est également examiné. Enfin, afin d'évaluer l'endommagement de ce thermoplastique PBT, une formule d'endommagements théoriques est proposée.

Dans l'industrie des plastiques, les polymères techniques sont largement utilisés dans les composants d'ingénierie qui peuvent résister à des charges mécaniques plus complexes. La compréhension de leur comportement mécanique intrinsèque revêt une importance primordiale dans la conception de composants constitués de tels matériaux après traitement (injection, extrusion ou autre système de traitement). Au cours des dernières années, une attention considérable a été portée sur l'analyse des matériaux ductiles et des polymères solides en grandes déformations plastiques. Les processus de déformation impliqués dans la déformation plastique des matériaux ductiles ont été largement étudiés par plusieurs auteurs, [82-98]. Cependant, la plupart des études menées sur des polymères solides étaient basées sur les mêmes critères des matériaux ductiles, mais avec une idée originale. De ces travaux, nous pouvons également mentionner les travaux sus référencés [99 - 117].

Sur la base des travaux cités dans le premier paragraphe sur les polymères solides, nous résumons que la réponse de tous les polymères solides est connue. Elle est sensible à la température, à la contrainte / déformation, à l'instabilité plastique pendant l'étape de striction,

au durcissement et aux conditions de chargement (l'effet de triaxialité des contraintes) [102, 115 - 116].

Cependant, la détermination de ces paramètres et la caractérisation de ces matériaux en grande déformation plastique sur les propriétés mécaniques (par exemple, la limite d'élasticité, l'instabilité plastique ou les propriétés ultimes des polymères solides ...) est vraiment trop difficile avec des outils de mesure traditionnels, utilisés pour les matériaux ductiles. À cette fin, plusieurs dispositifs expérimentaux ont été développés et proposés pour caractériser ces matériaux, [106, 117-118]. En effet, le but de ce chapitre est d'étudier le comportement plastique d'un thermoplastique de la famille des polyesters à différents taux de triaxialité en grande déformation et aux conditions de contrainte plane.

En outre, les effets de triaxialité induits par la forme des éprouvettes plates sont étudiés en détail. Au cours des dernières années, l'étude et la modification des relations de la triaxialité des contraintes dans les conditions de déformation / contrainte planes, son évolution, la loi de comportement des matériaux ductiles et la rupture ont fait l'objet de nombreuses études [96, 119 - 125].

En première partie, nous nous sommes concentrés sur la caractérisation expérimentale du comportement constitutif dans des conditions bien contrôlées. Ce travail est basé sur la même idée proposée par Bai [121] afin de valider la relation de triaxialité pour les matériaux polymères en condition de contrainte plane et en grande déformation. Le matériau étudié présente une morphologie spéciale et trop complexe, qui oppose également de nombreuses difficultés dans l'analyse physique. La compréhension de la déformation et de l'endommagement des matériaux ductiles et des polymères sous différentes contraintes a été étudiée par de nombreux auteurs [92], [97] et [125]. L'utilisation d'une loi phénoménologique est toujours une bonne solution à ce problème afin de prédire le même comportement de ces matériaux jusqu'à la rupture. Plusieurs modèles basés sur les mêmes idées ont été proposés dans la littérature à utiliser pour prédire le comportement des matériaux ductiles et les polymères. Ceux-ci incluent par exemple les lois constitutives proposées par [88, 89], [99] et [126,134]. Dans ce travail, la loi de G'sell-Jonas [99] a été utilisée ; où la contrainte dépend de la déformation, de la vitesse et de la température. Au cours des dernières années, cette loi a été utilisée avec succès pour caractériser le comportement de beaucoup de polymères (amorphes et/ou semi-cristallins) sous différents chargements (traction, compression ...).



Dans la présente étude, nous avons introduit ce modèle constitutif afin de décrire le comportement mécanique du poly butylène (téréphtalate de butylène PBT) et d'analyser pour voir s'il est possible d'obtenir la même évolution dans son comportement et jusqu'à une grande déformation. Les caractéristiques pertinentes qui doivent être prises en compte dans l'application d'un modèle constitutif précis de G'sell [103] sont discutées en accordant une attention particulière à la déformation volumique et à l'endommagement. D'autre part, d'autres efforts de recherche ont été consacrés à la compréhension des mécanismes de croissance des cavités, de la coalescence et au développement de modèles micromécaniques pour mieux décrire la rupture ductile des polymères. Il est probable que le modèle de plasticité d'expansion le plus connu soit celui introduit par Gurson [101]; plus tard modifié par Tvergaard et Needleman [115-117]. Le modèle de Gurson a été dérivé en supposant que le mode de déformation de la matrice entourant la cavité soit homogène. Il peut donc prédire le comportement d'adoucissement du matériau en raison de la nucléation et de la croissance des vides, mais il n'a pas la capacité intrinsèque de prévoir le décalage d'un mode de déformation homogène en mode localisé par coalescence de vide. Un prochain travail, basé sur la méthode de volume élémentaire représentatif (VER), sera une bonne approche pour continuer ce travail, où la contrainte dépend de la déformation, de l'effet de triaxialité des contraintes et d'autres paramètres.

### III.2 Localisation des contraintes sur éprouvettes plates

Suivant la méthode de dérivation suggérée par Bridgman (1952) sur l'état des contraintes lors de la striction dans une éprouvette cylindrique, des éprouvettes plates en traction uni-axiale à trois rayons de courbure sont analysées. Un modèle de contrainte plane est représenté, avec un élément de surface arbitraire, figure III.1. Avec cette hypothèse, nous considérons le matériau comme «rigide parfaitement plastique».

Dans le système de coordonnées cartésiennes, les équations d'équilibre sont:

$$\sigma_{ij,j} = 0 \quad (\text{III-1})$$

En condition de contrainte plane, nous avons les conditions supplémentaires suivantes :

$$\begin{cases} \sigma_{xz} = \sigma_{yz} = 0 \\ \frac{\partial}{\partial z} [ ] = 0 \\ \sigma_{zz} = 0 \end{cases} \quad (\text{III-2})$$

Donc, l'ensemble des points appartenant à l'extrémité de l'entaille ne dépend que de deux directions ( $x$  et  $y$ ) :

$$\begin{cases} \sigma_{xx} \cos \alpha = \sigma_{xy} \sin \alpha \\ \sigma_{xy} \cos \alpha = \sigma_{yy} \sin \alpha \end{cases} \quad (\text{III-3})$$

Ces équations peuvent être réécrites comme suit :

$$\begin{cases} \sigma_{xx} = \sigma_{yy} \tan^2 \alpha \\ \sigma_{xy} = \sigma_{yy} \tan \alpha \end{cases} \quad (\text{III-4})$$

Au centre de l'entaille on obtient ( $Y = 0$ ),  $\alpha = 0$

$$\begin{cases} \sigma_{xx} \Big|_{x=0} = 0 \\ \sigma_{xy} \Big|_{y=0} = 0 \end{cases} \quad (\text{III-5})$$

$$\text{Et, } \frac{\partial \sigma_{yy}}{\partial y} \Big|_{y=0} = 0 \quad (\text{III-6})$$

Où ( $a$ ) désigne la demi-largeur de l'éprouvette. En condition de contrainte plane, on obtient:

$$\varepsilon_{zz} = \frac{1}{2} (\varepsilon_{xx} + \varepsilon_{yy}) \quad (\text{III-7})$$

En outre, en contrainte plane on suppose que la plastification apparaît après la striction, et la relation de la contrainte équivalente qui règnera est de Von-Mises donnée par :

$$\sigma_{eq} = \sqrt{\frac{1}{2} [(\sigma_{xx} - \sigma_{yy})^2 + (\sigma_{yy} - \sigma_{zz})^2 + (\sigma_{zz} - \sigma_{xx})^2]} \quad (\text{III-8})$$

Cette étude analytique nous impose de trouver un système de contraintes qui répond aux diverses exigences évoquées jusqu'ici. L'étude montre que nous pouvons avoir une solution simple qui satisfait à certaines conditions. Si nous définissons cela:

$$\sigma_{yy} = \sigma_{xx} + \sigma_{yy}|_{x=a} = \sigma_{xx} + F \quad (\text{III-9})$$

D'où,  $F = \sigma_{yy}|_{x=a}$  désigne la contrainte dans la direction (y) de l'élément de surface, dont la condition de plasticité de Von-Mises (Eq.III.8) est satisfaisante. Il s'agit d'un système de contrainte simple, dans lequel la charge longitudinale est uniforme pour toutes les sections transversales. Il n'existe pas de méthode directe pour résoudre toutes les équations ci-dessus, mais il est possible de trouver une solution valide dans le voisinage immédiat de la section transversale de l'entaille, en supposant que le contour forme une surface fermée dans l'entaille. La figure.III.1-b représente l'état de contraintes dans un contour assez proche de la section transversale de l'entaille. De (éq.III.4), l'une des lignes de contraintes principales est normale à la surface de l'entaille. En outre, sur l'axe central, les lignes sont normales à l'axe. Par conséquent, il est raisonnable d'approcher les lignes de contrainte principale par des cercles au milieu sur l'axe, comme le montre la figure III-1b. A travers un point (x) perpendiculaire à l'axe (ox) on peut faire passer d'autres familles de lignes de contraintes principales. On suppose que ces lignes sont également des cercles et le cercle de l'entaille est également une de ces lignes. Prenons un très petit angle  $\phi$ , le rayon de l'entaille est R, et le rayon du cercle est  $R' = a/\phi$ . De la géométrie, on notera que l'angle  $LOAB = LOCB = \phi$ . Maintenant, un petit élément, avec une largeur d'unité dans la direction (z), délimité par (x) et, (x+dx), qui correspondent à l'angle du plan axial ( $\theta$ ) et ( $\theta'$ ), est considéré. De la géométrie ci-dessous, on peut obtenir la relation suivante :

$$\left\{ \begin{array}{l} \theta = \frac{x\phi}{a} \\ \theta' = \frac{(x+dx)\phi}{a} = \frac{x\phi}{a} + \frac{dx\phi}{a} \end{array} \right. \quad (\text{III-10})$$

De l'équilibre des forces dans la direction (x), on obtient:

$$\left( \sigma_{yy} + \frac{\partial \sigma_{yy}}{\partial y} dy \right) \sin \theta . dx - \sigma_{xx} h + \left( \sigma_{xx} + \frac{\partial \sigma_{xx}}{\partial x} dx \right) h' = 0 \quad (\text{III-11})$$

De la géométrie, nous avons la relation suivante:

$$\begin{cases} h = R\phi + R'(\cos \theta - \cos \phi) \\ h' = R\phi + R'(\cos \theta' - \cos \phi) \end{cases} \quad (\text{III-12})$$

de l'éq. III-10 et l'éq. III.12. En supposant que  $(\theta)$  est très petit, et avec la relation suivante

$\cos x = 1 - \frac{x^2}{2}$ , on aura les deux relations:

$$\begin{cases} h = \phi \left( R + \frac{a^2 - x^2}{2a} \right) \\ h' = \phi \left( R + \frac{a^2 - x^2}{2a} - \frac{x}{a} dx \right) \end{cases} \quad (\text{III-13})$$

De l'éq. III.13 et l'éq. III.11, et avec  $\sin x = x$  nous obtenons l'équation suivante:

$$\frac{d\sigma_{xx}}{dx} = - \frac{Fx}{a \left( R + \frac{a^2 - x^2}{2a} \right)} \quad (\text{III-14})$$

L'intégration de l'éq. III.14, en considérant les conditions de limite dans l'éq. III.5 et l'éq. III.6, nous obtenons la solution approximative de la contrainte  $\sigma_{xx}$ .

$$\sigma_{xx} = F \ln \left( \frac{a^2 + 2aR - x^2}{2aR} \right) \quad (\text{III-15})$$

De l'éq. III.15 et l'éq. III.9, en utilisant les conditions aux limites, nous obtenons  $\sigma_{yy}$  et  $\sigma_{zz}$  par :

$$\begin{cases} \sigma_{yy} = F \ln \left( 1 + \ln \left( \frac{a^2 + 2aR - x^2}{2aR} \right) \right) \\ \sigma_{zz} = 0 \end{cases} \quad (\text{III-16})$$

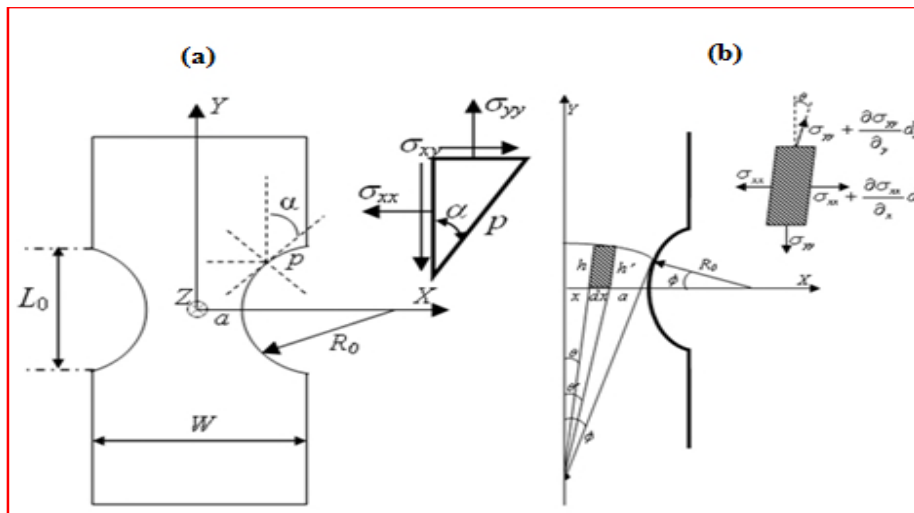


Figure. III.1 : Modèle de contrainte plane: a) section transversale; b) diagramme de l'analyse de contraintes approximatives au voisinage de l'entaille.

### III.3 Matériau et méthodes expérimentales

#### III.3.1 Matériau

##### III.3.1.1 Poly téréphtalate de butylène (PBT)

Le poly téréphtalate de butylène, (PBT) est un thermoplastique d'ingénierie qui combine les caractéristiques souhaitées telles que: rigidité, dureté, résistance à l'abrasion, résistance aux solvants et à l'isolation électrique. Il est largement utilisé pour produire des pièces moulées par injection et extrusion. C'est un polymère semi-cristallin, ses propriétés dépendent fortement de son degré de cristallinité et des conditions de traitement qui lui sont soumises. Les propriétés physiques sont données dans le tableau ci-dessous:

Tableau III.1 Spécifications techniques et physiques du poly téréphtalate, PBT.

Caractéristiques	Valeurs
<b>Propriétés physiques</b>	
Densité	1.3 g/cm <sup>3</sup>
Vitesse d'écoulement / volume	20 g/10 (min)
Poids moléculaire de l'unité	220,23 (g / mol)
Température de fusion ( $T_f$ )	223.18° C
Température de recristallisation ( $T_c$ )	176° C
Température de transition vitreuse	66°C

### III.3.2 Préparation et géométrie des éprouvettes

Des plaques en Poly téréphtalate moulées par injection nous ont été fournies par la société DSM, et à l'aide d'une matrice métallique nous avons prélevé les éprouvettes plates à différents rayons de courbures. Le schéma de la géométrie de l'éprouvette figure.III.2, est référencés, par  $R_x$ , où  $(x)$  est la valeur du rayon de courbure. Toutes les éprouvettes plates ont les mêmes largeurs minimales et maximales. Avec ces éprouvettes plates, et avec deux entailles symétriques, nous pouvons facilement contrôler la triaxialité des contraintes initiales.

*Tableau III.2 : dimensions de l'éprouvette.*

Rayons de courbures de l'entaille (R)	2, 4, 10 mm
Largeur minimale ( $W_0$ )	8 mm
Largeur maximale ( $W= 2a$ )	12 mm
Epaisseur ( $t_0$ )	4 mm
Longueur utile ( $L_0$ )	30 mm

Un paramètre qui sera fréquemment mentionné dans ce travail est la triaxialité des contraintes [136]. Elle est définie comme le rapport de la contrainte moyenne  $\sigma_m$  et la contrainte de Von-Mises  $\sigma_{eq}$  :

$$\beta = \frac{\sigma_m}{\sigma_{eq}} \quad (\text{III-17})$$

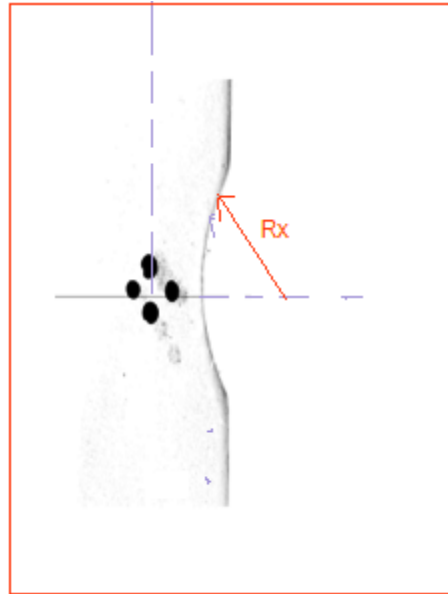
$\sigma_m$ , est exprimé comme suit:

$$\sigma_m = \frac{1}{3}(\sigma_{xx} + \sigma_{yy} + \sigma_{zz}) \quad (\text{III-18})$$

On peut l'exprimer en utilisant les paramètres géométriques dans l'état non déformé, car l'expression de la triaxialité initiale, dérivée par Bai [121], est donnée par:

$$\beta = \frac{1+2A}{3\sqrt{A^2 + A+1}} \quad (\text{III-19})$$

$$\text{Avec, } A = \ln[1 + a/2R_0] \quad (\text{III-20})$$



*Figure III.2 : géométrie de l'éprouvette en Poly butylène (téréphtalate de butylène (PBT))*

## III.4 Résultats et analyse

### III.4.1 Caractérisation du comportement plastique

Dans cette section, une comparaison sera effectuée entre les résultats des essais de traction uni-axiale effectués sur des éprouvettes plates dans des conditions de contraintes planes pour différentes triaxialité. L'objectif de cette analyse est d'analyser l'effet de triaxialité des contraintes en grande déformation. Les tests ont été effectués sur une machine INSTRON, à une vitesse de déformation  $10^{-3} s^{-1}$  et à température ambiante ( $23^{\circ} C$ ). La technique de la vidéo traction à quatre tâches a été utilisée également pour contrôler le taux de déformation et mesurer la déformation locale dans la section de l'éprouvette.

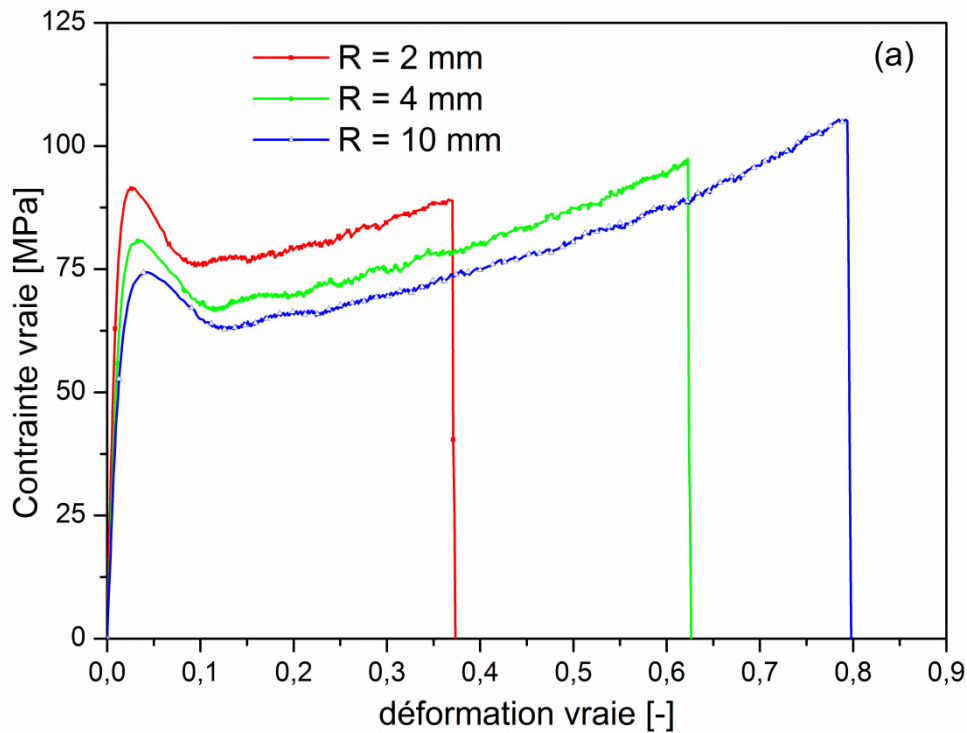
La figure III.3 montre l'évolution de la contrainte axiale vraie et l'évolution volumique par rapport à la déformation axiale vraie du poly téréphtalate de butylène, (PBT), elle résume l'effet de triaxialité des contraintes sur le comportement et l'endommagement de ce matériau. La figure III-3a montre une limite proportionnelle suivie d'un maximum auquel le rétrécissement s'effectue. Il est évident d'appeler ce maximum comme la limite d'élasticité dans les matériaux polymères. Dans l'étape finale avant la rupture on observe un phénomène de durcissement. En outre, les résultats montrent une forte influence de la triaxialité des contraintes sur la réponse du comportement du PBT, et il est plus prononcé en grandes déformations. L'influence de la triaxialité des contraintes sur le comportement est également évidente dans l'évolution de la déformation volumique, figure III-3b.

Afin de comprendre le comportement macroscopique du poly téréphtalate de butylène, (PBT), nous avons appliqué les critères Heiken [135] afin de séparer la déformation volumique en élasticité linéaire et les évolutions volumiques des cavités couplées à la déformation de cisaillement. Nous rappelons que la décomposition de la déformation est donnée par la relation suivante:

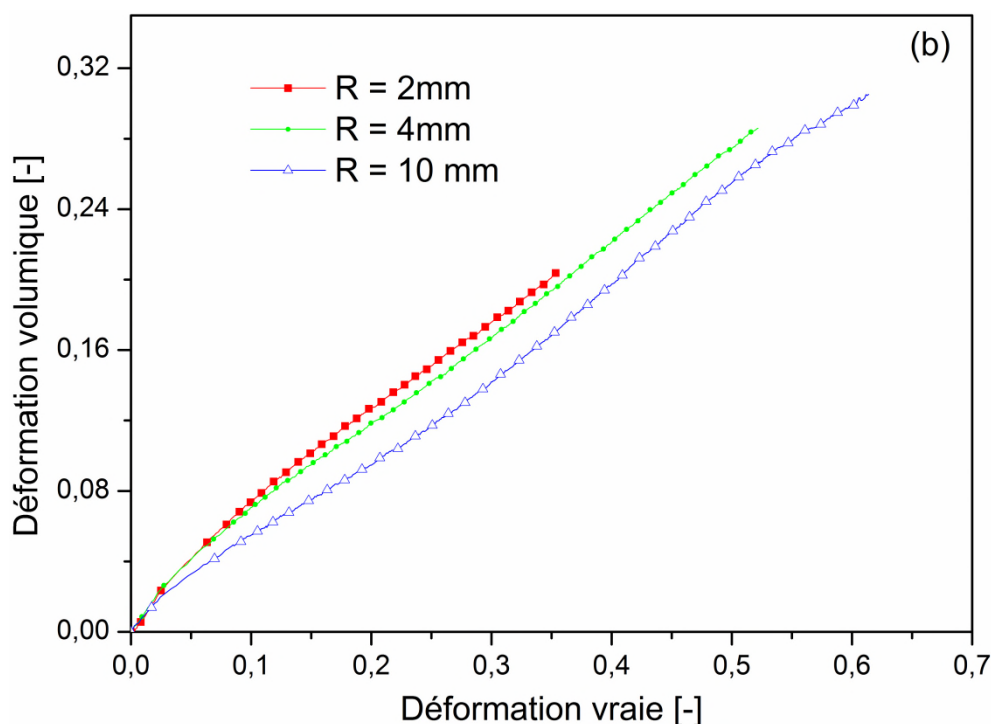
$$\varepsilon_v = \varepsilon_{Vel} + \varepsilon_{Vcav} + \varepsilon_{sh} \quad (\text{III-21})$$

$$\text{Avec, } \begin{cases} \varepsilon_{Vel} = \varepsilon_{el} (1 - 2\nu) \\ \varepsilon_{Vcav} = \varepsilon_V - \varepsilon_{Vel} \\ \varepsilon_{sh} = \varepsilon - \varepsilon_{Vcav} - \varepsilon_{Vel} \end{cases} \quad (\text{III-22})$$

$$\text{Et, } \begin{cases} \varepsilon_{el} = \frac{\Sigma}{E} \\ \varepsilon_V = \varepsilon_1 + \varepsilon_2 + \varepsilon_3 = \ln\left(\frac{V}{V_0}\right) \end{cases} \quad (\text{III-23})$$







**Figure III-3** : Effet de la triaxialité de contrainte sur : a) la réponse contrainte-Déformation, b) l'évolution de la déformation volumique.

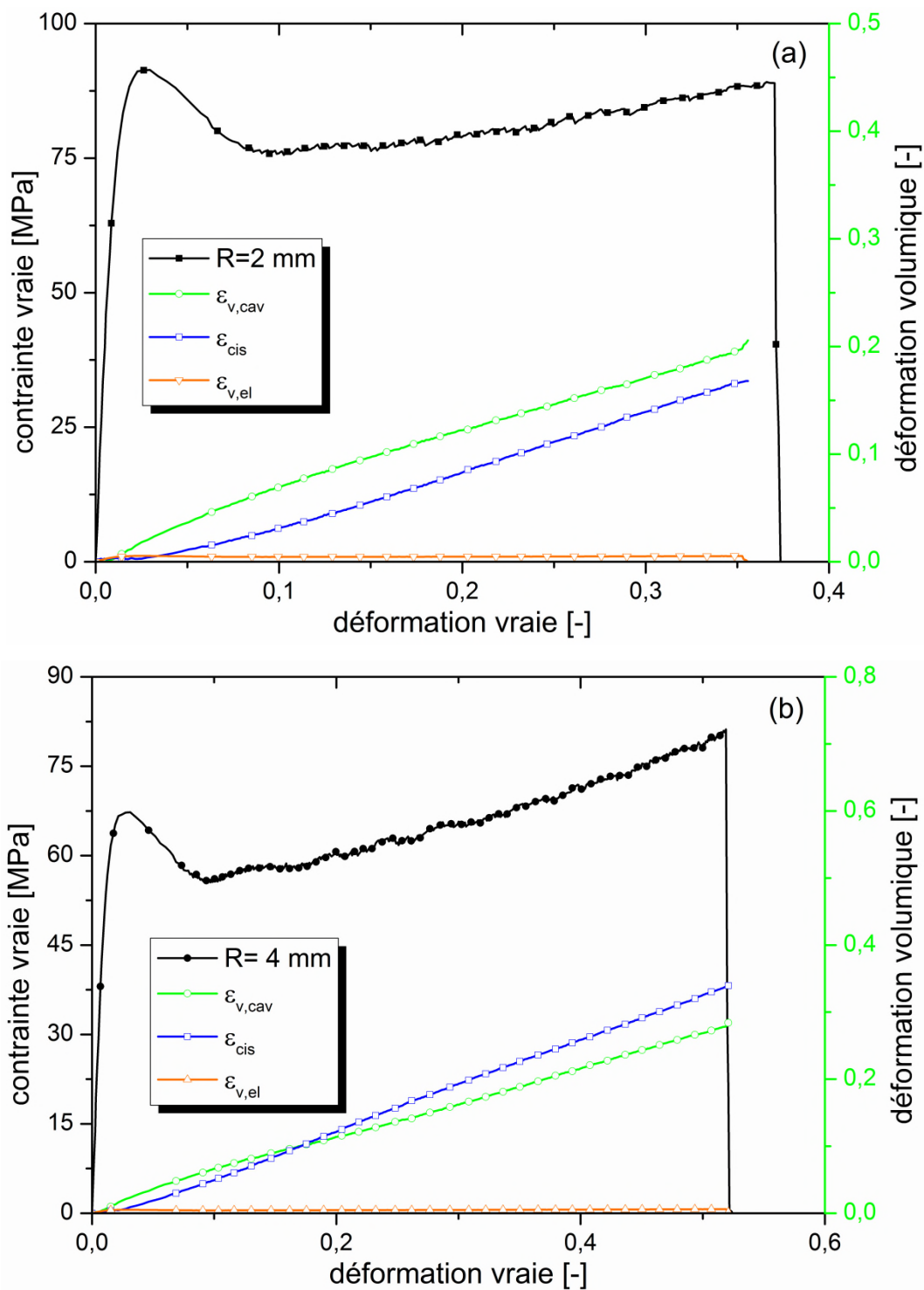
La vitesse de déformation est maintenue constante dans la partie de striction de l'éprouvette par un système de mesure optique (ombroscopie). Au début de la striction, une différence entre les deux déformations (transversales et longitudinales) sera détectée par le système optique. Par conséquent, il ralentit la vitesse transversale de la machine afin de stabiliser le taux de déformation locale.

Les courbes d'évolution contrainte/déformation vraie de ce poly téréphtalate de butylène, (PBT) sous une traction uni-axiale sont présentées dans la figure III-4a, figure III-4b et figure III-4c. Nous observons un comportement ductile quel que soit l'état de triaxialité. Le vrai comportement contrainte-déformation se caractérise par quatre étapes principales :

Une réponse élastique initiale, suivie d'un adoucissement ; un durcissement progressif de la déformation plastique et enfin une forte déformation plastique durcissante en grande déformation avant la rupture finale. En outre, nous présentons l'évolution des trois composantes de la déformation volumique selon la relation de *D. Heikens* [135].

On remarque un caractère typique pour ce polymère. Un comportement plastique qui se caractérise par une ductilité élevée et l'effet de triaxialité. La déformation volumique élastique est causée par l'élasticité et l'effet du coefficient de Poisson;

Alors que, la déformation volumique plastique permet de caractériser le début de l'endommagement et sa cinétique. Ce dernier paramètre représente une proportion significative de la déformation totale. Enfin, la déformation due au cisaillement en plastique pur nous permet d'apprécier une déformation impliquant aucun changement de volume.



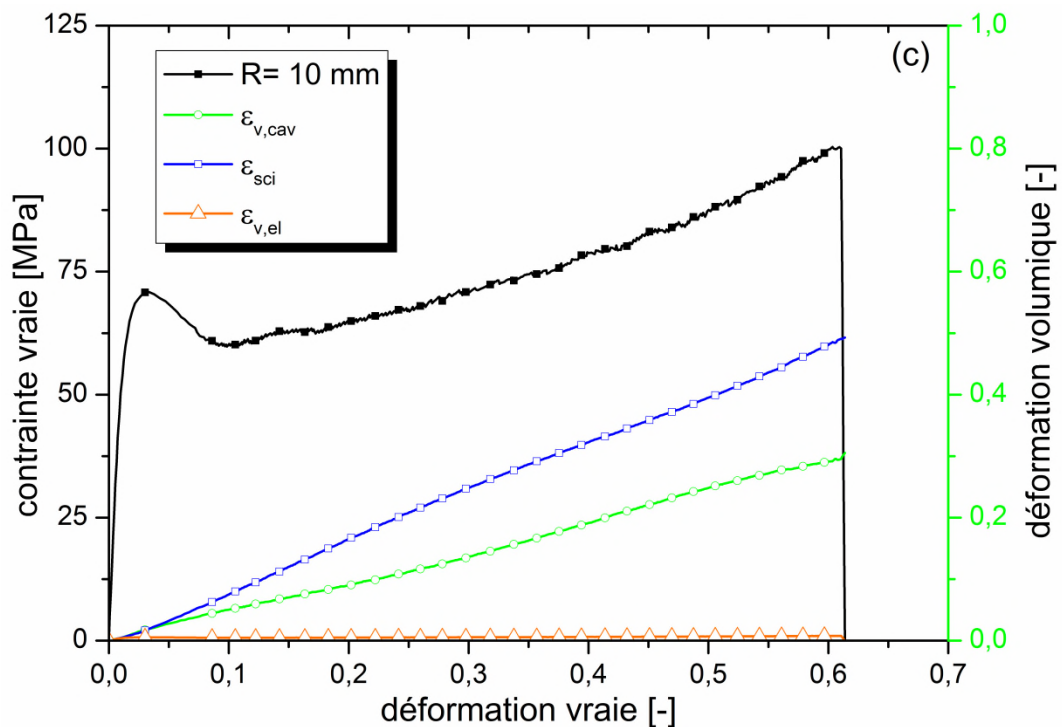
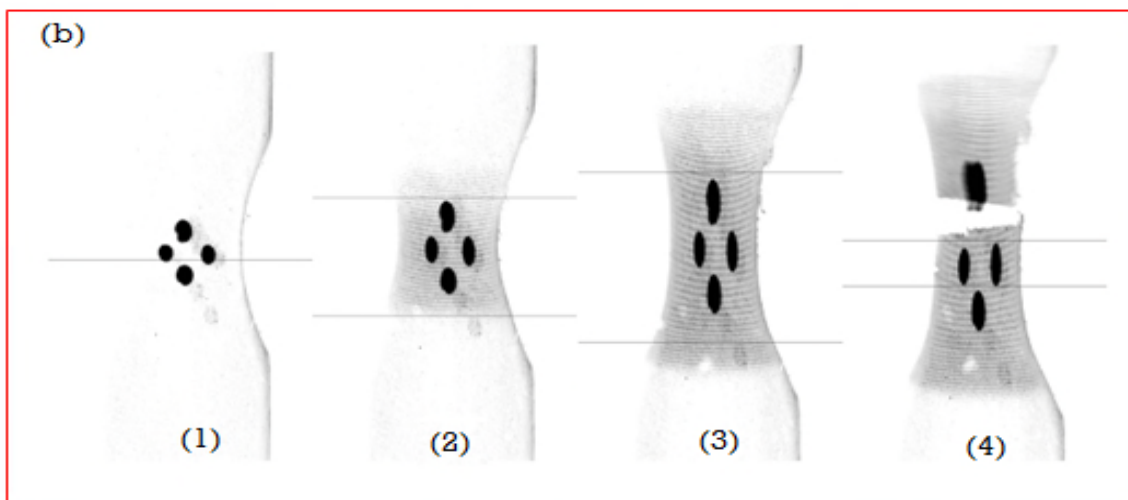
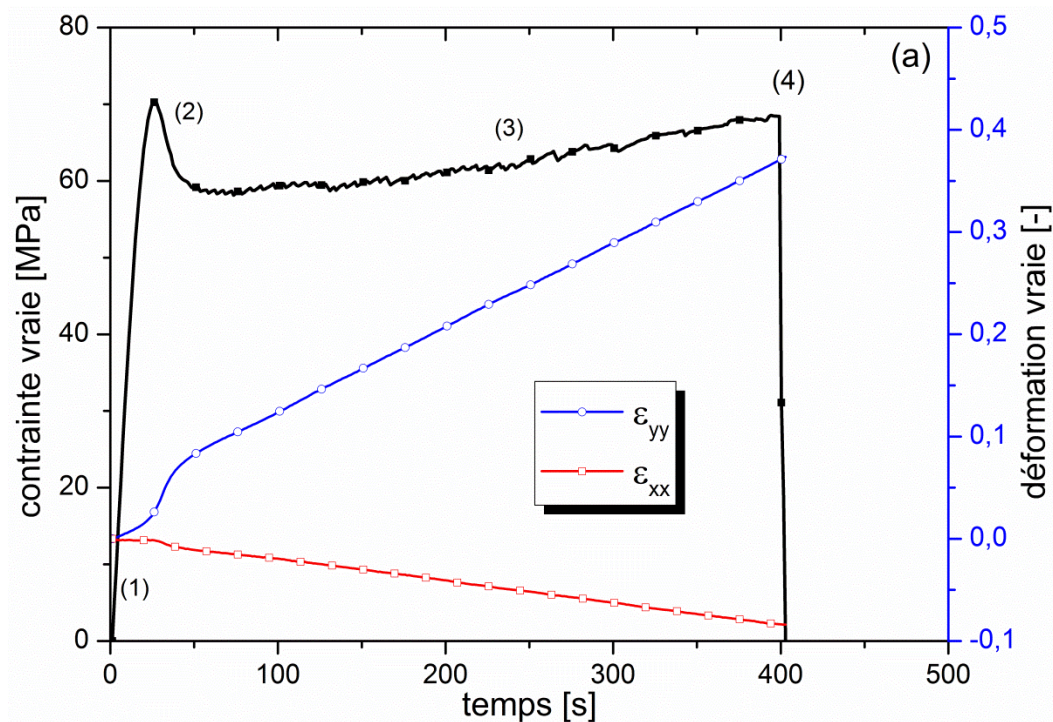


Figure III-4 : contraintes vraies et évolution de la déformation volumique par rapport à la déformation vraie.

Une autre caractéristique importante qui doit être notée dans cette partie est l'influence de la triaxialité des contraintes sur la déformation volumique plastique et la déformation due au cisaillement plastique pur.

### III.4.2 Instabilité plastique

Afin de caractériser le degré d'inhomogénéité de la déformation et d'identifier les processus microstructures de l'endommagement du poly butylène (téréphtalate de butylène) (PBT), les mêmes résultats précédents sont examinés. Dans ces résultats, les courbes, contrainte-déformation, vraies montrent une gamme viscoélastique allant jusqu'à l'élasticité pour toutes les triaxialités considérées dans cette partie, illustrée sur la figure III-5. Au cours de cette étape, la déformation est presque homogène. Après la limite élastique, nous observons une chute de charge avec une diminution de la contrainte vraie de 70 à 60 MPa. Dans cette étape critique, l'écoulement plastique se propage sur toute la largeur de l'éprouvette (au milieu du défaut géométrique). Enfin, la contrainte vraie se stabilise. Il semble que le milieu du rétrécissement soit moins stable qu'auparavant. Nous avons remarqué un comportement particulier pour ce polymère : c'est le phénomène de la striction dû à l'instabilité plastique.



**Figure III-5 :** a) Evolution de la contrainte/déformation vraie par rapport au temps, b) Déformation de l'éprouvette au cours de la sollicitation.

Les spécialistes de polymères ont recherché des lois plus spécifiques capables de définir le comportement viscoplastique de nombreux polymères. Dans ce contexte, plusieurs approches ont été proposées. G'sell et Jonas [99] ont proposé initialement un modèle de comportement phénoménologique donné par :

$$\sigma(\varepsilon, \dot{\varepsilon}) = K \exp(h \varepsilon^2) \dot{\varepsilon}^m \quad (\text{III-24})$$

Où  $\sigma$  est la contrainte équivalente,  $\varepsilon$  est la déformation équivalente,  $m$  est le coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation,  $K, h$  sont deux constantes de matériau.

Les facteurs «  $\exp(h\varepsilon^2)$  et  $\dot{\varepsilon}^m$  » décrivent respectivement l'effet du durcissement et de la viscosité sur le comportement. G'sell [103] a proposé d'autres modifications à l'équation (III-24), et il a inclus d'autres facteurs pour montrer que la loi de comportement de tous les polymères peut être décrite par une relation globale exprimée comme suit :

$$\sigma(\varepsilon, \dot{\varepsilon}) = K \cdot f(\varepsilon) \cdot g(\dot{\varepsilon}) \quad (\text{III-25})$$

Où  $K$  est une constante du matérielle; tandis que  $f(\varepsilon)$  et  $g(\dot{\varepsilon})$  représentent respectivement l'influence de la déformation et sa vitesse. La fonction  $f(\varepsilon)$  peut être écrite comme suit :

$$f(\varepsilon) = V(\varepsilon) \cdot C(\varepsilon) \cdot H(\varepsilon) \quad (\text{III-26})$$

$$\text{Avec} \quad \begin{cases} V(\varepsilon) = 1 - \exp(-w \cdot \varepsilon^v) \\ C(\varepsilon) = 1 + a \cdot \exp(-b \cdot \varepsilon) \\ H(\varepsilon) = \exp(h \cdot \varepsilon^n) \end{cases} \quad (\text{III-27})$$

$V(\varepsilon)$ , décrit la loi de comportement viscoélastique ;  $C(\varepsilon)$  représente le crochet de traction et  $H(\varepsilon)$ , décrit le durcissement graduel en grandes déformations, où  $n$  est égal à 2 dans la plupart des cas. La sensibilité de la vitesse de déformation est montrée par  $g(\dot{\varepsilon})$ , on peut l'écrire sous la forme suivante :

$$g(\dot{\varepsilon}) = \dot{\varepsilon}^m \quad (\text{III-28})$$

Dans le cadre de ce travail, et afin de bien comprendre le comportement mécanique du polymère étudié, les formules de G'sell [99, 103] sont utilisées et comparées aux résultats expérimentaux de la figure III-5. Nous observons une bonne corrélation entre les résultats expérimentaux et ceux obtenus à partir de la modélisation. En effet, la loi G'sell [103] donne

une évolution équivalente aux résultats expérimentaux, pour tous les stades de déformation. Cependant, la deuxième formule de la loi G'sell-Jonas [99] ne reproduit pas la même évolution expérimentale du poly butylène (téréphtalate de butylène) (PBT) et ne considère pas le crochet de traction qui reflète la réponse réelle et la cristallinité du PBT. Nous remarquons une dispersion dans les résultats entre les taux de triaxialité des contraintes extrêmes (R2 et R10) figure III- 6, c.-à-d., l'effet de triaxialité des contraintes ne peut pas être reproduit. Nous avons utilisé des modèles sans modifications. Notre objectif est étudié l'évolution de l'instabilité plastique par rapport à la triaxialité sous un comportement mécanique isotherme et un taux de contrainte constant.

L'équation de la localisation de la contrainte est la suivante :

$$dF = 0 \quad (\text{III-29})$$

$$\text{D'où, } \frac{d\sigma}{\sigma} = -\frac{dS}{S} \quad (\text{III-30})$$

Et  $V = SI$ , Représente le volume initial.

On obtient:

$$S = S_0 \left( \frac{I_0}{I} \right) e^{\varepsilon_{11} + \varepsilon_{22} + \varepsilon_{33}} = S_0 e^{\varepsilon_{22} + \varepsilon_{33}} \quad (\text{III-31})$$

$$dS = S_0 e^{\varepsilon_{22} + \varepsilon_{33}} (d\varepsilon_{22} + d\varepsilon_{33}) \quad (\text{III-32})$$

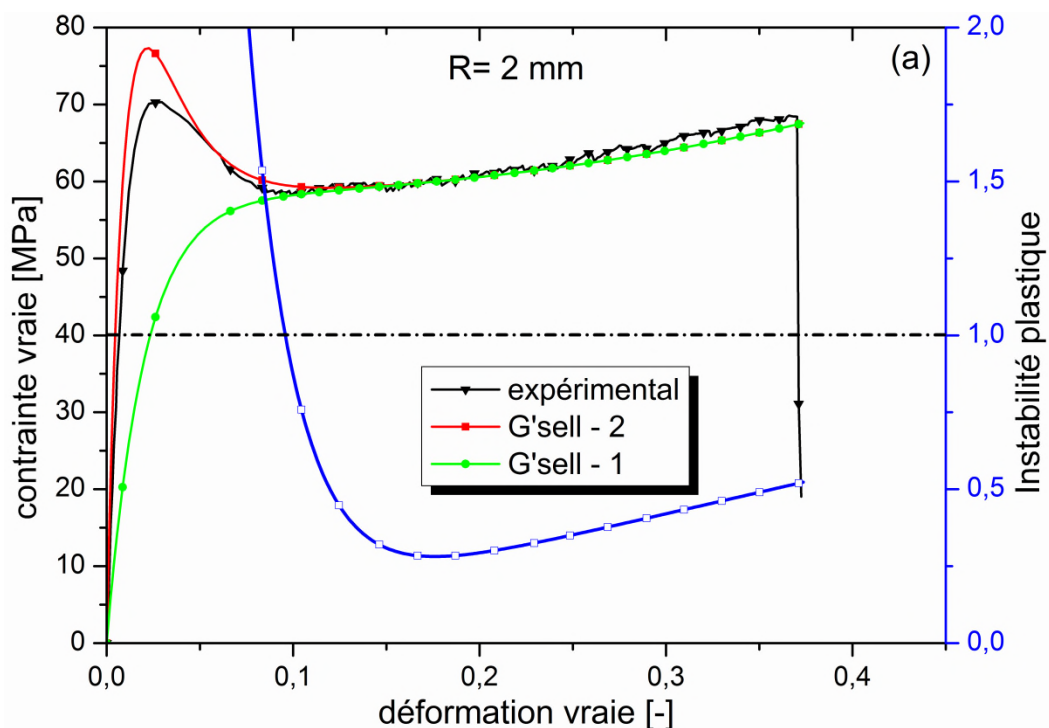
$$\frac{d\sigma}{\sigma} = -(d\varepsilon_{22} + d\varepsilon_{33}) \quad (\text{III-33})$$

Où, les conditions de déformation localisées peuvent également être exprimées comme suit :

$$\frac{d\sigma}{d\varepsilon_{11}} = -\sigma \left[ \frac{d\varepsilon_{22}}{d\varepsilon_{11}} + \frac{d\varepsilon_{33}}{d\varepsilon_{11}} \right] = \bar{\sigma} \quad (\text{III-34})$$

Toutes les évolutions de l'instabilité plastique par rapport à la déformation vraie sont illustrées sur la figure III-6 pour toutes les triaxialités selon les rayons R2, R4 et R10. Ces évolutions peuvent être qualitativement liées au comportement microstructural impliqué dans la déformation plastique du matériau PBT. Au début du stade il y a un étirement des chaînes, suivi d'une rotation et d'une déformation plastique. Dans la phase finale, se présente une formation d'une microstructure fibrillaire qui conduit au durcissement important de la contrainte/déformation observé. On le voit clairement sur la figure III-3, que la triaxialité des contraintes a un effet important sur le durcissement.

La valeur critique de l'instabilité plastique utilisée dans la littérature est de 1. Ce qui signifie qu'une instabilité plastique inférieure à 1 est un développement et une propagation de la striction, comme cela a été observé dans les essais expérimentaux de la figure III-5b. Cependant, nous notons que l'évolution initiale de la striction se stabilise après un certain niveau de déformation, ce qui signifie que l'instabilité plastique est supérieure à 1.



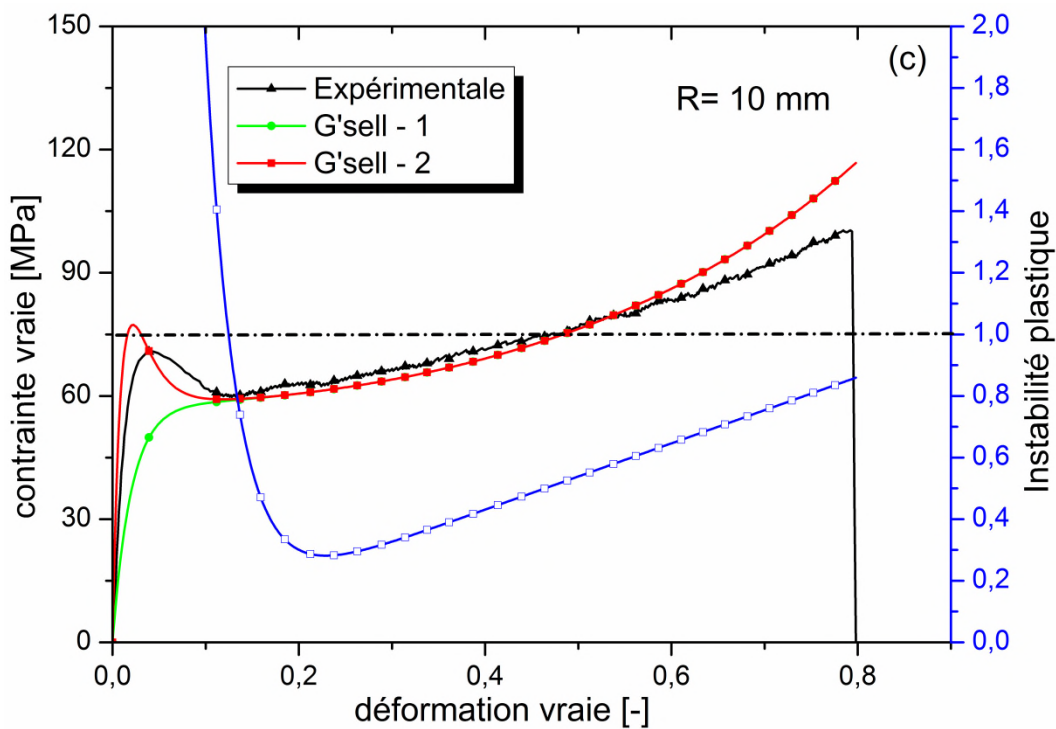
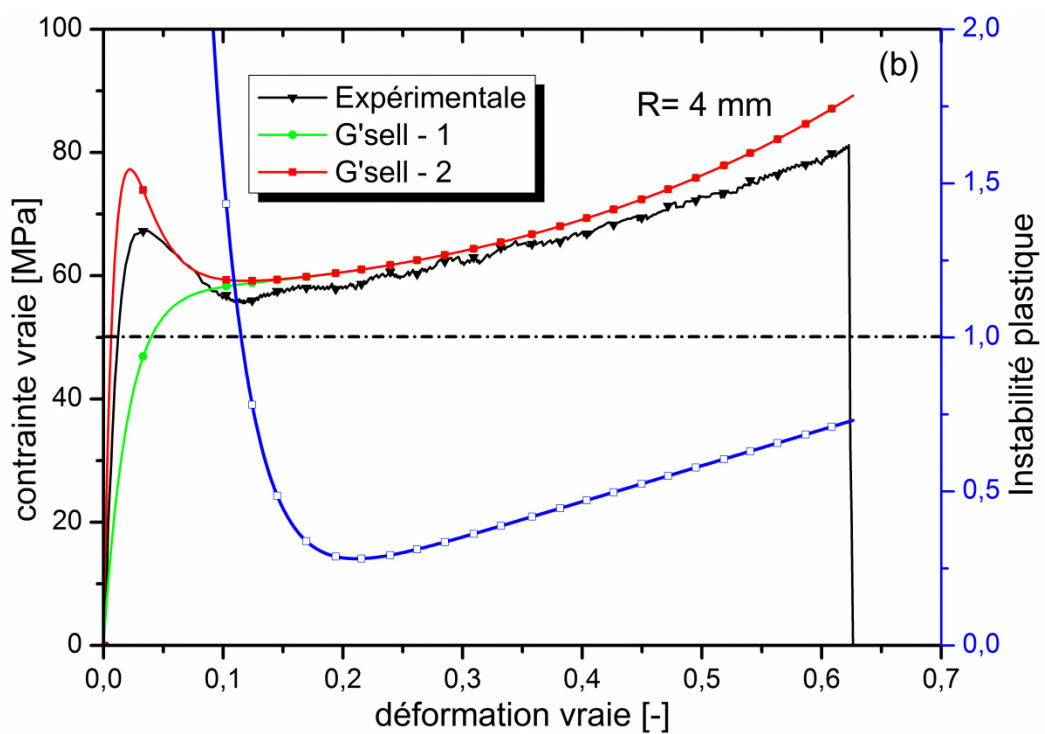


Figure III-06 : réponse de la contrainte vraie et l'instabilité plastique par rapport à la déformation vraie.

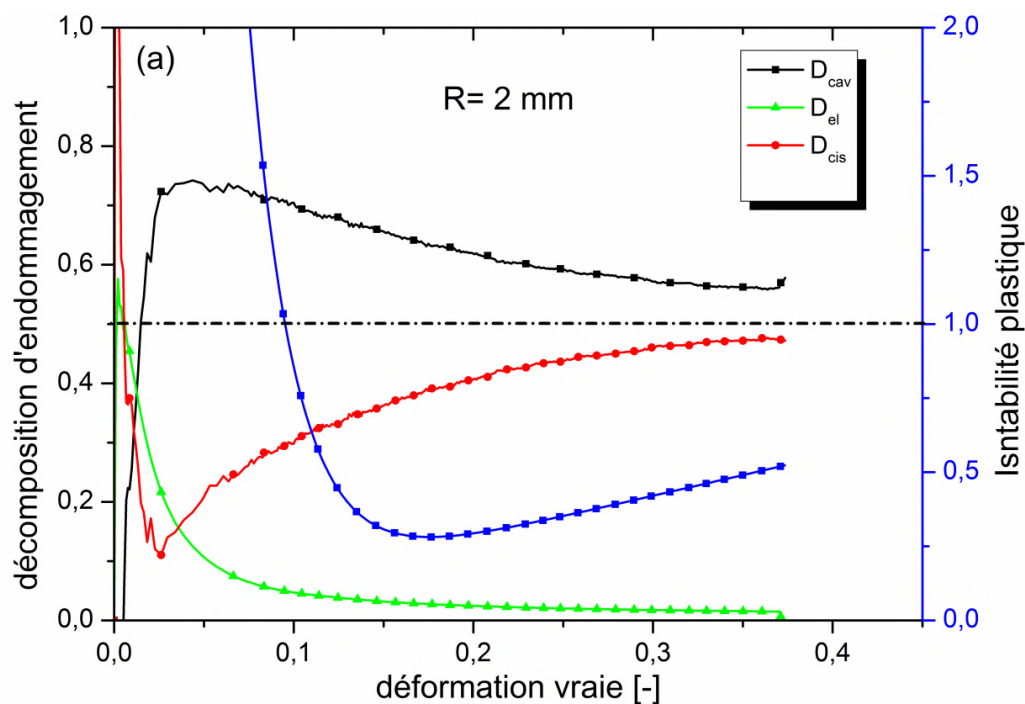


### III.4.3 Évolution de l'endommagement

Dans cette étude, nous limiterons notre objectif à l'évolution de l'endommagement pour les triaxialités envisagées. La figure III.7, montre l'évolution de l'endommagement  $D = (d\varepsilon_v / d\varepsilon_3)$  en fonction de la déformation vraie pour le poly téréphtalate de butylène, (PBT). Afin de comprendre le comportement macroscopique de ce polymère, nous avons appliqué le même critère de Heiken [135] pour séparer l'endommagement en une composante élastique linéaire, endommagement en volume des vides et déformation par cisaillement. La décomposition de l'endommagement est obtenue suivant la relation ci-dessous [102]

$$D = D_{el} + D_{cav} + D_{sh} \quad (\text{III-35})$$

Sur la figure III-7, on peut voir que l'endommagement présente une augmentation transitoire à petites déformations avec un maximum de 0,05, au cours de laquelle il augmente à une valeur maximale. Ce pic est très influencé par l'effet de triaxialité. Au-delà de la valeur critique de l'endommagement, il est essentiel d'interpréter la diminution observée après le pic (valeur max). Globalement, la diminution de l'endommagement dans notre polymère s'explique par l'évolution de la déformation volumique de la microstructure du PBT. Cependant, cette évolution dépend de l'effet de triaxialité. Nous concluons qu'il y a un endommagement plus important pour une triaxialité plus élevée.



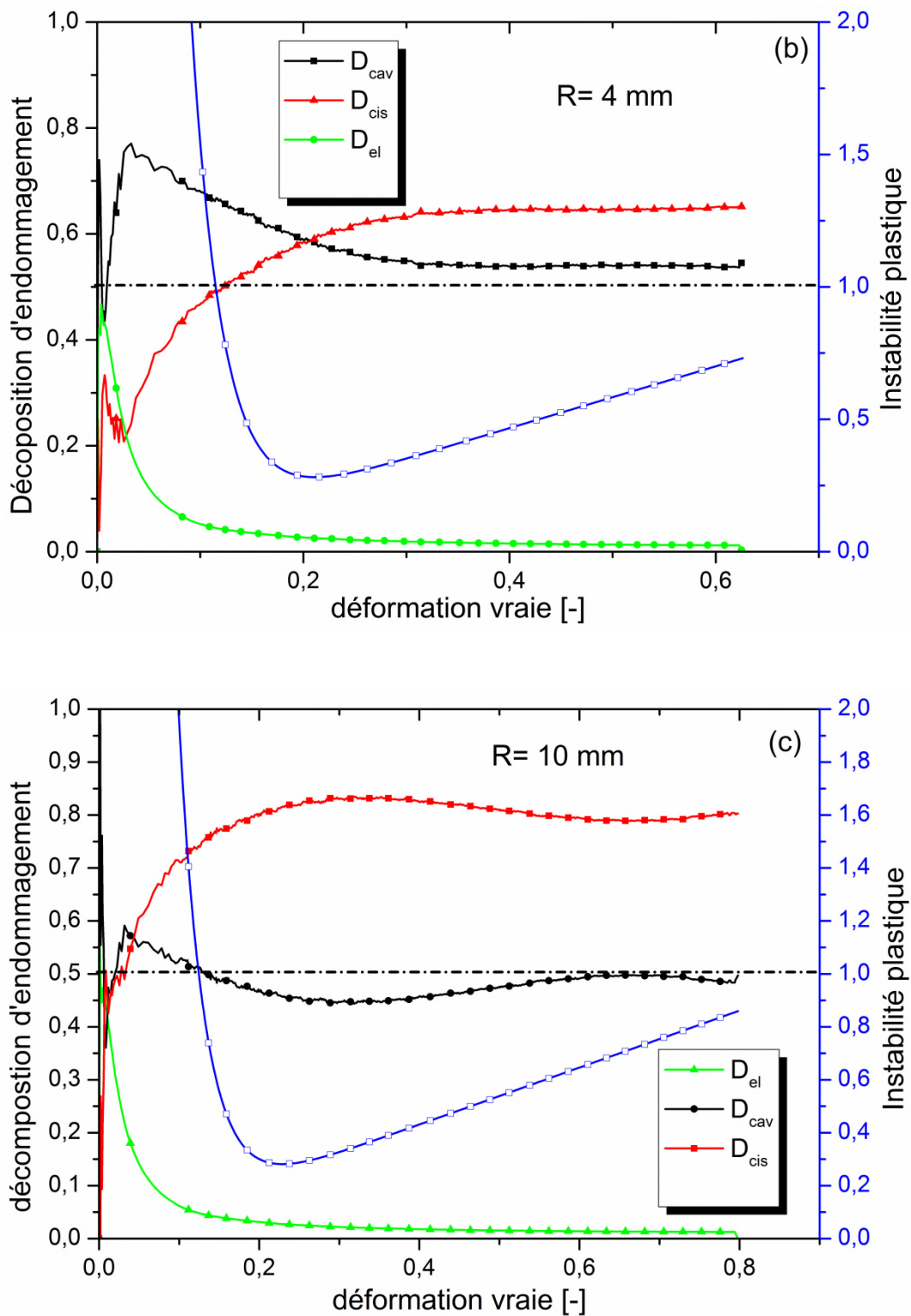


Figure III-7 : Évolution de l'endommagement par rapport à la déformation axiale vraie

### III.5 Conclusion

Le comportement mécanique en grande déformation plastique du poly téréphtalate de butylène, PBT) a été étudié à travers des résultats expérimentaux et des formules analytiques. L'endommagement plastique du poly butylène (téréphtalate de butylène, PBT) a été analysé à différents taux de triaxialité des contraintes et testé sous-charge uni-axiale sur des éprouvettes plates entaillées. Le but de ce travail est de vérifier des valeurs spécifiques de triaxialité des contraintes dans la section transversale médiane et dans des conditions de contrainte planes.

Le matériau a été également testé par un système de mesure optique pour contrôler l'évolution du taux de déformation longitudinale et transversale. Pour bien décrire quantitativement l'endommagement du poly téréphtalate de butylène, PBT), on a déterminé l'évolution de la déformation volumique avec la décomposition de la déformation totale en une évolution de l'élasticité linéaire et des évolutions volumiques des vides couplées à une déformation de cisaillement. Il a été remarqué pour l'ensemble les tests, que le matériau subit des changements de volume significatifs lors de la déformation favorisée par des valeurs élevées du rapport de triaxialité des contraintes.

***Chapitre IV***  
**Caractérisation thermomécanique**  
**du « PBT-PTMO & PBT »**

*Afin d'effectuer une caractérisation physique et mécanique du thermoplastique PBT et du PBT/PTMO comme étant un mélange d'élastomère, une étude expérimentale a fut l'objet de ce chapitre. Des essais thermomécaniques ont été réalisés dans le but de calculer certains paramètres de caractérisation, suivis d'une comparaison entre le PBT et PBT/PTMO, accordé aux résultats thermiques obtenus. Pour mieux comprendre en grande déformation l'étirement de la matière du mélange PBT/PTMO, des essais mécaniques ont permis à une détermination macroscopique des phénomènes d'endommagement par une décomposition de la déformation totale. Le paramètre d'endommagement majeur retenu est la variation volumique plastique.*

## IV.1 Introduction

Le Poly téréphtalate de butylène PBT et le mélange du Poly téréphtalate de butylène avec du poly oxyde de tétra méthylène (PTMO) sont présentés dans cette partie. Pour chacun des deux matériaux de polymères, le taux de cristallinité, température de transition vitreuse, température de fusion et l'enthalpies de fusion et de cristallisation sont déterminés. A cette fin, divers techniques sont employées, notamment la DSC, DMA.

Les essais mécaniques sont également présentés. On s'attarde plus particulièrement sur les délicates mesures de variation de volume déterminé sur le mélange d'élastomère. L'accent est mis également sur une comparaison aux différents paramètres physiques du thermoplastique PBT et le mélange PBT/PTMO. Pour bien récolté un maximum d'informations et avec les moyens disponible, une étude de vieillissement a été réalisé aux laboratoires sur le mélange PBT/PTMO sous les conditions physiques suivantes (durée de vieillissement: 48h et 168h, température du milieu 50°C).

## IV.2 Détermination des paramètres physiques du PBT et PBT-PTMO

### IV.2.1 Présentation du matériau

Le mélange PBTPTMO est un Thermoplastique élastomère de la famille des Copolyetherester (TPC), c'est un triblocs séquencés d'un thermoplastiques de type Poly téréphtalate de butylène (PBT) de la famille des polyesters. Le PBT est un thermoplastique couramment transformé par injection plastique obtenu par polycondensation de l'acide téréphtalique et du butane-1,4-diol, la seconde séquence est un élastomère appelé (poly oxyde de tétra méthylène) (PTMO). La microstructure obtenue, figure IV.1 ; forme une combinaison de trois phases, deux phases de Poly téréphtalate de butylène PBT dure, de segment cristallin avec une autre phase amorphe homogène de PTMO (segments mous). Les deux blocs forment des enchaînements géométriquement réguliers permettant la cristallisation donc une température de ramollissement et un module élevés.

Le poly butylène téréphtalate PBT est très sensible à l'hydrolyse à l'état fondu. Celle-ci est provoquée par l'humidité présente dans la matière qui se transforme en vapeur d'eau lors de la mise en œuvre. Cette réaction entraîne une coupure des chaînes macromoléculaires réduisant ainsi leur masse molaire. Il faut impérativement procéder au séchage correct de la matière avant la transformation. De plus, la reprise d'humidité superficielle est très rapide.

Ce mélange d'élastomère à base d'élastomère, connu par son nom commercial « *Arnitel*, classe *EM460* », appartient à une famille d'élastomères thermoplastiques à base d'un copolymère polyester (COPE).

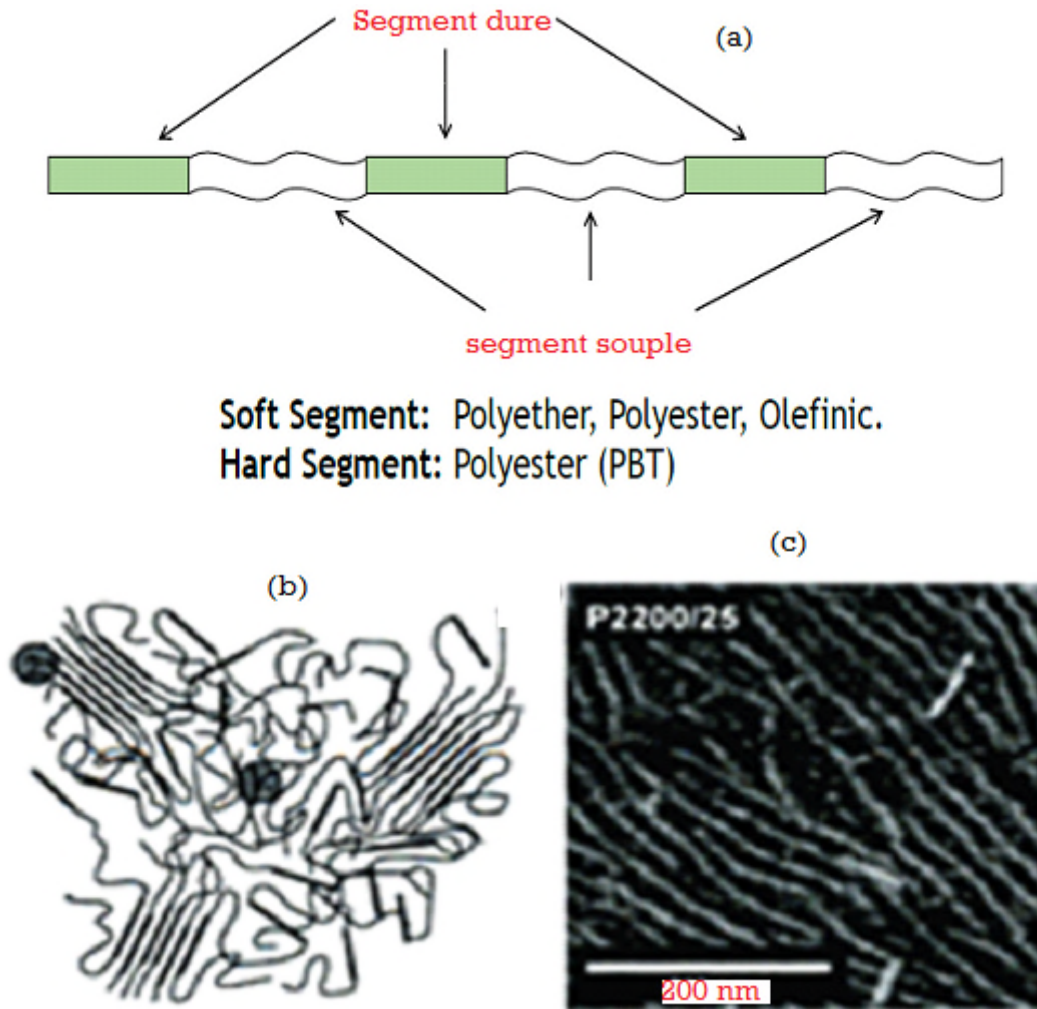


Fig.IV.1: a) phase dure (PBT), b) phase moue (PTMO)

Ces Copolyester allient les qualités de résistance et de transformabilité des plastiques techniques aux performances des élastomères thermodurcissables, ce qui se traduit par une mise-en-œuvre améliorée et une productivité renforcée. En tant que thermoplastiques, ils ne nécessitent pas de vulcanisation pour optimiser leurs propriétés, ce qui permet souvent des économies substantielles dans le coût des pièces. Par rapport aux autres élastomères, les matériaux à base de polyester offrent la performance la plus reproductible sur toute la plage des températures de service, car leurs propriétés varient peu de la très basse à la très haute température. La gamme Arnitel TPE-E comporte trois types, chacun sur la base d'une chimie

spécifique: «E», «P» et «U». Les types E et P sont des formulations polyéther ester plus traditionnelles, tandis que les grades U sont basés sur une technologie polyester-ester unique, qui permet d'étendre la plage de températures classiques des élastomères thermoplastiques.

Ce matériau nous a été fourni par la société DSM, sous forme de plaques moulées par injection, de dimension (120 x 120 x 2 mm<sup>3</sup>), représentée sur la figure IV-2b. Cette société (DSM), est un groupe fortement intégré opérant à l'échelle mondiale dans les produits des sciences de la vie, les matériaux de haute performance, les polymères et les produits chimiques industriels. Les spécifications physiques et mécaniques du matériau sont regroupées dans le tableau IV.1 ci-dessous.

**Tableau IV.1** Spécifications techniques et physiques PBT/PTMO.

<i>Caractéristiques</i>	<i>Valeurs</i>	<i>Références</i>
<b>Propriétés physiques</b>		
Densité	11.5 kg/m <sup>3</sup>	ISO 1183
Vitesse d'écoulement / volume	46 cm <sup>3</sup> /10 (min)	ISO 1133
Absorption d'eau	0.7%	ISO 62
Absorption d'humidité	0.3	ISO 62
Taux de cristallinité ( $X_c$ ) <sup>(a)</sup>	20%	
Température de fusion ( $T_m$ ) <sup>(a)</sup>	189 (°C)	
Température de cristallisation ( $T_c$ ) <sup>(a)</sup>	151 (°C)	
masse moléculaire moyenne en nombre ( $M_n$ ) des segments mous	1000 g/mol	
<b>Propriétés mécaniques</b>		
Dureté	75A – 74D	<i>www. Arnitel.com</i>
Module de traction <sup>(b)</sup>	85 Mpa	
Limite élastique à 10 <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> <sup>(b)</sup>	10 Mpa	
(a) : Déterminer expérimentalement par DSC,		
(b) : par essai mécanique		

## IV.2.2 Techniques d'analyses thermiques

### IV.2.2.1 Analyse calorimétrique différentielle (DSC) « Échantillons non vieillés » :

La calorimétrie différentielle à balayage par compensation de puissance est une méthode dynamique de mesure de dégagement de chaleur (phénomène exothermique) ou d'absorption

de chaleur (phénomène endothermique), elle permet de mesurer les transitions thermiques des polymères, y compris la température de transition vitreuse ( $T_g$ ), la température de fusion et de cristallisation. Le mélange d'élastomère a été caractérisé par l'analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC), l'appareil utilisé est de type «Pyris Diamond», présenté sur la figure IV.3. La calorimétrie différentielle à balayage a été réalisée suivant un protocole d'essai illustré sur la figure IV.4.

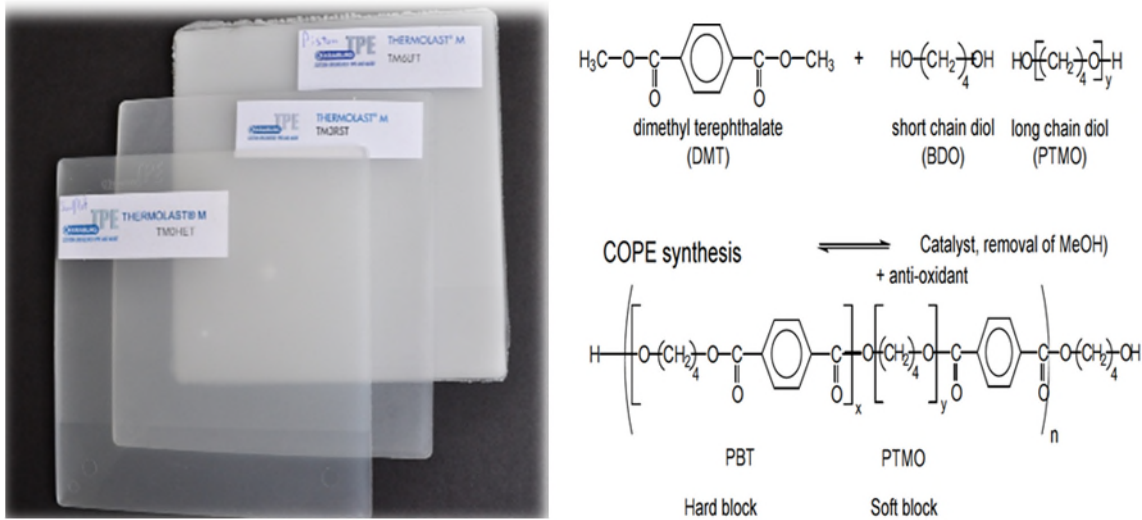


Figure IV.2 : a) structure chimique du PBT/PTMO, b) plaque fournie par la société « DSM ».

Le protocole de l'analyse DSC consiste à maintenir l'échantillon pendant 1 min à la température  $-40^{\circ}\text{C}$  suivit par un premier chauffage entre  $-40^{\circ}\text{C}$  à  $220^{\circ}\text{C}$  à une vitesse de chauffe  $20^{\circ}\text{C}/\text{min}$ , et cela dans le but d'effacer l'histoire thermomécanique de l'échantillon. L'échantillon a été refroidi immédiatement entre  $220^{\circ}\text{C}$  et  $-40^{\circ}\text{C}$  à  $20^{\circ}\text{C}/\text{min}$ , suivi par un maintien pendant 1 min à  $-40^{\circ}\text{C}$ . Le deuxième chauffage est effectué entre  $-40^{\circ}\text{C}$  et  $220^{\circ}\text{C}$  à  $20^{\circ}\text{C}/\text{min}$ , la masse des échantillons utilisés est comprise entre 6 et 10 mg.



Figure IV.3: Pyris Diamond l'équipement utilisé pour l'essai DSC.



$$X_c \% = \left( \frac{\Delta H_m}{\Delta H_m^0} \right) * 100 \quad \text{IV-1}$$

Dans "Eq. (1)", les chaleurs de fusion et de cristallisation sont exprimées en J / g, estimées à partir d'une second fusion. Le terme  $\Delta H_m^0$  est une valeur de référence qui représente la chaleur de fusion du PBT = 145.5 J / g à 100%. [137].

Tableau .IV-2: propriétés thermiques « DSC » du (PBT/PTMO)

	$T_f^{(a)}$ (°C)	$T_c^{(a)}$ (°C)	$\Delta H_f$ (j/g)	$\Delta H_c$ (j/g)	$X_c$ (%)
<b>PBT/PTMO</b> <sup>b</sup>	193	160	33.73	46.55	23
<b>PBT</b>	223.18	176	45.72	52.66	31

(a): 2<sup>ème</sup> chauffage.  
 (b): Échantillon non vieilli.

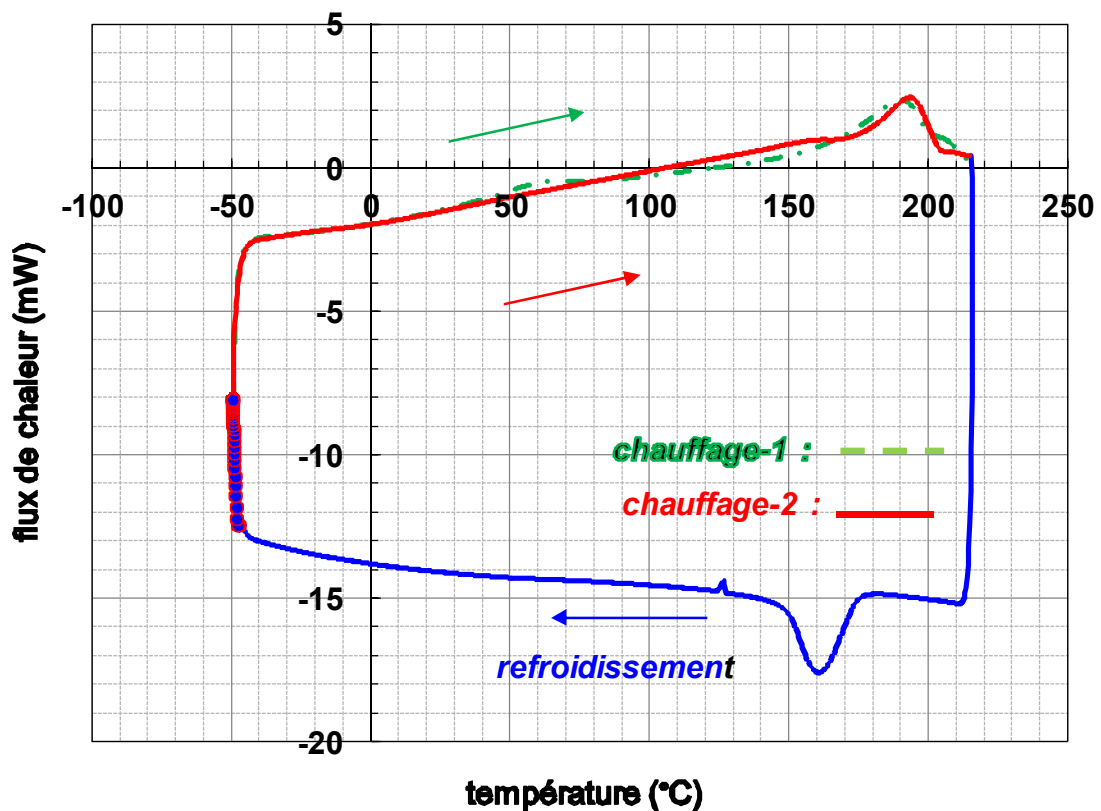


Figure IV- 4 : Protocole d'essai de l'analyse calorimétrie différentielle à balayage par compensation de puissance (DSC)

#### IV.2.2.2 Analyse calorimétrique différentielle (DSC) « échantillons vieillis »

Les essais de vieillissement accéléré ont pour but d'évaluer la résistance relative à la détérioration dans le temps. Ainsi, le matériau est soumis à des conditions de vieillissement contrôlé, pendant deux périodes définies, suite à quoi, les caractéristiques appropriées sont mesurées et comparées au matériau non vieilli. Il est convenu d'utiliser les propriétés physiques qui intéressent la mise en service, pour déterminer le degré de détérioration de ce mélange. Les échantillons sont exposés à 50°C, afin de reproduire les effets du vieillissement dans un délai plus court (48h et 168h). Les essais de la calorimétrie différentielle à balayage par compensation de puissance (DSC) ont été effectués suivant le même protocole des échantillons non vieilli. Les résultats obtenus sont résumés dans le tableau IV.3 ci-dessous.

**Tableau IV.3:** Propriétés thermiques déterminées par (DSC) « échantillons (PBT/PTMO) vieillis »

	$T_m^{(a)}$ (°C)	$T_c^{(a)}$ (°C)	$\Delta H_m$ (j/g)	$\Delta H_c$ (j/g)	Xc (%)
<b>PBT/PTMO</b> <sup>(d)</sup> <sub>(48h)</sub>	195	160	25.27	39.76	17
<b>PBT/PTMO</b> <sup>(d)</sup> <sub>(168h)</sub>	193	160	24.71	36.18	17

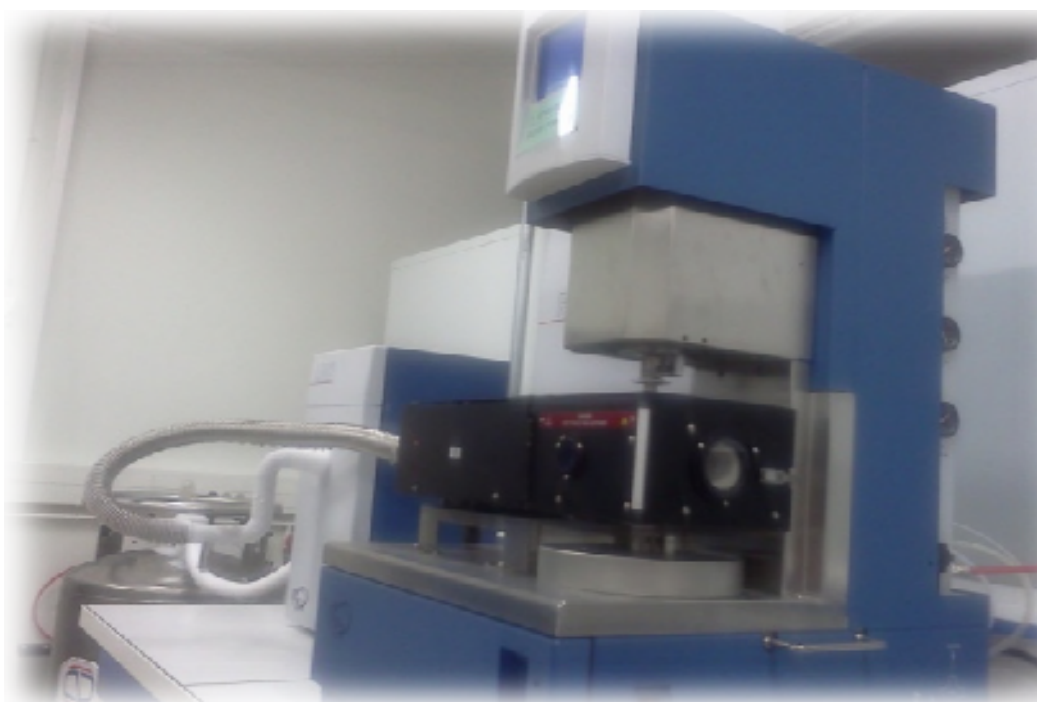
(a): 2<sup>ème</sup> chauffage.  
(d): Échantillon vieilli.

#### IV.2.2.3 Analyse mécanique dynamique (DMA)

Dans la structure des polymères, certains mouvements moléculaires sont de faibles amplitudes, et les temps de relaxation et de retardement liés à ces mouvements sont très courts. De ce fait, ces mouvements ne peuvent pas être étudiés par les essais classiques de fluage et de relaxation ; en raison de l'inévitable d'inertie lors de la mise en œuvre de ces essais. Les mesures dynamiques permettent de résoudre ce problème dans des conditions de grande fiabilité expérimentales, car elles sont conçues de telle sorte qu'elles élargissent l'échelle des temps d'observation. En dernier lieu, nous remarquerons que les mesures dynamiques peuvent se classer parmi les tests non destructifs, puisqu'elles sont effectuées dans le domaine de la déformation réversible.

L'analyse mécanique dynamique (DMA) nous a permis de déterminer les propriétés suivantes: ( $E'$ ) le Module de conservation en élongation, partie d'énergie accumulée dans l'échantillon sous forme élastique donc récupérable, ( $E''$ ) module de perte correspondant à l'énergie dissipée dans le matériau par frottements internes; ceux-ci résultant de la viscosité du milieu et le facteur d'amortissement  $\tan(\delta)$ .

Le test DMA a été réalisé sur un appareil **TARSA3**, représenté sur la figure IV.5, avec les conditions d'utilisations suivantes, un intervalle de température varié entre  $-100^{\circ}\text{C}$  et  $70^{\circ}\text{C}$ , avec une vitesse de chauffe de  $3^{\circ}\text{C} / \text{min}$ , à la fréquence de 1Hz. Ce test est régi par la norme NF EN ISO 6721. Les dimensions de l'échantillon utilisé sont (15 mm de la longueur utile et 6 mm de largeur). Cet instrument scientifique est destiné à l'étude et à la caractérisation des propriétés mécaniques des matériaux polymères à faible sollicitation, son principe consiste à appliquer une excitation mécanique imposant une sollicitation de type déformation cyclique à l'échantillon pour mesurer la réponse en contrainte en fonction de la température dans le domaine de la viscoélasticité linéaire.



*Figure IV- 5 : le TA RSA3, équipement utilisé pour la DMA.*

### **IV.3 Essais mécaniques**

#### **IV.3.1 Préparation et géométrie des éprouvettes en « PBT/PTMO »**

Afin de déterminer le comportement mécanique du mélange d'élastomère, des tests de traction uni-axiale ont été effectués sur des éprouvettes plates entaillées avec un rayon de courbure  $R=20$  mm. En effet, cette entaille réalisée sur les échantillons a permis de créer une concentration de contrainte dans la partie utile. Les éprouvettes plates ont été prélevées à partir de plaques en PBT/PTMO moulées par injection, avec les dimensions  $125 \times 125 \times 2$  mm, à

l'aide d'une matrice en métal et une presse manuelle nous avons préparé toutes les éprouvettes illustrées à la figure IV- 6 ci-dessous.

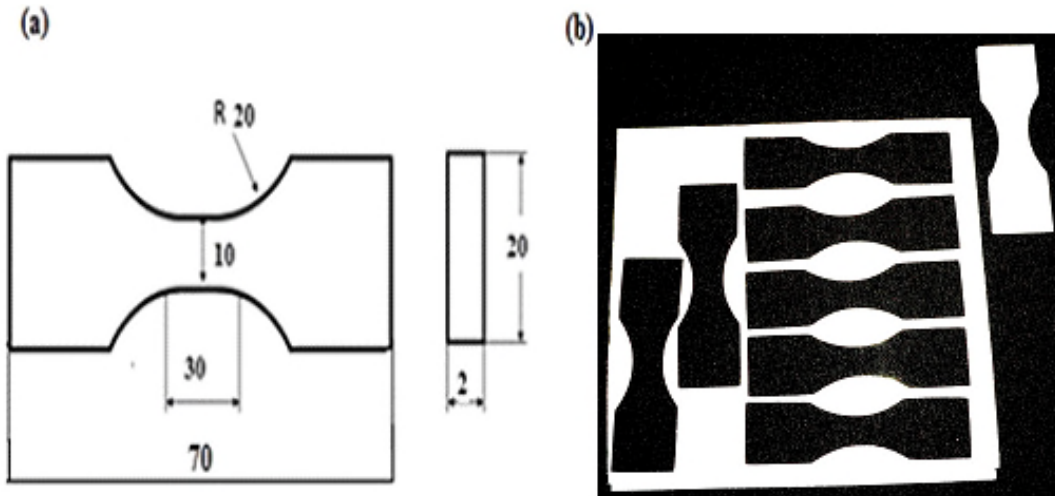


Figure IV-6 : Géométrie des éprouvettes du PBT/PTMO

### IV.3.2 Essai de traction uni axiale

Les essais de traction ont été effectués au LMPM de Lille sur une machine hydraulique « INSTRON 5867 » fonctionnant à vitesse de traverse constante. Pour la détermination de la loi de comportement mécanique du PBT/PTMO, nous avons utilisé la technique de la vidéo traction « l'ombroscopie », qui donne accès au comportement intrinsèque des matériaux ductiles en temps réel et à température ambiante (G'Sell et al., 1992) [138]. Ce test de traction permet aussi de mesurer et d'identifier les propriétés mécaniques telles que le module d'Young, la limite élastique en grandes déformations et la variation volumique.

#### IV.3.2.1 Principe de la technique d'Ombroscopie

Le principe de la technique d'Ombroscopie est de mesurer les déplacements suivant une hypothèse de déformation homogène et isochore. A l'aide de son système d'analyse d'image, on détermine avec précision le changement de la largeur minimale dans le sens de l'entaille et les changements orientés selon la direction transversale voir la figure IV-7. Pour les éprouvettes plates (en contrainte plane), la déformation  $\varepsilon_{yy}$  et la contrainte vraie axiale locale  $\sigma_{yy}$  sont données par les équations (IV-2).

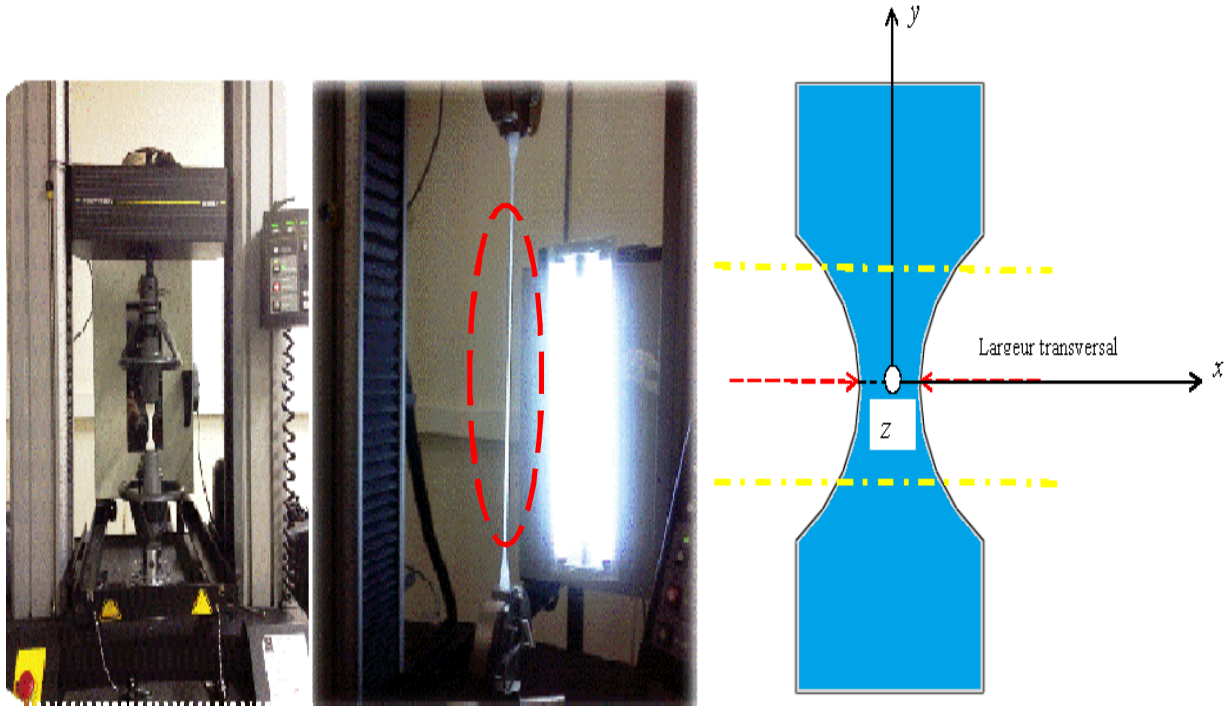


Figure IV-7 Schéma de mesures d'Ombroscopie.

$$\begin{cases} \varepsilon_{yy} = \ln \left( \frac{L}{L_0} \right) \\ \sigma_{yy} = \frac{F * Exp(\varepsilon_{zz})}{S_0} \end{cases} \quad (IV.2)$$

#### IV.3.2.2 Essai de traction uni-axiale à vitesse de déformation variable

Des essais de traction unidirectionnelle ont été effectués à vitesses de déformation variable ( $10^{-1}$ ,  $10^{-2}$  et  $10^{-3} s^{-1}$ ), à la température ambiante. Dans le but de minimiser l'erreur sur les essais mécaniques de traction, à chaque vitesse de déformation nous avons réalisés trois tests d'essai de traction.

À partir de l'enregistrement du déplacement de la traverse et de la variation de la charge  $F$  durant l'essai, on peut parvenir à l'aide du pilote relié à la machine directement aux courbes charge / déplacement. Pour obtenir les grandeurs vraies (contraintes vraies, déformation vraie), on suppose que le mélange PBT/PTMO est incompressible et isotrope (l'isotropie a été vérifiée et discutée dans la partie résultats et discussion), la déformation est supposée homogène.

Les contraintes vraies et les déformations vraies sont calculées à partir de la définition de **Hill [139]**, définies par les relations suivantes:

$$\varepsilon_v = \ln\left(1 + \frac{\Delta l}{l_0}\right) \quad \text{IV.3}$$

$$\sigma_v = \sigma_n \left(1 + \frac{\Delta l}{l_0}\right) \quad \text{IV.4}$$

#### IV.4 Résultats expérimentaux

Dans cette partie, on présente les résultats des essais mécaniques et thermomécaniques obtenus sur le PBT/PTMO. Notre objectif est de caractériser le mélange d'élastomère, en tant que, mélange composé de deux matériaux de nature chimique et physique différentes, non seulement pour voir l'influence de la phase amorphe ajoutée dans le thermoplastique PBT mais aussi pour avoir le maximum d'informations sur les propriétés thermomécaniques de ce mélange de polymère qui est nouveau en Afrique du Nord. Il s'agit en premier lieu de déterminer les propriétés physiques à savoir, la température vitreuse ( $T_g$ ), la température de fusion ( $T_f$ ) et de cristallisation ( $T_c$ ), l'enthalpie de fusion et de cristallisation ainsi que le taux de cristallinité.

L'influence de la température sur les grandeurs caractéristiques telles que le module d'amortissement, le module de perte et la viscoélasticité a été déterminée par l'analyse dynamique mécanique (DMA) et enfin, nous avons réalisé des essais de caractérisation mécanique pour déterminer la variation volumique ainsi que les propriétés mécaniques requises pour ce mélange tel que le module de Young et le coefficient de Poisson.

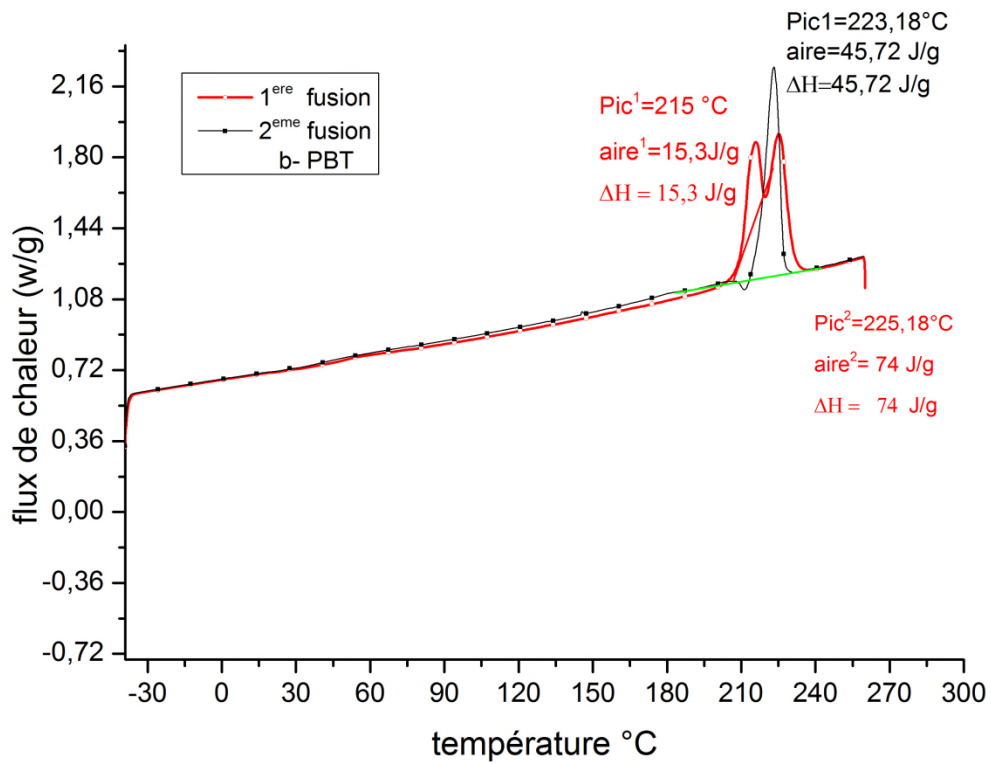
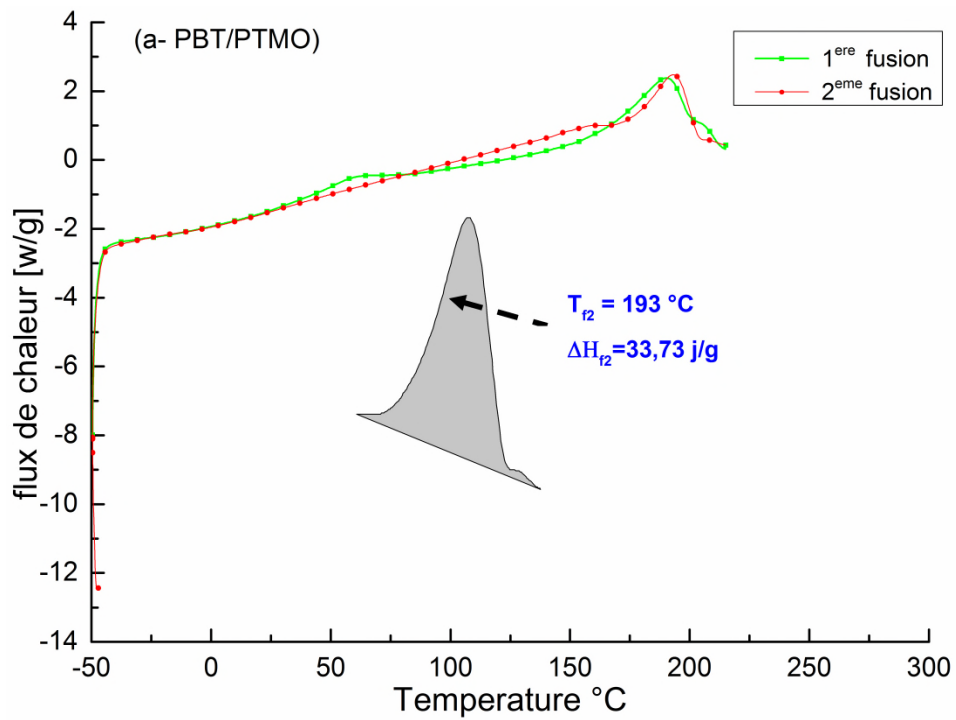
##### IV.4.1 Essai DSC « Echantillons non vieillis »

L'une des propriétés les plus importantes de l'élastomère thermoplastique (TPE) est la partie cristalline. Il s'agit du taux global de la composante cristalline par rapport à la composante amorphe (Szymczyk et al., 2008) [140]. Le mélange d'élastomère (PBT / PTMO) est principalement composé d'un poly oxyde de Tetraméthylène PTMO et de poly téréphtalate de butylène PBT en tant que segments flexibles et rigides. Il a été trouvé dans de nombreux

systèmes semi-cristallins que la combinaison des deux phases (amorphe et cristalline) affecte la structure cristalline et le taux de cristallisation (Archondouli et Kalfoglou 2001, Saleesung, Saeoui et Sirisinha 2010) [141,142]. L'analyse DSC a été employée sur les deux matériaux le mélange d'élastomère et le téréphtalate de butylène PBT, afin de vérifier toute modification et/ou évolution de la structure cristalline et déterminé le degré de cristallinité de la matrice. La figure IV-8 a, b, c, d présente les thermogrammes de l'analyse DSC des deux matériaux polymères, poly téréphtalate de butylène PBT et le mélange d'élastomère PBT/PTMO. L'ensemble des paramètres thermiques déterminés à savoir, la température de fusion ( $T_f$ ), la température de cristallisation ( $T_c$ ), l'enthalpie de fusion ( $\Delta H_f$ ), l'enthalpie de cristallisation ( $\Delta H_c$ ), et le degré de cristallinité sont regroupés dans le tableau IV-2.

En examinons les thermogrammes de la figure IV.8 et en comparaison avec les résultats des tests d'analyse du téréphtalate de butylène PBT brut, nous avons remarqué que l'addition de l'élastomère poly oxyde de Tetramethylene PTMO au poly téréphtalate de butylène PBT a fait baisser graduellement la température de fusion, de cristallisation ainsi que l'enthalpie de fusion et de cristallisation. Même résultats ont été trouvés par (Archondouli et Kalfoglou 2001; Chen et al. 2013) [141,143]. Une telle chute de température montre que ce mélange ne se cristallise pas dans les mêmes conditions que le poly téréphtalate de butylène PBT. Cela revient peut être à la formation de nouveaux cristaux à des températures de fusion et de cristallisation différente. Donc l'analyse DSC montre que le poly téréphtalate de butylène PBT n'est pas tout à fait homogène à l'état initial (présence de deux pics à la première fusion et un unique pic à la deuxième fusion) à l'inverse le mélange PBT/PTMO a marqué une homogénéité au cours des tests d'analyse DSC.

En général, pour tous les polymères semi-cristallins, la diminution du point de fusion peut être due à l'effet diluant du composant amorphe. En outre, la baisse de la valeur de la température de fusion  $T_f$  s'accompagne d'une diminution constante de la valeur de l'enthalpie  $\Delta H$ . En outre, le degré total de cristallinité du mélange diminue rapidement avec l'augmentation de la composante caoutchouteuse (Archondouli et Kalfoglou 2001) [141]. Vu la difficulté de déterminer la température de transition vitreuse  $T_g$  par l'analyse DSC du mélange d'élastomère PBT/PTMO, elle a été obtenue par l'analyse DMA.





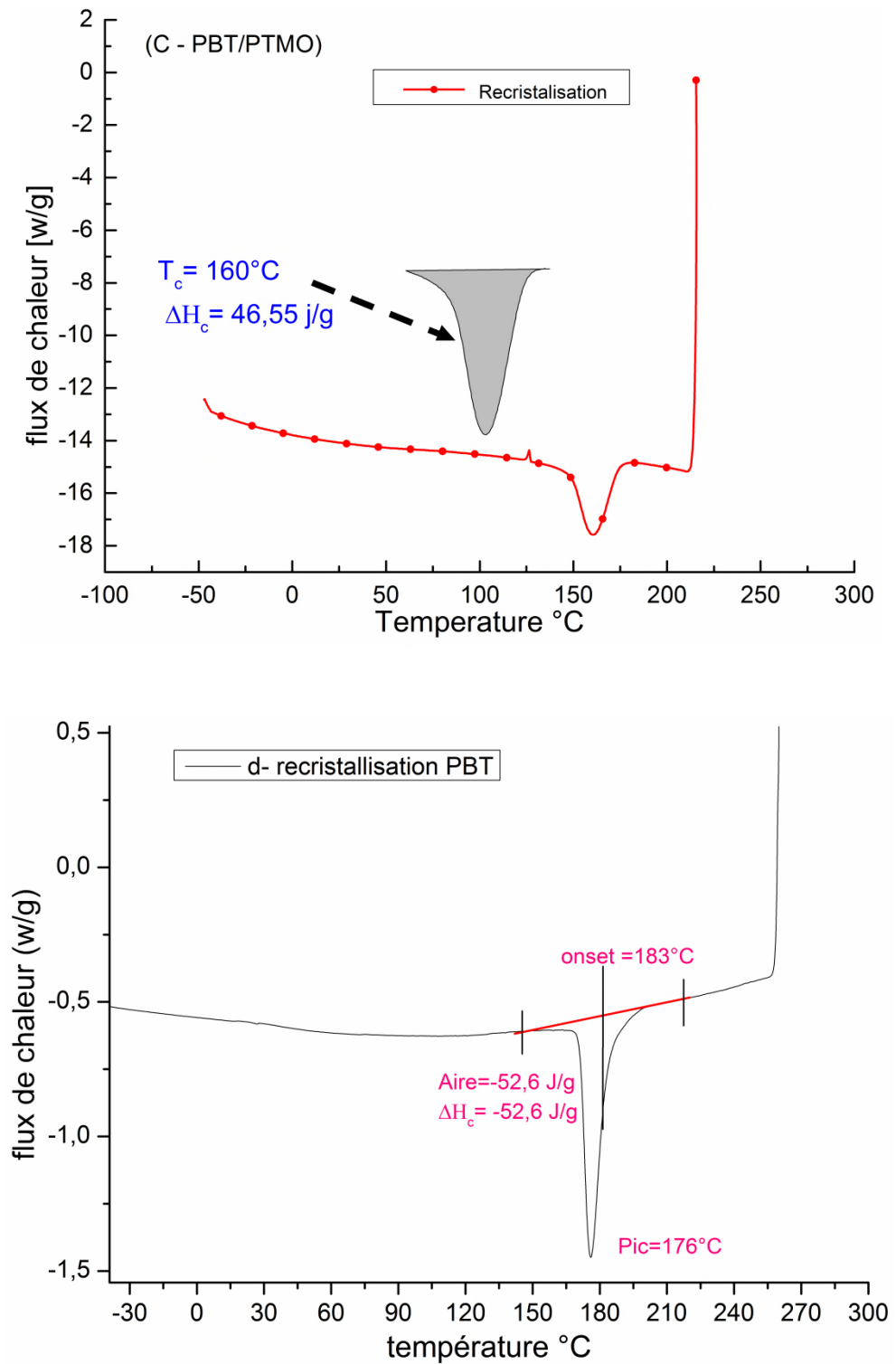
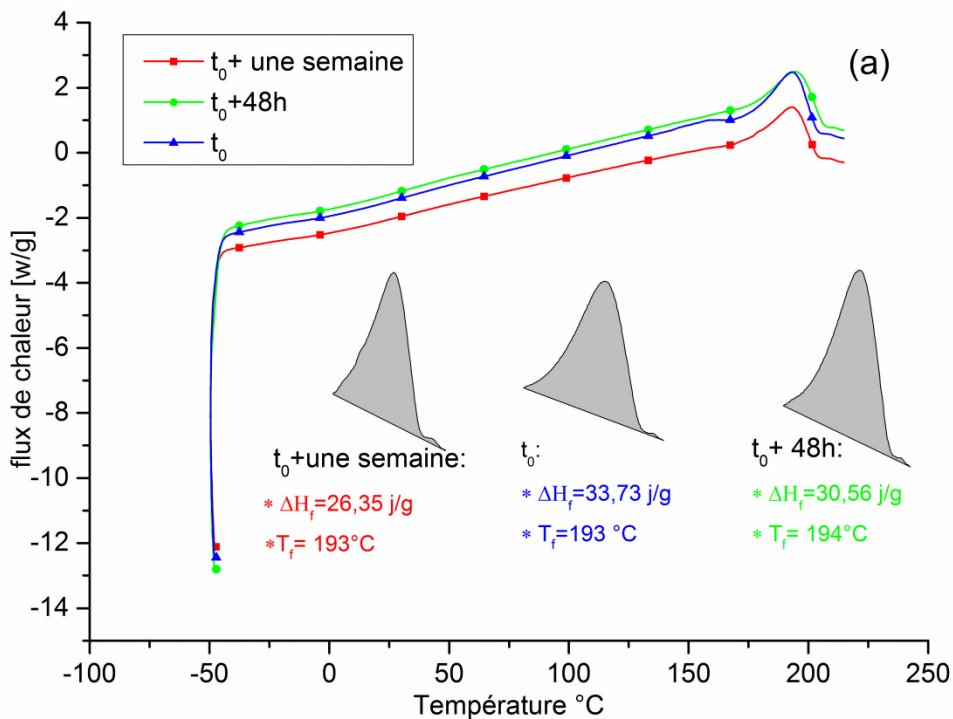


Figure IV-8 : Courbes DSC, (a) fusion du PBT/PTMO, b) fusion du PBT, c) recristallisation du PBT/PTMO et d) recristallisation du PBT à 20°C/min.

#### IV.4.2 Essai DSC « Echantillons vieillis »

Le vieillissement physique est un phénomène omniprésent dans les matériaux vitreux en raison du fait qu'ils ne sont généralement pas équilibrés. En fait, le vieillissement est une continuation graduelle de la vitrification autour de  $T_g$ . Par conséquent, cela affectera également toutes les propriétés liées aux résultats de température en cas de changements drastiques à la  $T_g$  les paramètres physiques obtenus du mélange (PBT/PTMO) à savoir, la température de cristallisation ( $T_c$ ), la température de fusion ( $T_f$ ), l'enthalpie de fusion ( $\Delta H_f$ ), l'enthalpie de cristallisation ( $\Delta H_c$ ) et le degré de cristallisation ( $X_c$ ), pour les deux périodes de vieillissement (48h et 168 h à  $50^\circ\text{C}$ ) sont présentés dans le tableau IV.2, ci-dessus. Même si les températures de fusion  $T_f$  pendant et après le vieillissement par rapport au matériau non-vieilli sont pratiquement constantes, une diminution est enregistrée pour les enthalpies de fusion et de cristallisation à ( $T_0 + 48\text{h}$ ), figure IV-9a., cela peut être attribué à la diminution de la cristallinité. De même, en examinant la figure IV- 9b, on remarque les changements suivants: une légère variation de la symétrie des pics endothermique et exothermique, en plus de la disparition de la transition secondaire endothermique et une petite variation de la température de cristallisation pour les deux périodes de vieillissement : (48h, 168h).



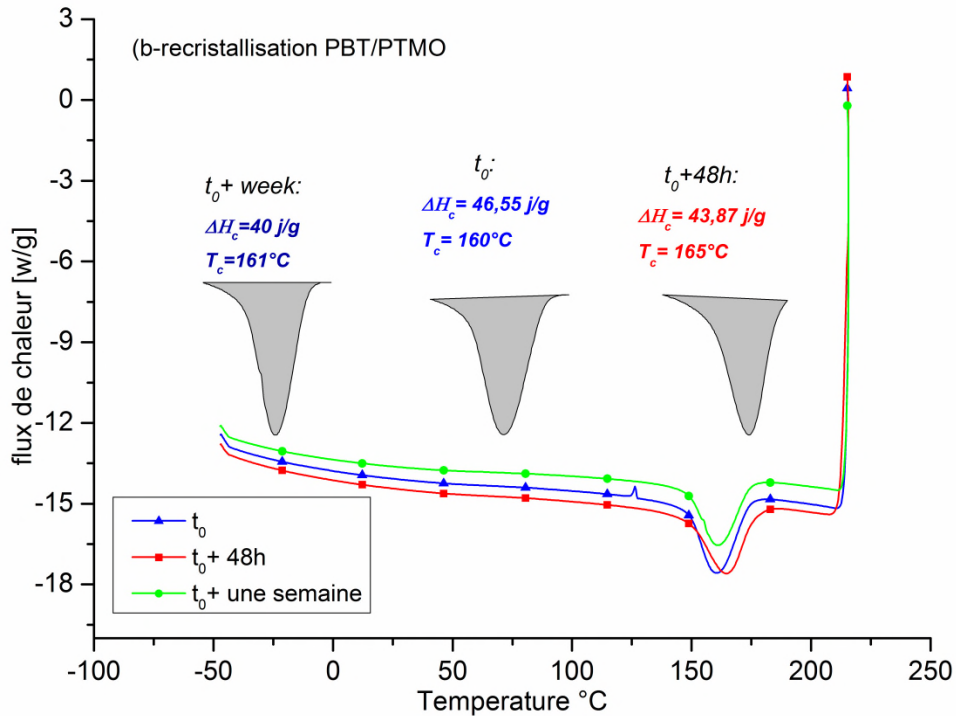


Figure IV-9 : Courbes DSC du PBT/PTMO vieilli: (a) chauffage, (b) recristallisation, à 20°C/min.

#### IV.4.3 Étude DMA

Les résultats des essais mécaniques dynamiques du PBT/PTMO sont présentés respectivement sur les figures IV 10,11 et 12. Le module de stockage ( $E'$ ), le module de perte ( $E''$ ) et le facteur d'amortissement ( $\tan\delta$ ) sont tracés comme une fonction de l'évolution de la température. La température de transition ( $T_g$ ) est exprimée comme la résultante d'une baisse du module de stockage ( $E'$ ) et la valeur maximale montrée par l'allure du module ( $\tan\delta$ ) et le module de perte ( $E''$ ). Le module de stockage ( $E'$ ) montré par la figure IV-10, représente la capacité d'un matériau à stocker de l'énergie mécanique d'entrée. Le module de stockage ( $E'$ ) diminue en fonction de la température en trois zones. Dans la première zone, le matériau à l'état vitreux (basses températures) présente une grande valeur du module (mouvement à l'échelle atomique, changement de conformation locale « élasticité enthalpique »).

Dans la deuxième zone, le matériau est à l'état viscoélastique, la transition de l'état vitreux à l'état caoutchouteux ( $E'$ ) diminue rapidement jusqu'à une valeur constante. Les changements de conformation globaux sont de plus en plus difficiles, avec un maximum de dissipation.

La troisième zone présente un désenchevêtrement moins probables mais pas totalement impossible. Les chaînes apparaissent reliées, les enchevêtrements, cristaux et autres liaisons fortes jouent le rôle de point de réticulation. Les sollicitations mécaniques allonge les chaînes macromoléculaires, la déformation est majoritairement réversible mais avec une part faible d'écoulement (élasticité entropique).

Dans la quatrième zone, les changements de conformation des chaînes sont très rapides, elles s'enchevêtrent et se désenchevêtrent quasi instantanément au regard de la sollicitation. Les chaînes dans cette région apparaissent indépendantes car la sollicitation mécanique le fait s'écouler. Dans cette phase la déformation est irréversible.

Le Poly butylène téréphtalate (PBT) présente une plus grande valeur du module de conservation ( $E'$ ) [141], comparé au mélange élastomère PBT / PTMO, car il s'agit d'un polymère semi-cristallin avec un taux élevé de cristaux qui offre une rigidité relativement élevée et lorsque le PTMO est incorporé dans la matrice du Poly butylène téréphtalate (PBT), les cristaux seront dilués par la phase de caoutchouc relativement doux conduisant à une chute de ( $E'$ ) [142]

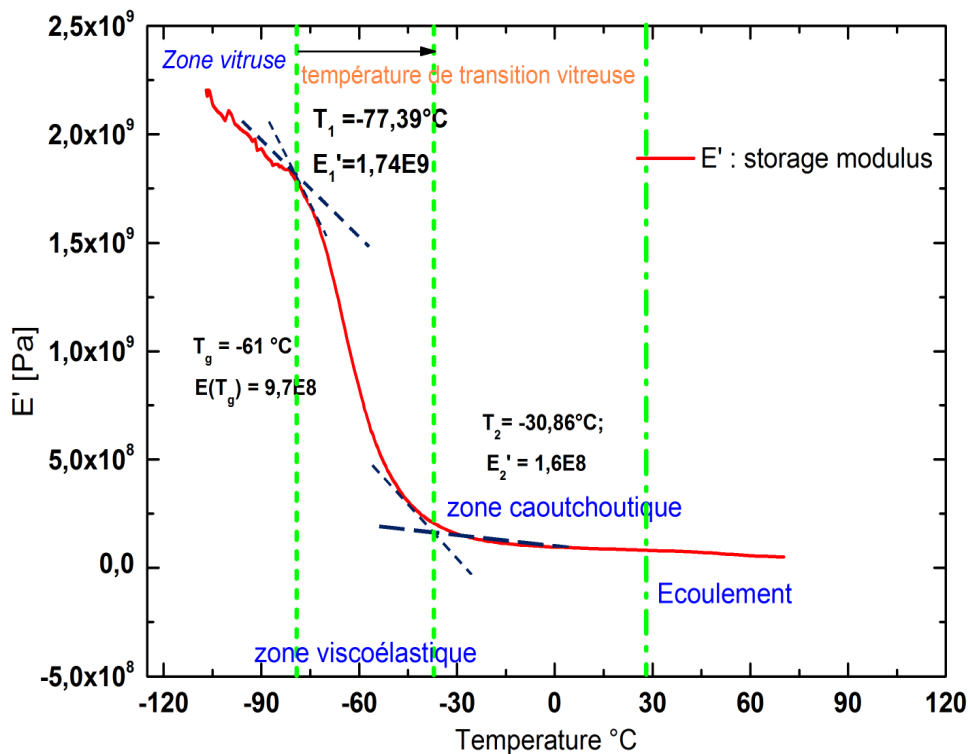
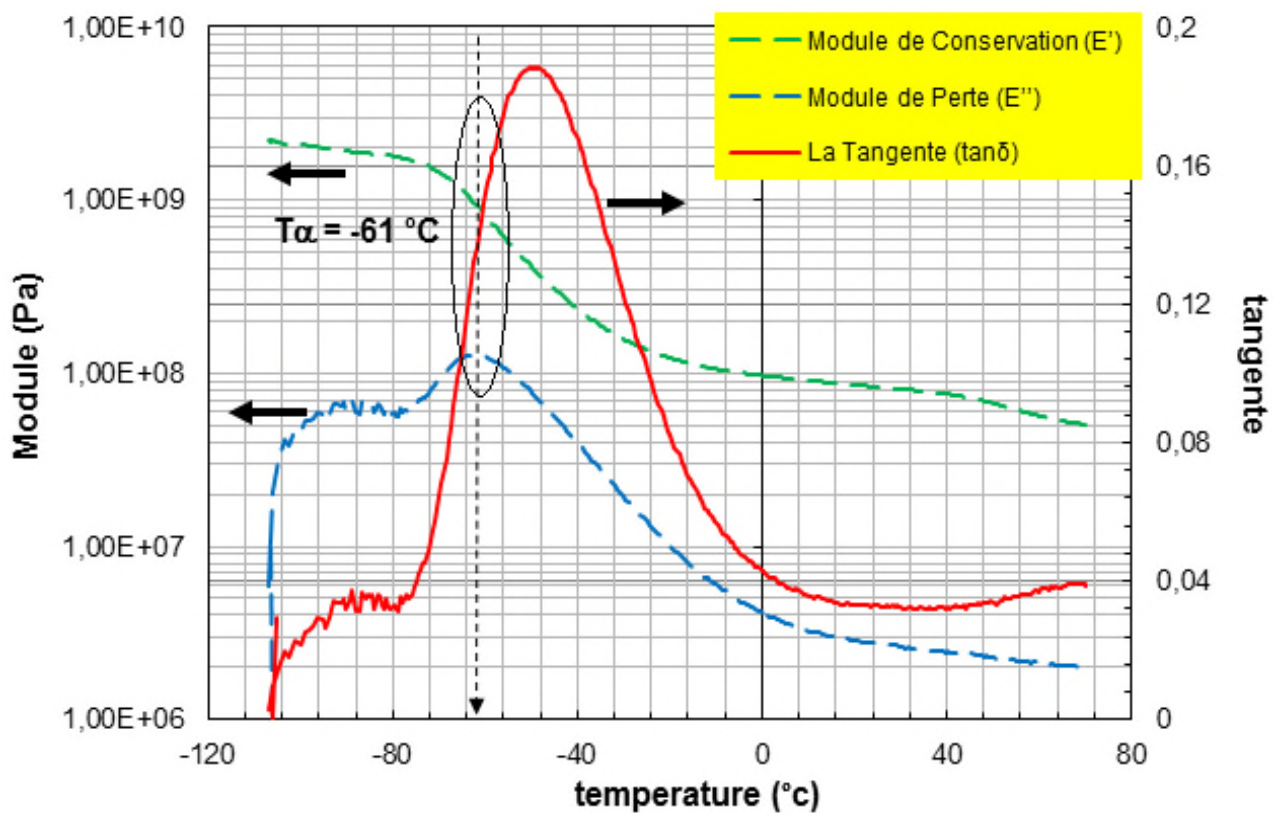


Figure IV.10 : Variation du module de stockage ( $E'$ ) en fonction de la température du (PBT / PTMO), à 1 Hz.

La figure IV-11 montre la variation du module de perte ( $E''$ ) en fonction de l'évolution de la température. Ce module exprime la composante visqueuse et la capacité du matériau à dissiper de l'énergie. Le pic de relaxation dynamique de ce matériau a été enregistré à  $-61^\circ\text{C}$ , il représente également la température de transition vitreuse du matériau  $T_g$ , qui se détermine par l'intersection des trois courbes suivantes ( $E'$ ,  $E''$  et  $T_g(\delta)$ ). Le mélange PBT/PTMO présente un module de stockage plus élevé, cela peut être attribué à l'isolement des chaînes macromoléculaires intercalées (phase amorphe d'élastomère) qui empêche les mouvements segmentaires des chaînes polymériques.



**Figure IV.11 :** Variation du module de perte ( $E''$ ) superposé au module de conservation et  $T_g(\delta)$  en fonction de la température du (PBT / PTMO), à 1 Hz.

Le facteur d'amortissement  $\text{tg}(\delta)$ , représente le rapport du module de perte et le module de stockage. La figure IV-12, présente l'évolution du facteur d'amortissement  $\text{tg}(\delta)$  du mélange PBT/PTMO en fonction de la température. La capacité du mélange à dissiper de l'énergie dépend donc de la température d'utilisation. D'après l'allure de la courbe, on constate une dissymétrie situé entre  $-80^\circ\text{C}$  et  $-20^\circ\text{C}$ . On a également une augmentation progressive du facteur  $\text{Tg}(\delta)$ , devenant de plus en plus important lorsqu'en s'approche de la zone de

température de transition vitreuse  $T_g$ . Une fois le point maximum d'amortissement est franchi, on observe une diminution brutale de la valeur d'amortissement avec la température, en moins de  $10^\circ\text{C}$ , le mélange perd toute sa capacité à dissiper de l'énergie. En effet, en dessous de la température de transition vitreuse, le matériau est à l'état vitreux et la mobilité des chaînes diminue. En comparant le facteur d'amortissement du mélange PBT/PTMO à celui du Poly butylène téréphtalate (PBT), on observe un pic d'amortissement beaucoup moins élevé et sa largeur à mi-hauteur est plus grande [143]. Cela pourrait être relié à l'influence de l'incorporation du taux de PTMO sur la dynamique de la matrice du Poly butylène téréphtalate (PBT). On peut noter surtout, que la température de transition vitreuse reste inchangée, mais le matériau dissipe donc plus d'énergie. Le point maximal de la courbe correspondant à la température de transition vitreuse ( $T_g$ ), se trouve à  $-61^\circ\text{C}$ , alors que la température de transition vitreuse du PTMO est à  $-75^\circ\text{C}$  [144]. Cette variation enregistrée est due également à l'incorporation des segments durs du PBT qui possède une température de fusion différente.

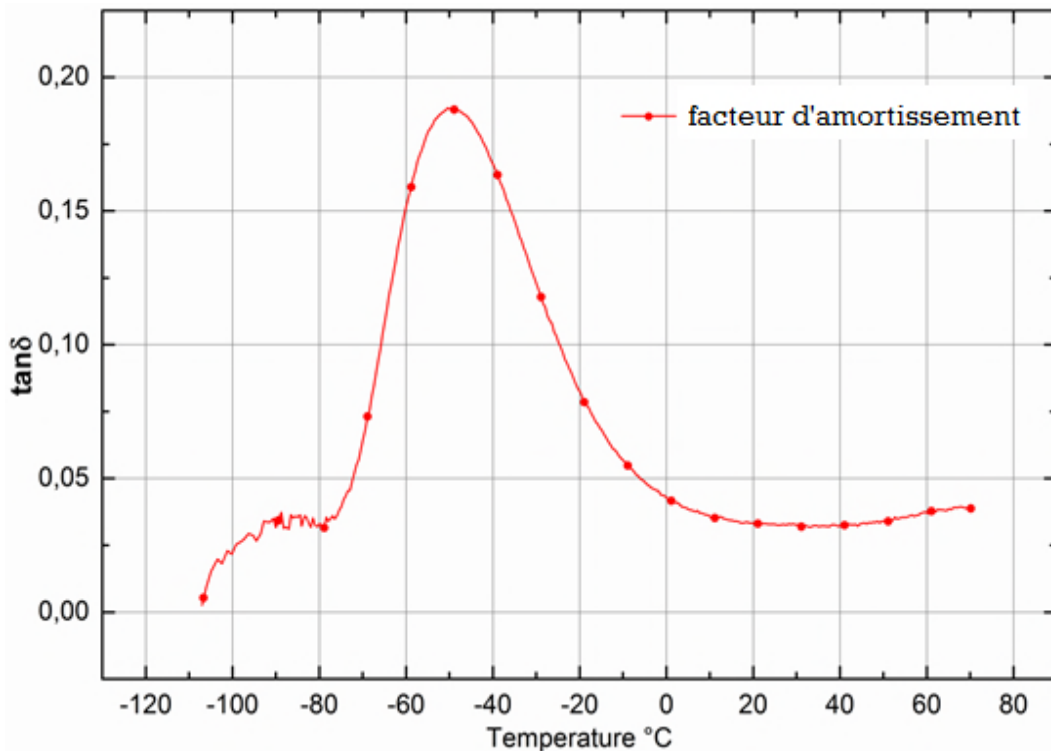


Figure IV-12 : Variation du facteur d'amortissement  $\text{tg}(\delta)$  en fonction de la température du (PBT / PTMO), à 1 Hz

## IV.4.4 Essai de Traction

### IV.4.4.1 Effet de la vitesse de déformation

L'évolution de l'allure des courbes contrainte-déformation vraie avec l'élévation de la vitesse de déformation est montrée sur la figure IV.13. Ces résultats résument l'effet de la vitesse de déformation sur le comportement du mélange d'élastomère PBT / PTMO. A l'examen des courbes de la figure IV.13a, il convient de relever les points suivant.

- la réponse enregistrée est similaire aux autres polymères observés dans la littérature (plus de caoutchoucs).
- Le mélange a présenté un seuil de plasticité marqué à toutes les vitesses, suivi d'une diminution de la contrainte jusqu'au seuil d'écoulement plastique, cette diminution n'est le résultat d'un mécanisme localisé de striction, mais d'un mécanisme de déformation macroscopiquement homogène dans l'éprouvette.
- Le pic délimitant le seuil de plasticité devient de plus en plus étroit dans le domaine de la déformation à mesure que la vitesse de déformation augmente.
- pour toutes les vitesses de déformation, un durcissement est observé après le seuil plastique, avec une limite élastique typique et une nature ductile suivie d'un durcissement non linéaire.
- Une forte non-linéarité, avec une influence apparente de la vitesse de déformation.
- un phénomène de blanchissement est observé sur les éprouvettes lors de l'allongement, cela est expliqué par une diffusion accrue, généralement attribué à la nucléation et à la croissance des micro-vides dans la phase amorphe.

## IV.4.5 Caractérisation du comportement plastique

### IV.4.5.1 Seuil de plasticité

On peut observer la dépendance du comportement mécanique à la vitesse de sollicitation. Plus la vitesse de déformation est grand, plus le seuil plastique augmente en contrainte et diminue en déformation. Le plateau plastique initial est de plus en plus long, la striction apparaisse plus tôt et le stade de durcissement se trouvant retardé.

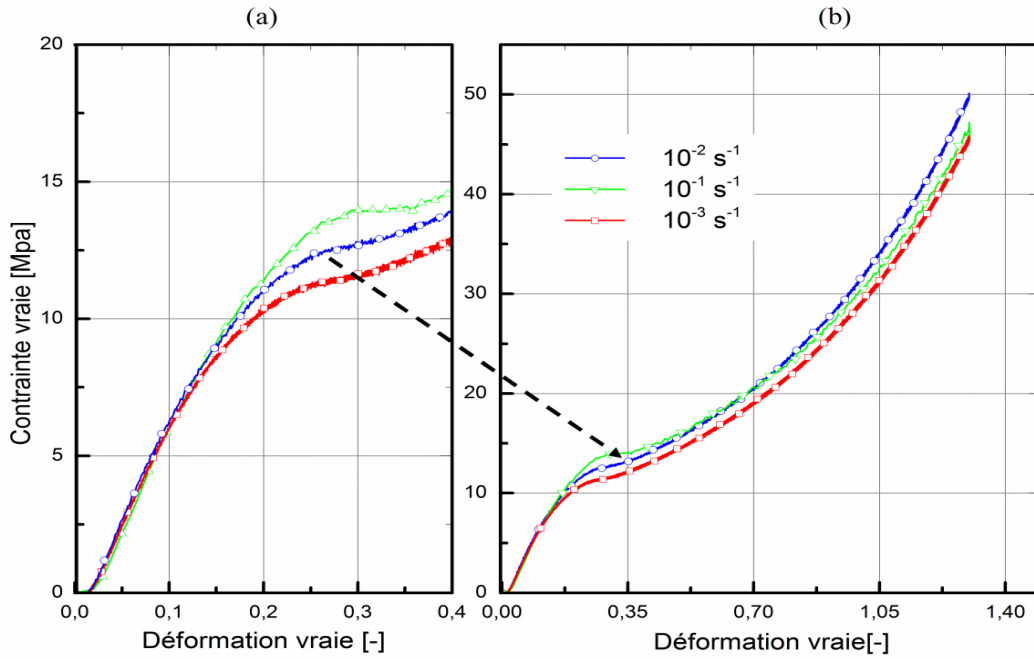


Figure IV-13 : a) courbes caractéristiques de la contraintes en fonction de la déformation longitudinale du (PBT / PTMO).

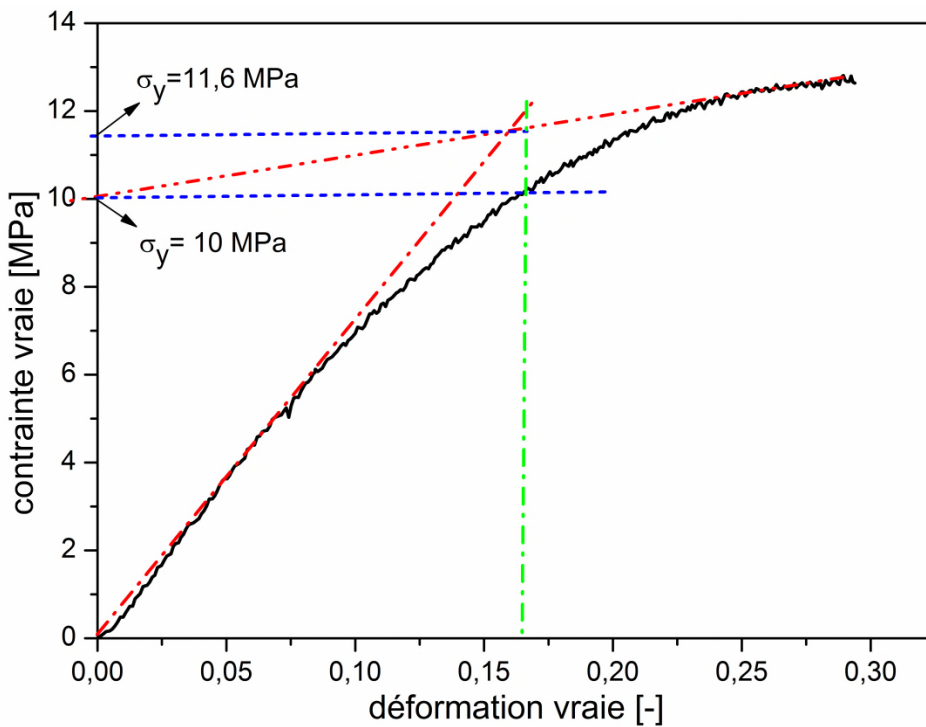


Figure IV.14 détermination du seuil plastique.

La contrainte seuil a été déterminée graphiquement entre le domaine parfaitement élastique et le début de la plasticité de la courbe contrainte vraie-déformation vraie figure IV.14. Afin d'assurer la reproductibilité des tests au moins trois éprouvettes de chaque vitesse a été testés. La figure IV-15 montre une bonne reproductibilité des résultats.



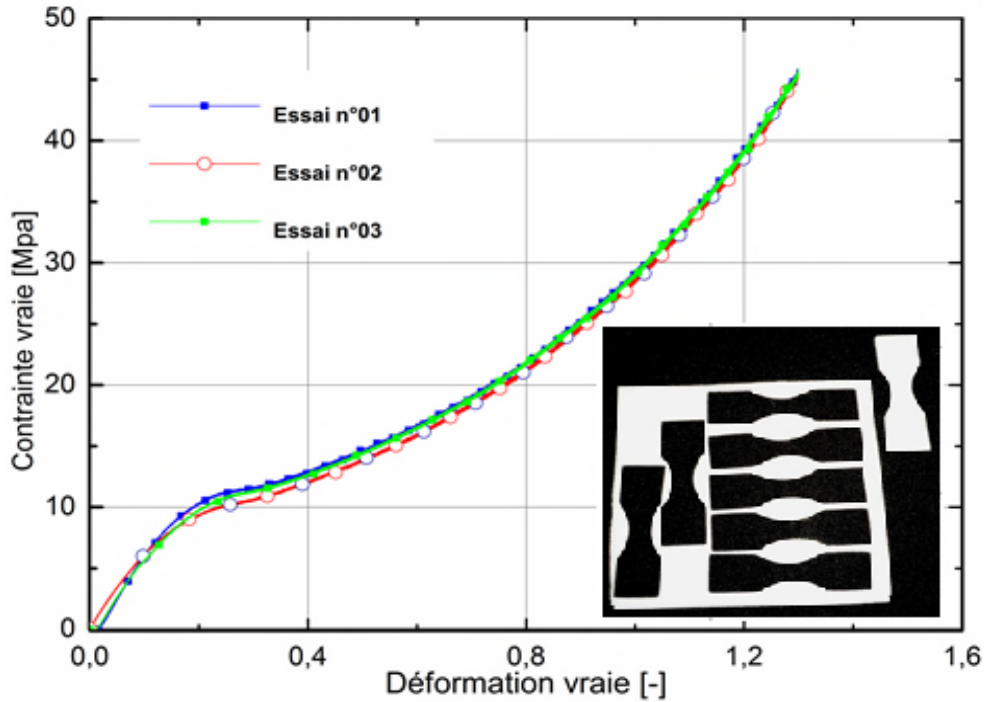


Figure IV-15 : Reproductibilité des courbes contrainte / déformation vraie du PBT/PTMO à  $10^{-3} s^{-1}$

#### IV.4.6 Caractérisation de la déformation volumique

La mesure de la déformation volumique est effectuée avant l'apparition de la striction dans la partie utile de l'éprouvette. La déformation volumique est définie comme suit:

$$\varepsilon_v = \varepsilon_1 + \varepsilon_2 + \varepsilon_3 \quad (\text{IV-5})$$

Où,  $\varepsilon_k$  ( $k = 1, 2, 3$ ), représente les déformations réelles dans les trois directions. Dans notre cas, la charge a été appliquée le long de la direction Y. Une hypothèse approximative ( $\varepsilon_1 \approx \varepsilon_2$ ) est prise, a été initialement adoptée par [145,146]; d'où l'équation (IV-5) devient:

$$\varepsilon_v = \varepsilon_3 + 2\varepsilon_1 \quad (\text{IV-6})$$

L'égalité entre ( $\varepsilon_1$ ) et ( $\varepsilon_2$ ) n'est valable que lorsque les deux conditions suivantes sont remplies. La première, lorsque le matériau est isotrope autour de l'axe de chargement (Y). Et la seconde lorsque la largeur de l'éprouvette n'est pas grande par rapport à l'épaisseur afin de maintenir la déformation plane, ce qui donne une déformation uniforme des échantillons dans l'épaisseur. C.B. Bucknall et D. Clayton [147] ont proposé une relation simple pour évaluer l'évolution d'une déformation volumique des matériaux polymères sous une contrainte uni-

axiale. Selon leurs résultats, la variation du volume peut être divisée en trois parties distinctes. Ce modèle a été adapté en grandes déformations en remplacement du volume de la déformation nominale par le volume de la déformation de Hanky, représenté par les relations suivantes :

$$\varepsilon_v = \ln \left( \frac{V}{V_0} \right) \quad (\text{IV-7})$$

$$\varepsilon_v = \ln \left( \frac{V}{V_0} \right)_{el} + \ln \left( \frac{V}{V_0} \right)_{Cav} + \ln \left( \frac{V}{V_0} \right)_{cis} \quad (\text{IV-8})$$

D'où :

$$\varepsilon_v = (\varepsilon_v)_{el} + (\varepsilon_v)_{cav} + \varepsilon_{cis} \quad (\text{IV-9})$$

Le premier terme représente la composante élastique qui est liée à l'effet du rapport du coefficient de Poisson, représenté par l'équation suivante :

$$\varepsilon_v = (1 - 2\nu) \varepsilon_{3el} \quad (\text{IV-10})$$

$(\varepsilon_{3el})$ , composante élastique de la déformation vraie. Le deuxième terme  $(\varepsilon_v)_{cav}$  mesure la contribution de la cavitation au changement volumique macroscopique. Le terme  $(\varepsilon_{sh})$  correspond à la déformation par cisaillement.

L'influence de la vitesse de déformation sur le comportement du PBT/PTMO est également marquée par l'évolution de la déformation volumique, figure IV-16. Le phénomène de cavitation augmente avec l'augmentation de la vitesse de déformation. Il convient de mentionner que l'état de contrainte multiaxiale dans la section transversale médiane favorise une contrainte hydrostatique positive élevée qui provoque l'augmentation de l'endommagement causé par la cavitation suivi par une réduction du taux de durcissement.

En outre, il ressort clairement de cette courbe que les effets non iso-choriques sont très importants pour ce matériau. La déformation volumique est due à deux phénomènes, le compactage et le processus de dilatation après l'expansion élastique initiale. Nous avons également observé que, lorsque la vitesse de déformation augmente, la déformation volumique augmente également. On peut noter les valeurs maximales de la déformation volumique en fonction des vitesses de déformations mentionnées ci-dessus ( $\varepsilon_v = 41\%$ ,  $34\%$  et  $33\%$ ).

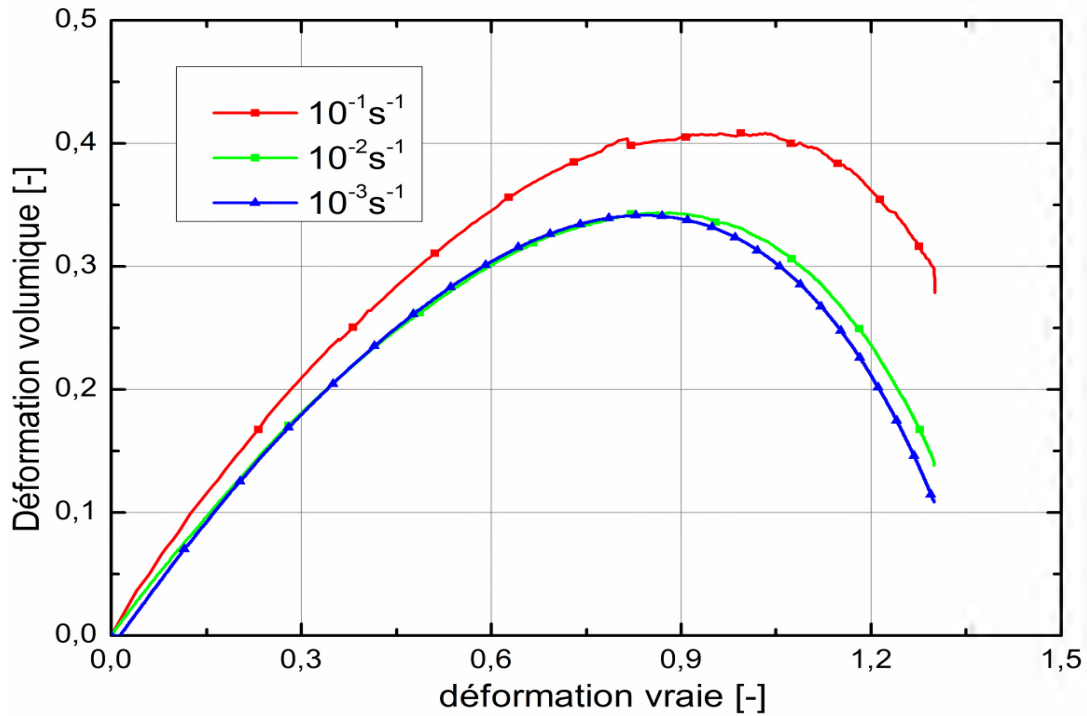


Figure IV.16 : Variation du volume total du PBT / PTMO en traction uni axiale.

On observe d'après la figure IV.17 et en raison de l'effet du rapport de Poisson, une déformation volumique élastique relativement faible, compte tenu de la très grande déformation atteinte ( $\varepsilon_{v,el}$ ) ; la valeur de son amplitude est inférieure à 1% ; alors que la déformation volumique plastique par cavitation ( $\varepsilon_{v,cav}$ ), caractérisant le début de l'endommagement cinétique représente une partie importante de la déformation totale. Nous avons remarqué aussi que la déformation volumique par cavitation maximale est suivie par une chute brutale de la courbe, pouvant être causée par la formation d'une phase amorphe de segments riches en polyéther. Enfin, la déformation causée par la contrainte de cisaillement ( $\varepsilon_{sh}$ ) est une estimation de la déformation totale sans changement de volume. Elle représente la plus grande partie de la déformation totale c.-à-d., un endommagement sans cavitation (sans évolution de volume).

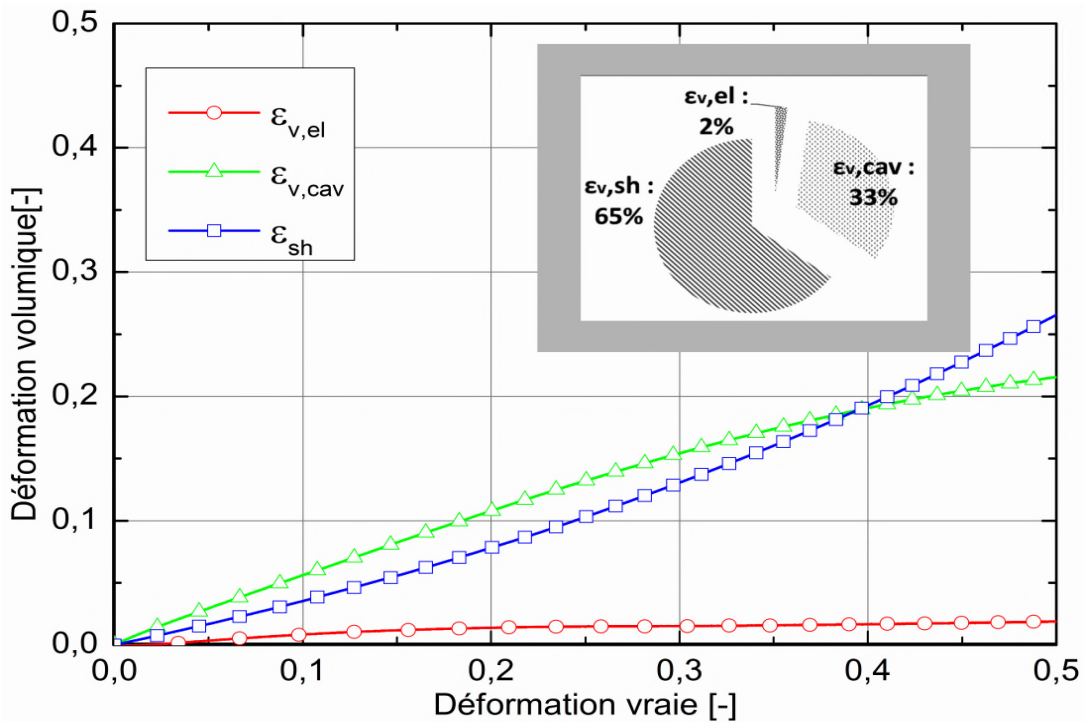


Figure IV-17: Composantes volumiques du PBT/PTMO à  $10^{-3}s^{-1}$ .

#### IV.5 Conclusion

Le comportement mécanique en une grande déformation plastique d'un mélange élastomère constitué de segments durs avec une longueur uniforme appelée Poly butylène téréphtalate (PBT) de la famille des polyesters et une phase d'élastomère (PTMO) a été expérimentalement étudié dans ce chapitre. Les propriétés physiques ont été analysées en utilisant des techniques d'analyse DSC et DMA afin de quantifier les caractéristiques telles que le point de fusion, la température de cristallisation et la température de transition vitreuse. La déformation volumique a été déterminée par une décomposition de la déformation totale en une déformation élasticité linéaire et des évolutions volumiques des cavités couplées à la déformation par cisaillement. On a constaté que le matériau a subi des changements volumiques significatifs lors de la déformation favorisée par des valeurs élevées du taux de déformation.

Les résultats expérimentaux obtenus dans cette partie pourraient être utiles comme une base de données expérimentale, dans le but d'introduire dans le futur un modèle solide et constitutif. Les résultats obtenus montrent clairement la dépendance de ce matériau au taux de

déformation. Dans ce mélange caoutchouteux, il a été démontré qualitativement que les processus d'endommagement qui ont contribué à l'apparition de la déformation plastique sont la déformation volumique élastique et la déformation volumique par cavitation. L'étude comparative réalisée de l'ensemble des résultats de l'analyse physique entre Poly butylène téréphtalate (PBT) et le mélange d'élastomère PBT/PTMO, nous a permis de tirer les observations suivantes :

- Les températures de fusion pendant le vieillissement par rapport à l'échantillon non-vieilli étaient pratiquement constantes, à l'exception d'une diminution de la chaleur de fusion et de la cristallisation ( $\Delta H$ ) à (48h), peut être causée par la diminution de la cristallinité. On note également une petite variation de la température de cristallisation pour les deux périodes de vieillissement 48h; 168h.
- L'analyse par DSC à montrer que le Poly butylène téréphtalate PBT marque une inhomogénéité à l'état initial que nous avons pu remarquer par la présence de deux pics en première fusion, alors que le mélange d'élastomère PBT/PTMO est plutôt homogène est stable thermiquement.
- La limite d'élasticité et la déformation volumique pour le mélange ont diminué avec l'augmentation de la vitesse de déformation.
- Une bonne connexion entre la phase amorphe et les segments durs a rendu la rupture difficile dans les domaines macromoléculaires.
- En particulier pour un essai de traction à  $10^{-3} \text{ s}^{-1}$ , la courbe contrainte-déformation présente des caractéristiques de traction typiques aux polymères amorphes et la contrainte à la traction est beaucoup plus faible que celle du Poly butylène téréphtalate PBT. Par conséquent, aux mêmes conditions de chargement, le mélange PBT/PTMO subit un taux d'étirage élevé par rapport au Poly butylène téréphtalate, (PBT).

## *Chapitre V*

# Modélisation de l'endommagement du mélange d'élastomère « PBT-PTMO »

*Cette partie de thèse a été consacré à la modélisation par le code Abaqus de l'effet de la fraction volumique initiale du vide, de l'exposant de durcissement et de la triaxialité des contraintes sur la contrainte équivalente de coalescence du mélange d'élastomère PBT/PTMO. Un élément de volume représentatif « VER » est proposé, contenant une cavité sphérique au centre. Cette coalescence est une localisation diffusée à l'échelle microscopique, son début provoque un accroissement rapide de la cavité jusqu'à la rupture finale.*

## V.1 Introduction

De nombreuses recherches expérimentales ont prouvé que le processus d'endommagement des matériaux ductiles est régi par la nucléation, la croissance et la coalescence des microcavités. Certains travaux théoriques, à l'exemple des références [149-151], montrent que pour une microcavité isolée dans un corps infini, le taux de croissance dépend de la triaxialité des champs de contraintes à l'infini. Le problème de la rupture ductile à échelle microstructurale des matériaux est qu'elle se produit par nucléation, croissance et coalescence. La coalescence est un phénomène de rupture complexe dû à divers facteurs tels que le comportement inélastique particulier, les grandes déformations et l'effet mémoire.

Le mécanisme de cavitation influe fortement sur le comportement mécanique des polymères. Il permet notamment le développement de l'écoulement plastique par croissance de cavité ; il participe aussi à l'augmentation de la dissipation en sommet de fissure. De plus, la cavitation provoque une variation de volume induite par la présence de cavités en modifiant la répartition des contraintes. La modélisation de la croissance des cavités des matériaux solides ductiles a donné lieu à des méthodes prédictives de détection de la propagation de fissures.

Plusieurs modèles ont été utilisés pour la détermination de la contrainte maximale au sommet de la coalescence de la cavité telle que le modèle de A.L. Gurson et K. Sirugu et [152,153]. Il a été modifié par la suite en introduisant des critères complexes et significatifs pour prédire la fissure à partir d'essais expérimentaux sur des matériaux non fissurés [154,155]. De nombreux problèmes de rupture ductile des structures non fissurées se produisent à une faible triaxialité des contraintes. Dans ce cas, ces modèles ne prédisent pas de manière fiable la propagation de la fissure à une triaxialité élevée. Afin de reproduire quantitativement des courbes expérimentales, les paramètres du modèle doivent être identifiés par rapport aux données expérimentales prises dans des conditions de triaxialité à contrainte élevée [156]. La détermination de la contrainte maximale est limitée par des conditions non expérimentales comme la triaxialité et le durcissement. Les critères utilisés pour déterminer la coalescence des cavités sont limités à une plage restreinte de conditions qui ne sont pas facilement mesurées expérimentalement. En particulier, la dépendance significative de la triaxialité à la condition de coalescence n'est pas saisie par les modèles actuels.

La coalescence d'une cavité est un mode d'endommagement des matériaux ductiles. Il est la conséquence de la localisation de la déformation plastique à l'échelle microscopique à l'intérieur d'un ligament entre les cavités voisines. La coalescence d'une cavité en traction implique une transition vers un mode de contrainte uni-axiale de l'élément de volume représentatif «VER» [157,158]. Cette coalescence est une localisation diffusée à l'échelle microscopique, son début provoque un accroissement rapide de la cavité jusqu'à la rupture finale. Le point maximum représenté sur la courbe contrainte / déformation équivalente au sens de Von-Mises décrit la localisation de l'écoulement plastique qui peut être attribuée au phénomène de coalescence due à la striction du ligament dans la matrice, qui va aboutir à la formation d'une fissure macroscopique par rupture totale.

L'objectif est d'étudier l'effet de la fraction volumique initiale du vide, de l'exposant de durcissement et de la triaxialité des contraintes sur la contrainte équivalente de coalescence. L'idée est d'analyser un l'élément de volume représentatif «VER» contenant une cavité sphérique au centre de la cellule. Les résultats obtenus sont analysés par la méthodologie des plans d'expériences, citée dans le chapitre VI, en arrivant à développer un modèle mathématique constitutif qui contrôle la contrainte équivalente maximale en fonction de l'interaction des trois paramètres d'entrée.

## V.2 Matériau et technique de calcul

Ce matériau, qui est un mélange d'élastomère PBT/PTMO, est un matériau isotrope, possédant un module de Young  $E = 85$  MPa, un coefficient de Poisson  $\nu = 0.42$  et une limite élastique  $\sigma_0 = 10$  MPa. Le durcissement est décrit par une loi de puissance isotrope, la contrainte d'écoulement plastique est donnée par la relation suivante:

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\sigma}{\sigma_0} = \left( 1 + \frac{E\varepsilon^p}{\sigma_0} \right)^n \rightarrow \sigma > \sigma_0 \\ \frac{\sigma}{\sigma_0} = \frac{E\varepsilon}{\sigma_0} \rightarrow \sigma < \sigma_0 \end{array} \right. \quad (\text{V.1})$$

Suivant l'équation (V-1), une description de l'écoulement plastique de la loi de puissance (monotone) est donnée par la relation suivante :



$$\varepsilon^p = \frac{\sigma_0}{E} \left( \frac{\sigma}{\sigma_0} \right)^n - \frac{\sigma}{E} \quad (\text{V.2})$$

Où  $n$  est l'exposant de durcissement allant de 0 à 1.

### V.3 Technique de calcul de la cellule unitaire

#### V.3.1 Géométrie

On suppose que les vides sont uniformément répartis à l'intérieur de la matrice du matériau de telle sorte que la microstructure puisse être décrite par un ensemble de cellules unitaires, chacune contenant un seul vide. Selon les travaux référencés [159-163], le comportement du matériau poreux est étudié en fonction d'un modèle de cellule unitaire axisymétrique figure.V.1. Dans la mesure où la cellule unitaire est soumise à une déformation axisymétrique, l'analyse de son évolution se fait à l'aide d'un système de coordonnées cylindriques dans un repère orthonormé défini par  $(\underline{e}_\rho, \underline{e}_\theta, \underline{e}_z)$  le long de  $\rho$  (radial),  $\theta$  (ortho radial) et  $z$  (axe axial). Dans la configuration initiale non déformée, la cellule unitaire est un cylindre de diamètre  $2L_{\rho 0}$  et de hauteur  $2L_{z 0}$ . Les vides sont supposés sphéroïdaux initialement avec un rayon  $R_{\rho 0}$  et une demi-longueur  $R_{z 0}$ . La géométrie de la cellule unitaire initiale est complètement caractérisée par la fraction volumique du vide, le rapport d'aspect du vide et le rapport d'aspect de la cellule, avec leurs valeurs initiales,  $f_0$ ,  $W_0$  et  $\lambda_0$ , sont respectivement définies par

$$f_0 = \frac{2}{3} \left( \frac{R_{\rho 0}}{L_{\rho 0}} \right)^2 \left( \frac{R_{z 0}}{L_{z 0}} \right) \quad (\text{V.3})$$

$$W_0 = \left( \frac{R_{z 0}}{R_{\rho 0}} \right) \quad (\text{V.4})$$

$$\lambda_0 = \left( \frac{L_{z 0}}{L_{\rho 0}} \right) \quad (\text{V.5})$$

Les paramètres géométriques finaux de la cellule unitaire en déformation sont désignés par,  $L_\rho$ ,  $L_z$ ,  $R_\rho$  et  $R_z$ , le point A du VER se déplace suivant la relation vectorielle de l'éq ( V-6) représentée sur la figure V.1c:

$$\underline{u}^A = u_\rho^A \underline{e}_\rho^A + u_z^A \underline{e}_z^A \tag{V.6}$$

Dont ( $u_\rho^A$ ), est le déplacement radial,  $u_z^A$  le déplacement axial.

**Reseau cellulaire**

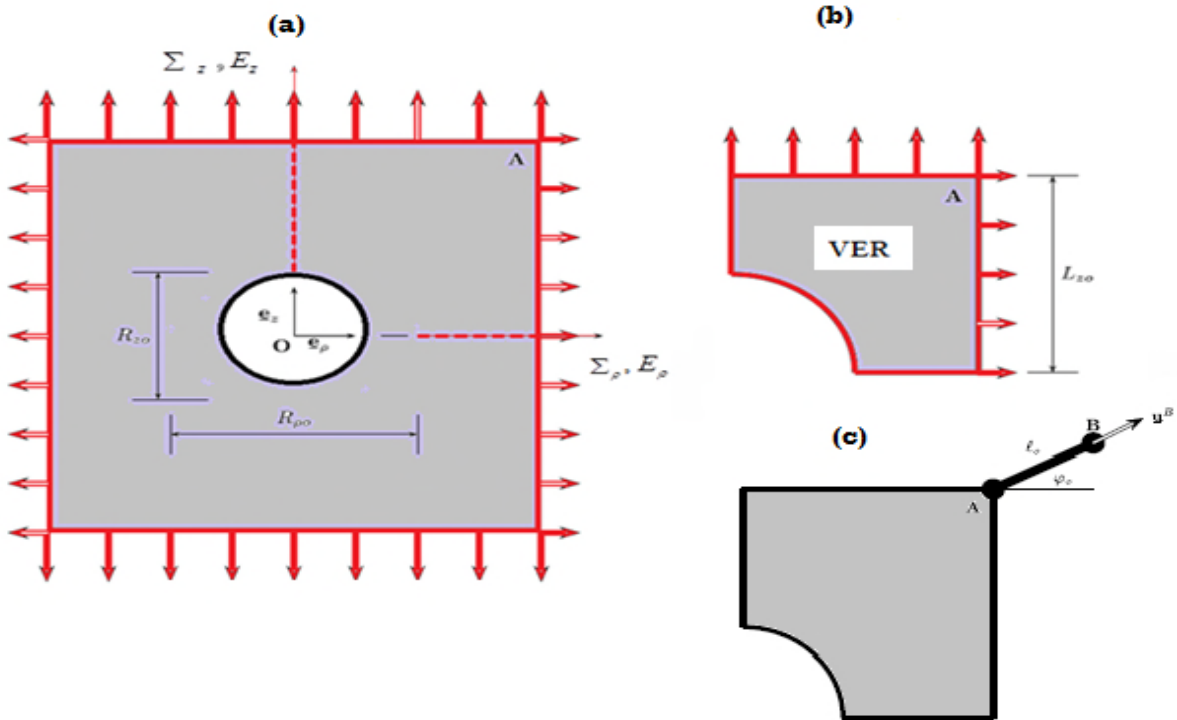
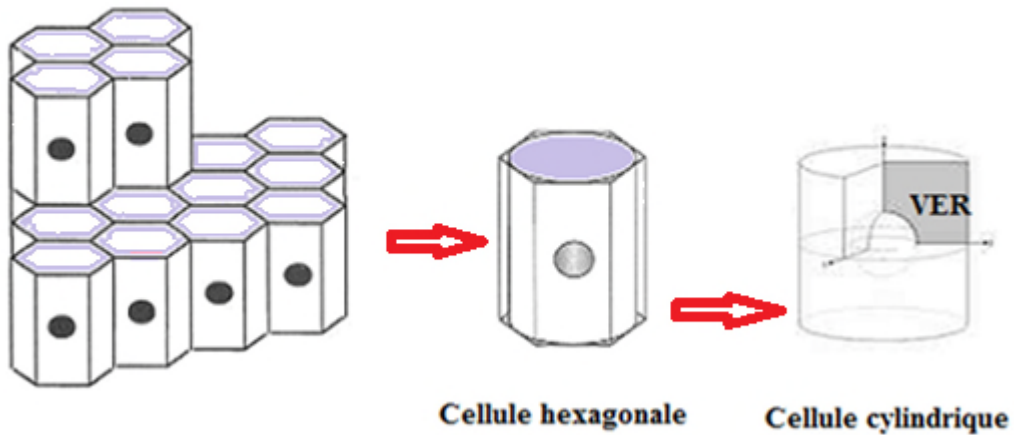


Figure V.1 : Modèle de la de cellules unitaires, a) Cellule unitaire, b) Volume élémentaire homogène VER [151]

### V.3.2 Conditions aux limites axisymétriques

En conséquence de la périodicité du réseau cellulaire, tous les plans extérieurs de la cellule unitaire ne doivent se comporter que comme des plans mobiles rigides suivant les directions des coordonnées pendant le chargement. Les faces à  $\rho = L_{\rho 0}$  et  $z = L_{z 0}$  auront un déplacement uniforme normal et leurs orientations communes seront maintenues. Ces exigences imposent à la cellule unitaire de maintenir la forme d'un cylindre pendant le processus de déformation. Cette caractéristique est atteinte en évaluant la déformation par un allongement homogène imposé ( $u_z^A$ ) du coin **A** (nœud principal) dans la direction axiale avec un contrôle systématique de son déplacement radial homogène,  $u_\rho^A$  par une contrainte multiaxiale.

Le cylindre est ainsi caractérisé par les deux équations linéaires :

$$\begin{cases} L_\rho = L_{\rho 0} + u_\rho^A \\ L_z = L_{z 0} + u_z^A \end{cases} \quad (\text{V-7})$$

En raison de la symétrie du modèle, seule le quart de la cellule unitaire est considéré ( $0 \leq \rho \leq L_{\rho 0}, 0 \leq z \leq L_{z 0}$ ), figure IV.1b.

Les déformations microscopiques et les tenseurs de contrainte de Cauchy de la matrice sont  $\underline{\underline{\varepsilon}}$  et  $\underline{\underline{\sigma}}$ , alors que les déformations macroscopiques et les contraintes sont  $\underline{\underline{E}}$  et  $\underline{\underline{\Sigma}}$ . La déformation globale du modèle cellulaire peut être calculée à partir des déplacements normaux des faces extérieures. Le tenseur  $\underline{\underline{E}}$  est attribué qualitativement par :

$$\underline{\underline{E}} = E_\rho (\underline{e}_\rho \otimes \underline{e}_\rho + \underline{e}_\theta \otimes \underline{e}_\theta) + E_z \underline{e}_z \otimes \underline{e}_z \quad (\text{V-8})$$

Où  $E_\rho$  et  $E_z$  sont respectivement les déformations macroscopiques principales données par :

$$\begin{cases} E_1 = \ln \left( 1 + \frac{u_1^A}{L_{\rho 0}} \right) \\ E_2 = \ln \left( 1 + \frac{u_2^A}{L_{z 0}} \right) \end{cases} \quad (\text{V.9})$$

Dans le but de préciser la déformation plastique globale du modèle cellulaire, nous définissons la déformation équivalente  $E_{eq}$  par :

$$E_{eq} = \frac{2}{3} |E_z - E_\rho| \quad (\text{V.10})$$

Le tenseur de contrainte macroscopique  $\underline{\underline{\Sigma}}$  est donné par la relation suivante :

$$\underline{\underline{E}} = \Sigma_\rho (\underline{e}_\rho \otimes \underline{e}_\rho + \underline{e}_\theta \otimes \underline{e}_\theta) + \Sigma_z \underline{e}_z \otimes \underline{e}_z \quad (\text{V.11})$$

Les contraintes principales  $\Sigma_\rho$  et  $\Sigma_z$  sont calculées à tout instant comme la moyenne des forces de réactions des deux faces de la cellule unitaire par rapport leurs sections :

$$\begin{cases} \Sigma_\rho = \frac{1}{L_z^2} \int_0^{L_z} T_{\rho(\rho=L\rho)} dz \\ \Sigma_z = \frac{2}{L_\rho^2} \int_0^{L_\rho} \rho T_{z(z=L\rho)} d\rho \end{cases} \quad (\text{V.12})$$

D'où,  $\check{T}$  est le vecteur contraint. La contrainte équivalente,  $\Sigma_{eq}$  dans le sens de Von Mises et la contrainte hydrostatique (moyenne)  $\Sigma_h$  résultent des relations suivantes :

$$\begin{cases} \Sigma_h = \frac{1}{3} (2 \Sigma_\rho + \Sigma_z) \\ \Sigma_{eq} = |\Sigma_z - \Sigma_\rho| \end{cases} \quad (\text{V.13})$$

Et la triaxialité de contrainte globale  $\beta$  de l'état de contrainte est définie comme le rapport:

$$\beta = \frac{\sum_h}{\sum_{eq}}$$

(V.14)

Avec :

$$\begin{cases} \beta = \frac{1}{3} \left( \frac{\sum_z + 2\sum_\rho}{|\sum_z - \sum_\rho|} \right) = \frac{1}{3} \left( \frac{1 + 2\alpha}{|1 - \alpha|} \right) \\ \alpha = \frac{\sum_\rho}{\sum_z} \end{cases} \quad (\text{V.15})$$

La fraction volumique de vide final « $f$ » est calculée soit par intégration numérique à partir des points à l'interface matrice/ vide lors de la déformation de la cellule unitaire, ou bien par une relation d'approximation analytique proposée par [164]:

$$f = 1 - \left[ \frac{\Delta V_e}{V} + \frac{V_0}{V} (1 - f_0) \right] \quad (\text{V.16})$$

Avec :

$$\frac{\Delta V_e}{V} = \frac{3(1 - f_0)(1 - \nu)}{E} \sum_h \quad (\text{V.17})$$

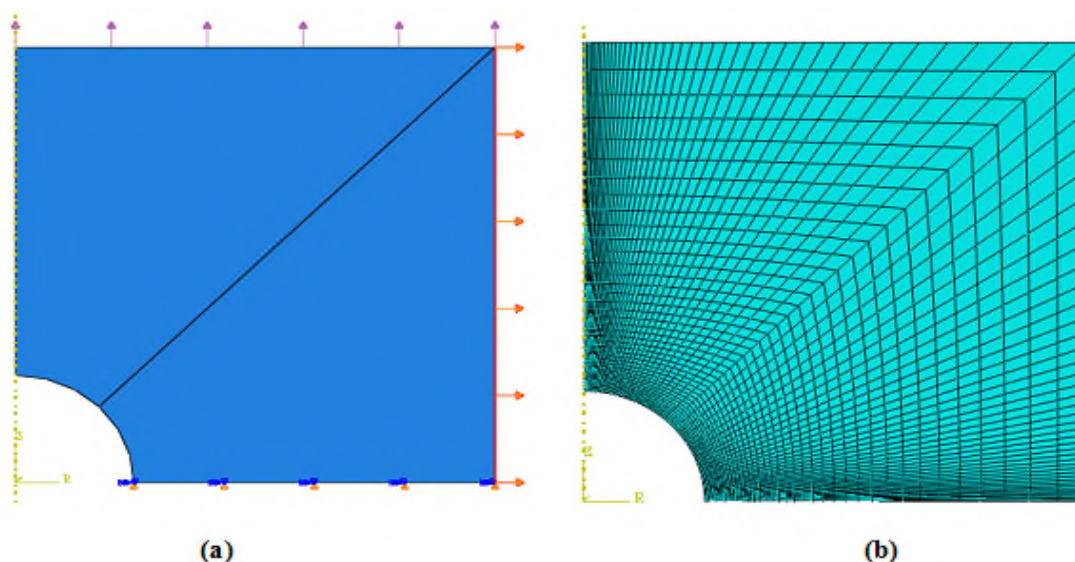
$\Delta V_e$  est une correction approximative du changement volumique dû à l'élastique du VER, causé par la contrainte hydrostatique  $\sum_h$ . Donc, le rapport du vide final et initial est donné par la relation suivante :

$$\frac{V}{V_0} = \frac{L_\rho^2 L_z}{L_{\rho 0}^2 L_{z 0}} = \frac{(L_{\rho 0} + u_\rho^A)^2 (L_{z 0} + u_z^A)}{L_{\rho 0}^2 L_{z 0}} \quad (\text{V.18})$$

Une des difficultés de l'étude numérique en utilisant le modèle de la cellule élémentaire est le maintien de la triaxialité des contraintes  $\beta$  à une valeur constante au cours du chargement. Dans le cas d'un calcul implicite, l'algorithme «**RIKS**» s'avère simple d'emploi dans le code de calcul Abaqus et satisfaire cette condition ( $\beta$  reste constante).

Les chargements axisymétriques de la cellule unitaire sont pour l'ensemble des simulations numériques considérées, d'une part à traction axiale (le long de l'axe des y) dominante ( $\Sigma_z > \Sigma_\rho = \Sigma_x$ ) et, d'autre part, à triaxialité des contraintes  $\beta$  constante.

Les simulations par la méthode des éléments finis ont été réalisées en utilisant le code commercial de calcul ABAQUS 6.13 standard et Explicit [165]. Les éléments utilisés sont des éléments iso paramétriques quadrilatéraux avec une intégration réduite. À titre d'illustration, la Figure V.2a montre une configuration non déformée d'un élément fini typique d'un « VER » avec 3200 Éléments linéaire quadratique de type CAX4H. Le maillage entourant le vide a été raffiné suffisamment afin d'obtenir plus de précision.



**Figure.V.2 :** a) Condition aux limites b) Exemple de Maillages utilisés pour la cellule unitaire (CAX4HA4 Nœud bilinéaire axisymétrique, quadrilatère et hybride).

#### V.4 Résultats numériques et discussion

Ce chapitre traite de l'analyse de la coalescence des vides. Des considérations spécifiques concernant l'effet de certains paramètres ont été proposées pour étudier la croissance des cavités initialement sphériques. Afin d'évaluer l'analyse transitoire proposée pour la simulation du modèle cellulaire axisymétrique, une série de calculs, similaires aux travaux [84,166] a été menée sur le VER de la figure V.2. Les calculs numériques ont été effectués pour des cavités initialement sphériques de volumes initiaux (1%, 5.5% et 10%) dans une cellule unitaire avec un seul rapport d'aspect  $\lambda_0=1$ , le durcissement de la matrice du mélange PBT/PTMO, est décrit par une loi de puissance de l'équation V.1, avec un exposant

«n» varié entre 0.2 et 0.3 [167], les taux de triaxialité des contraintes considérées sont (0.6, 1.8, et 3) [167,168].

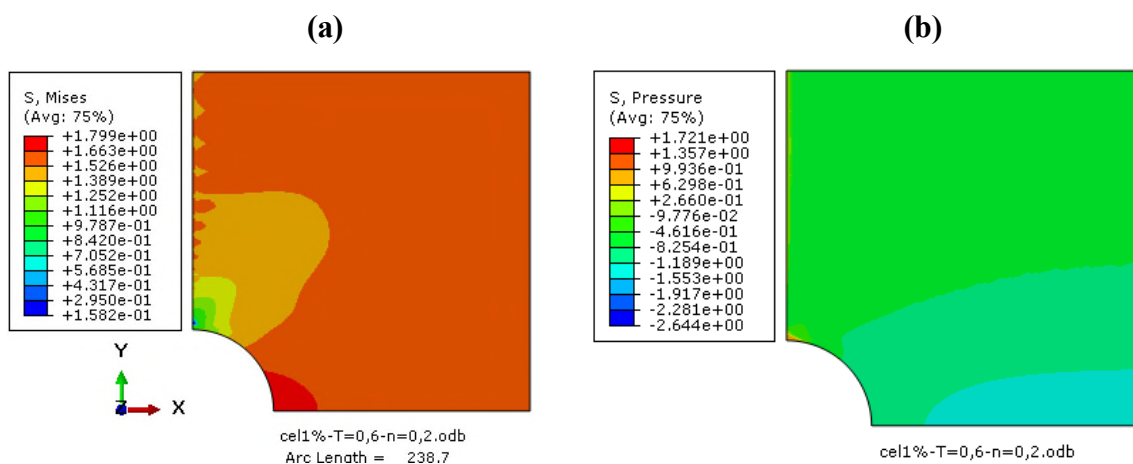
L'idée générale de l'application de la technique de « Riks » sur une cellule unitaire contenant un seul vide sphérique a son centre « VER » et de calculer la contrainte maximale de coalescence des cavités sphériques. L'avantage de cette technique est de maintenir la triaxialité de contrainte constante pendant tout le chargement.

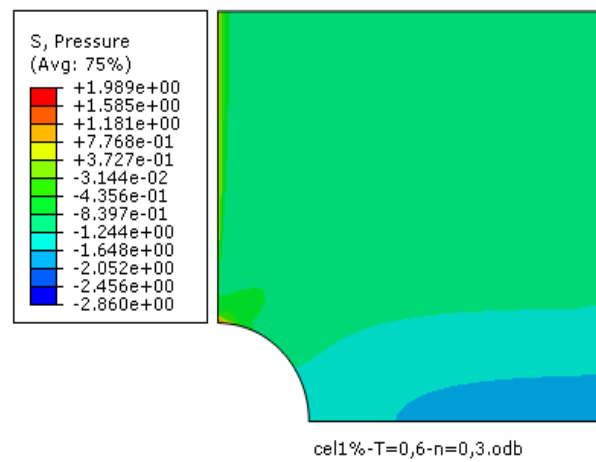
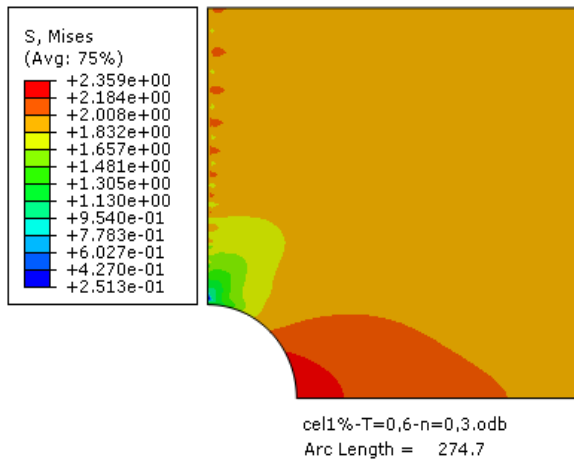
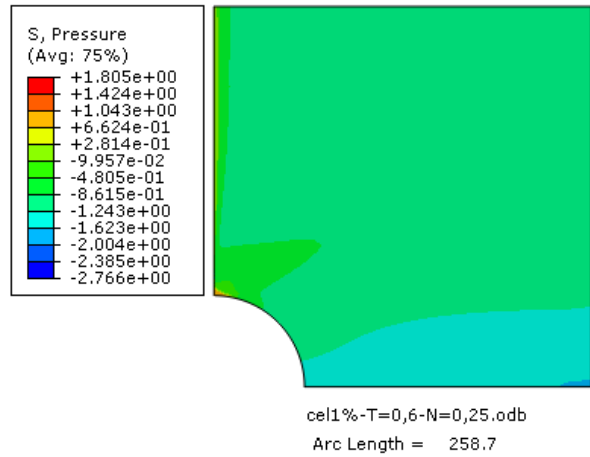
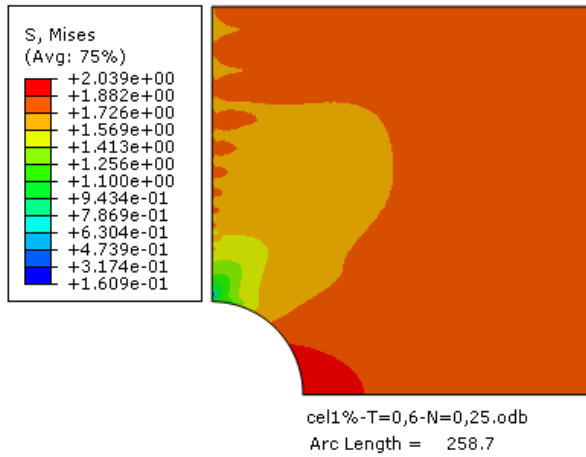
Le matériau est un polymère de la famille des copolymères avec les propriétés mécaniques déjà déterminées expérimentalement par des essais de traction, cité au chapitre IV. L'objectif essentiel de l'approche d'homogénéisation sur le mélange PBT/PTMO est de déterminer l'influence de la triaxialité des contraintes ( $\beta$ ), le volume de la cavité ( $f_0$ ) et le coefficient de durcissement (n) sur la contrainte équivalente maximale de coalescence de cavité.

L'ensemble des résultats de l'analyse du modèle cellulaire sont obtenus à partir des courbes contrainte-déformation équivalente, qui sont présentés ci-dessous. A travers la variation du taux de la triaxialité des contraintes, la fraction volumique de vide, et le coefficient de durcissement. Nous avons déterminé l'évolution de la contrainte équivalente normalisée  $\sum_{eq}$  en fonction de la déformation équivalente ( $E_{eq}$ ). Afin de montrer les résultats de la simulation numérique, nous présentons ci-dessous tous les isovaleurs de la distribution des contraintes locales dans le VER, au moment de l'instabilité plastique (coalescence) pour les trois porosités aux différentes triaxialité.

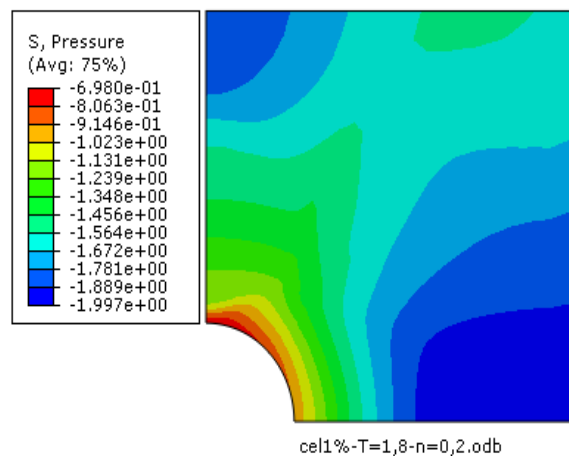
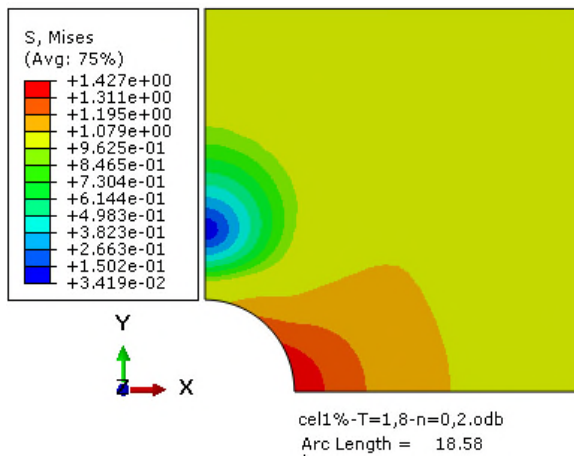
**Volume cavité  $f_0=1\%$**

**$T = 0.6$**

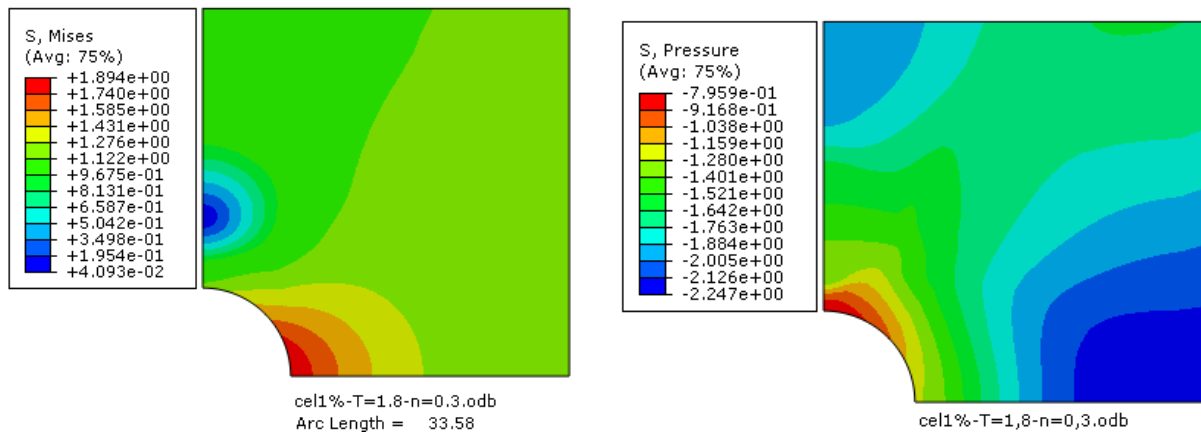
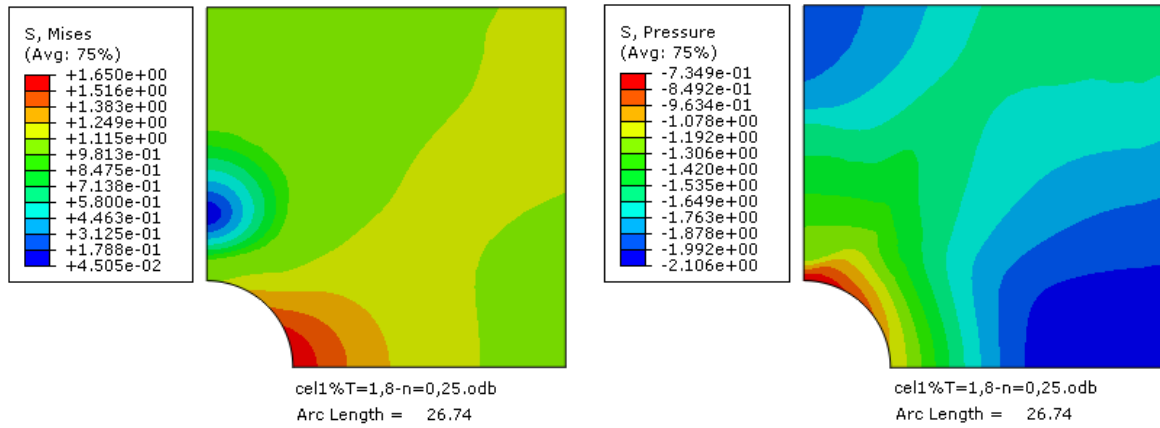




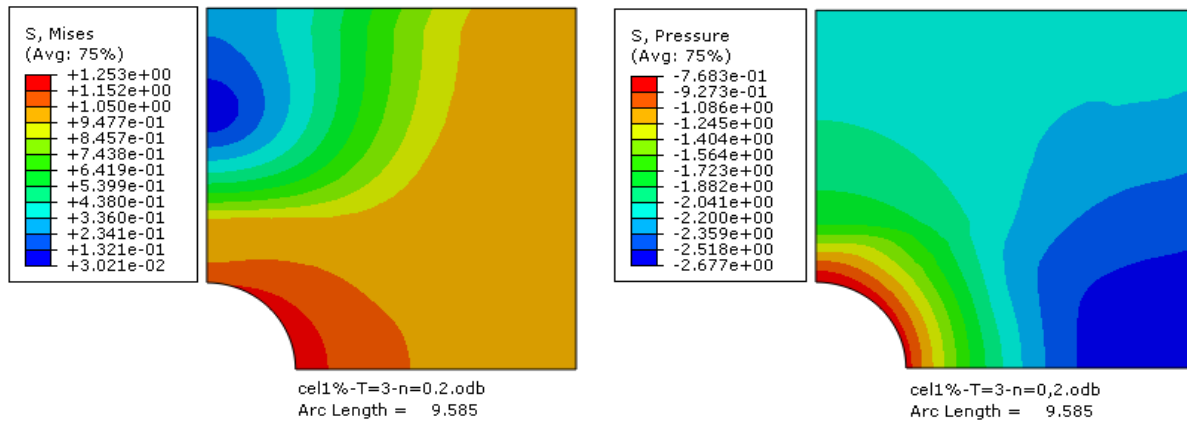
**T=1.8**







$T = 3$



Les figures (V.3, V.5) présentent la distribution des contraintes équivalentes et moyennes observées au moment de la coalescence (instabilité plastique). Compte tenu des très grandes déformations que subissent les cellules dans ce mélange d'élastomère, elles sont volontairement présentées dans leur état non-déformé afin d'améliorer la lisibilité des iso-values. Ces résultats montrent que les contraintes sont concentrées à l'équateur du vide et

diminuent au fur et à mesure qu'on augmente la triaxialité. Par ailleurs, la magnitude des contraintes diminue lorsqu'on augmente la porosité, ce qui explique qualitativement la différence d'intensité de contrainte macroscopique maximale à atteindre.

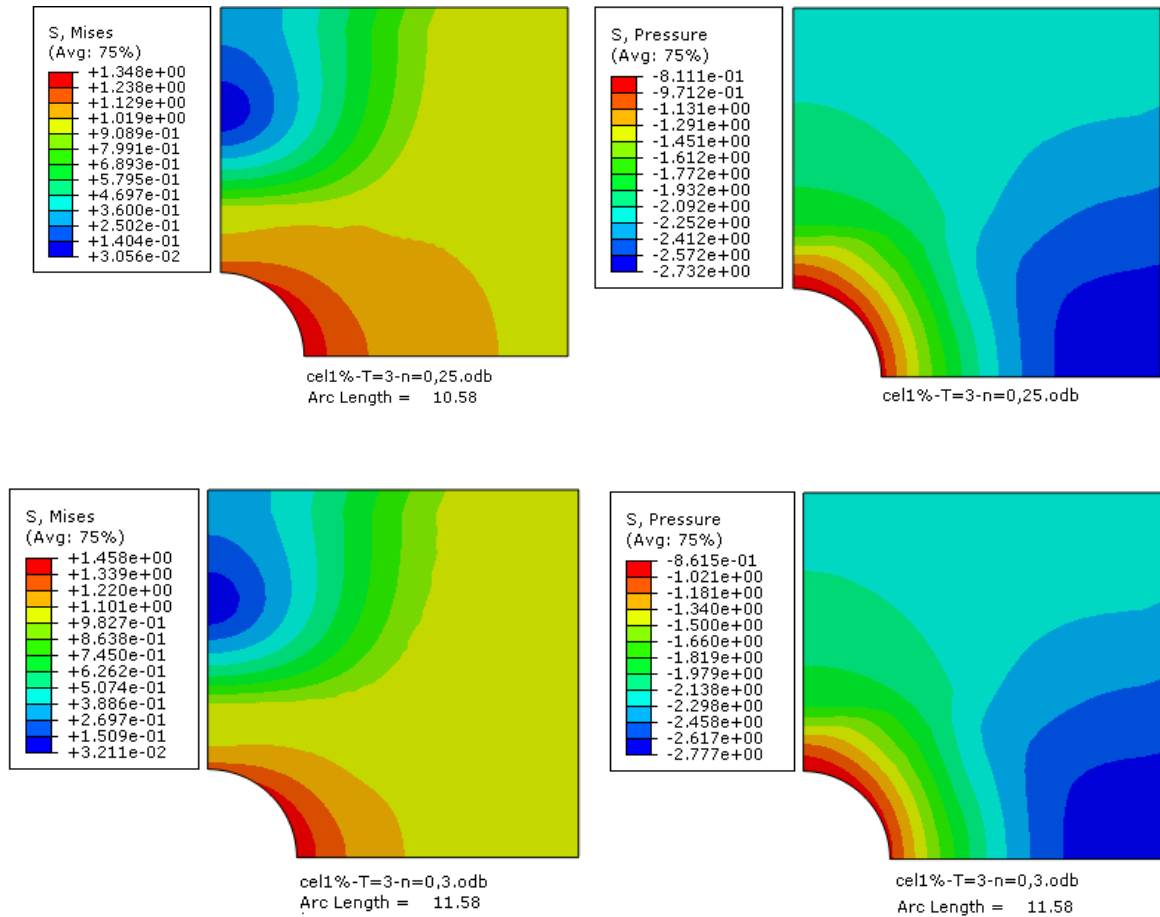
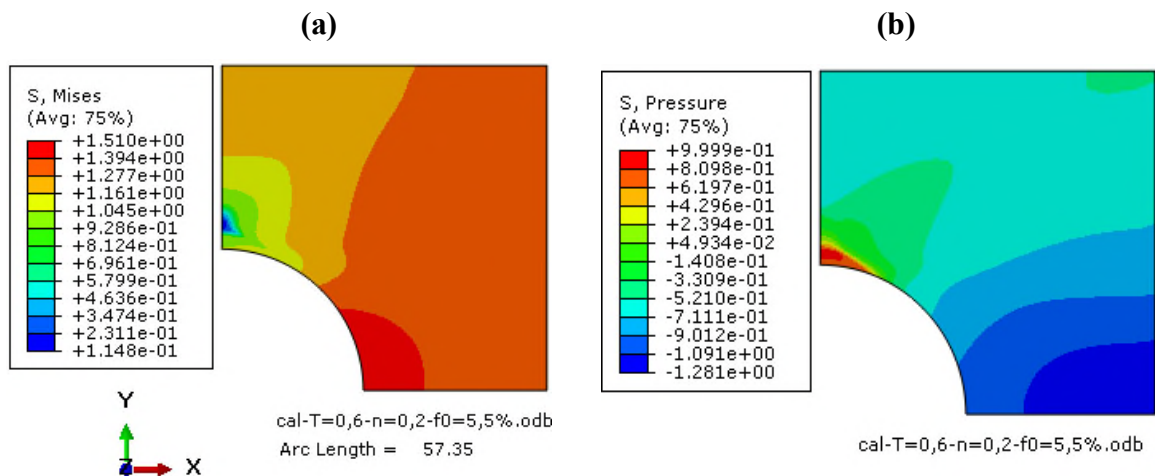
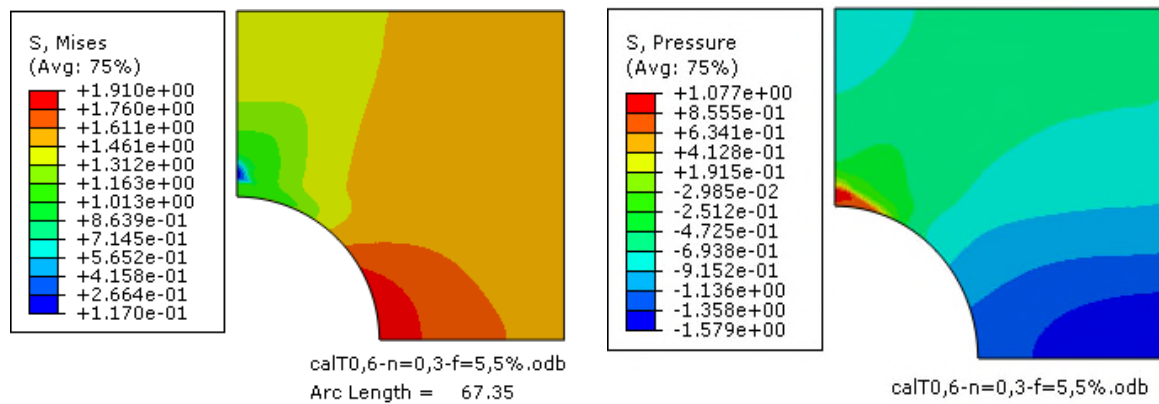
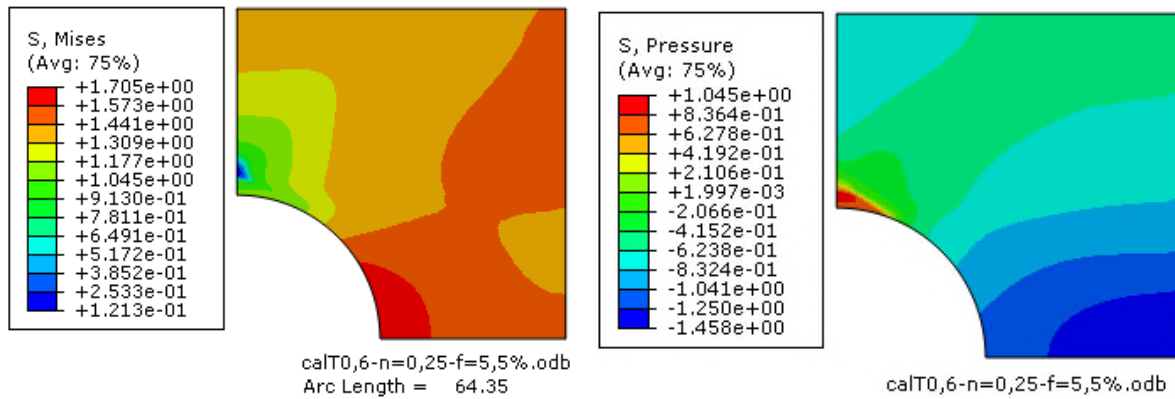


Figure V.3 : Isovaleurs des contraintes au moment de l'instabilité plastique (coalescence) d'un VER de cavité 1% (a) contrainte équivalente et (b) contrainte hydrostatique (moyenne).

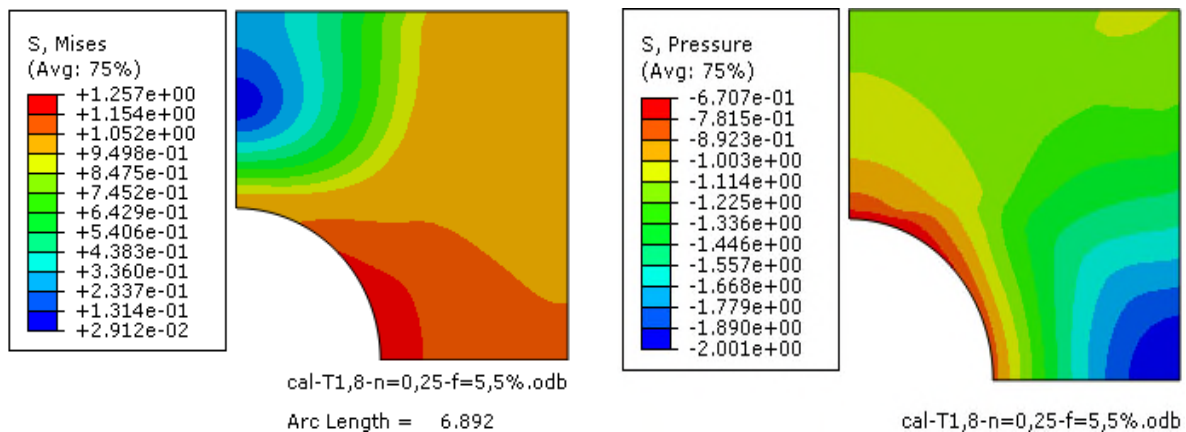
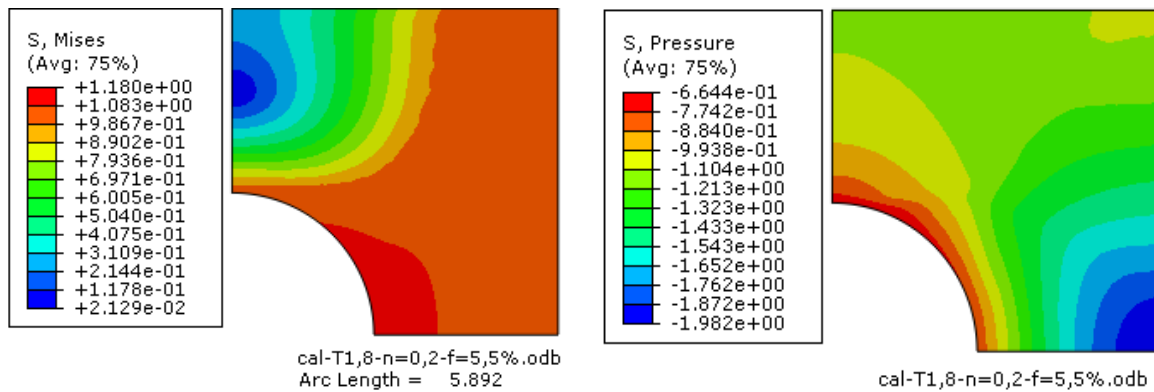
Volume cavite  $f_0 = 5.5\%$

$T = 0.6$





$T = 1.8$



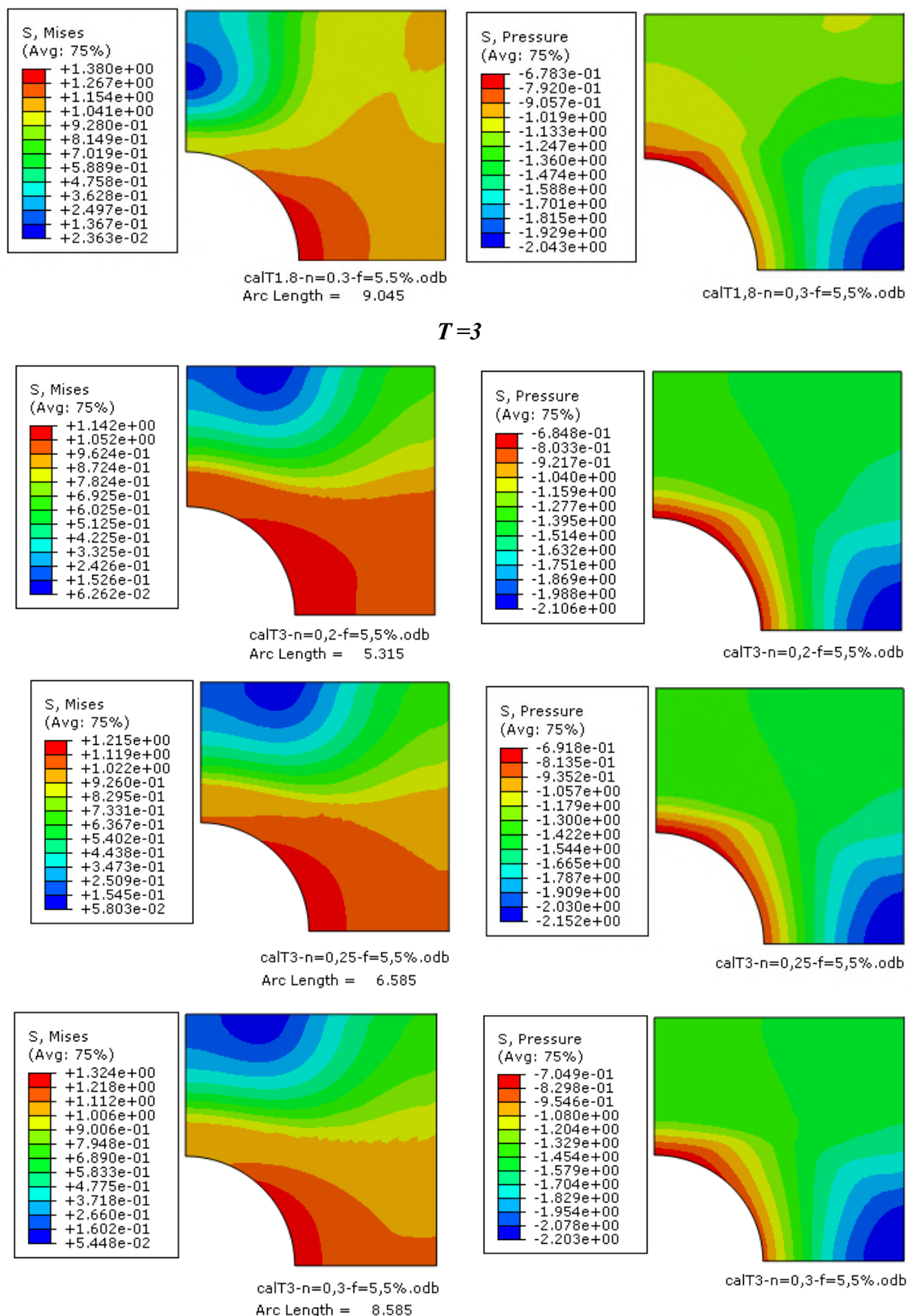
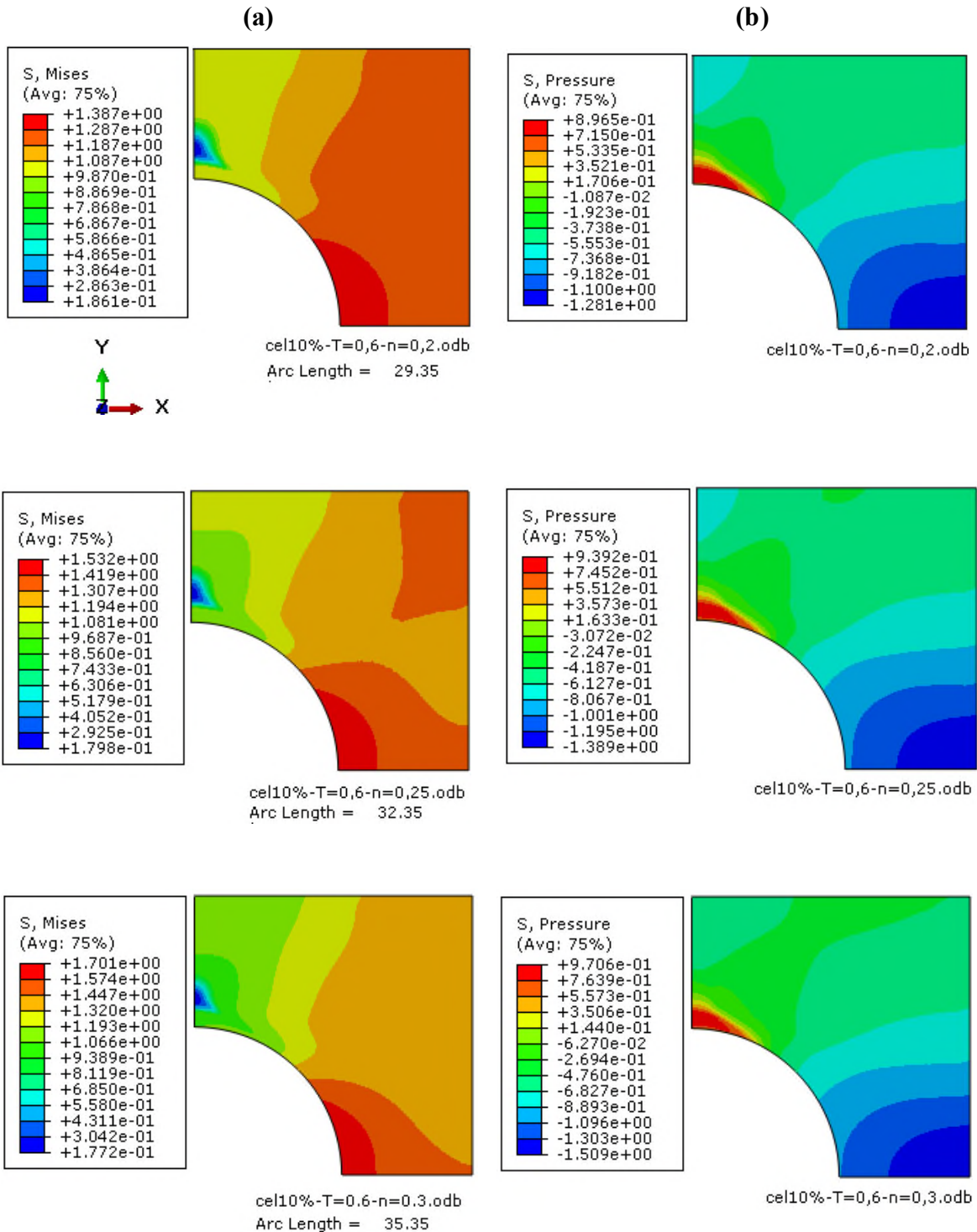


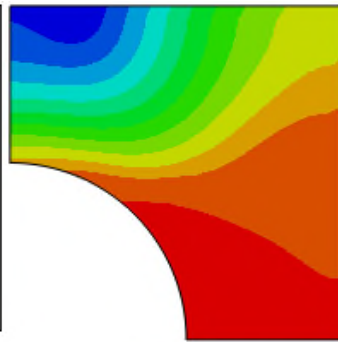
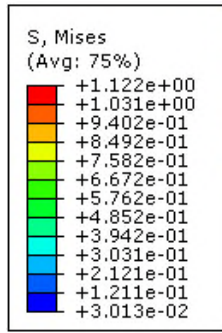
Figure V.4 : Isovaleurs des contraintes au moment de l'instabilité plastique (coalescence) d'un VER de cavité 5.5% (a) contrainte équivalente et (b) contrainte hydrostatique (moyenne).

**Volume cavite  $f_0 = 10\%$**

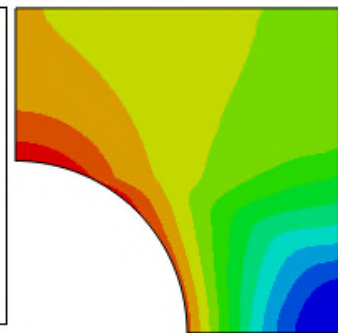
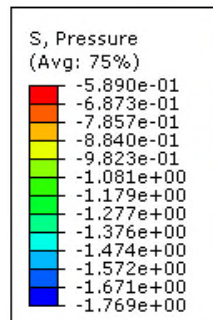
**$T=0.6$**



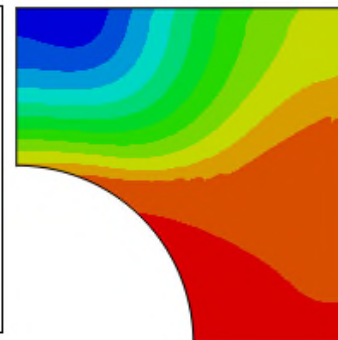
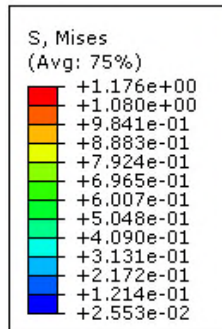
$T = 1.8$



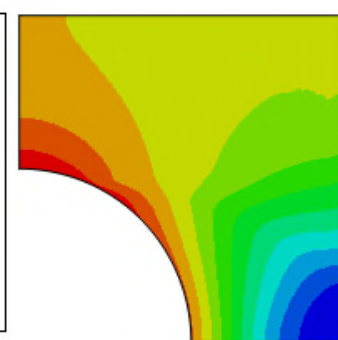
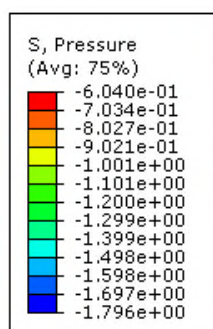
cel10%-T=1,8-n=0,2.odb  
Arc Length = 4.123



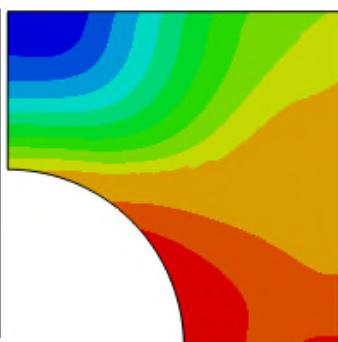
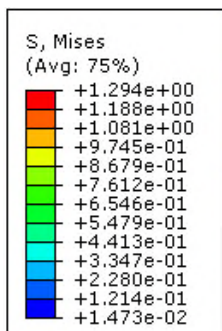
cel10%-T=1,8-n=0,2.odb



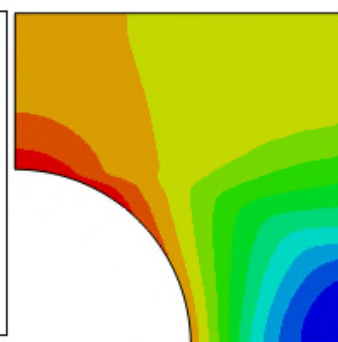
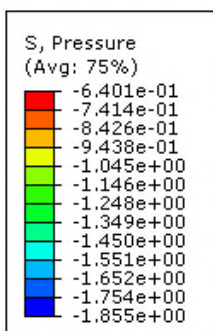
cel10%-T=1,8-n=0,25.odb  
Arc Length = 4.738



cel10%-T=1,8-n=0,25.odb

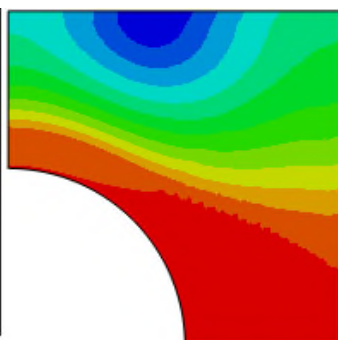
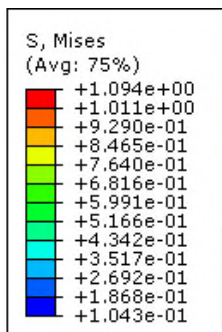


cel10%-T=1,8-n=0,3.odb  
Arc Length = 6.738

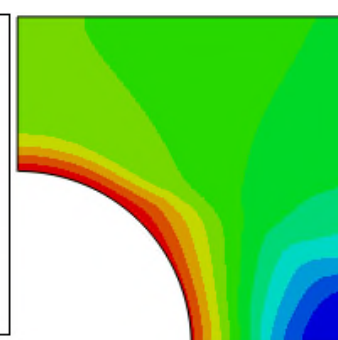
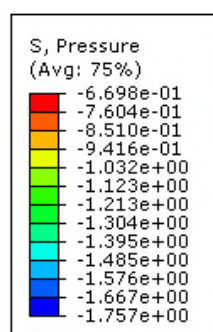


cel10%-T=1,8-n=0,3.odb

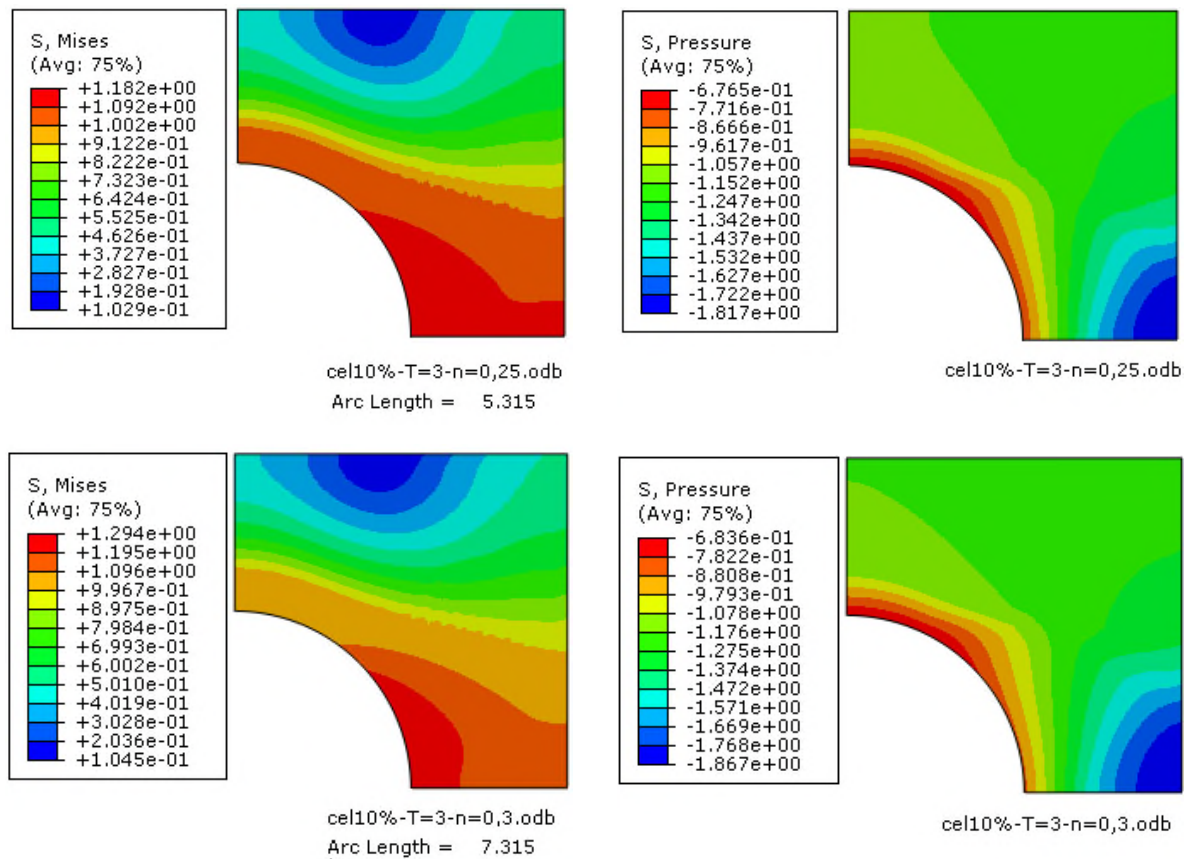
$T = 3$



cel10%-T=3-n=0,2.odb  
Arc Length = 3.450



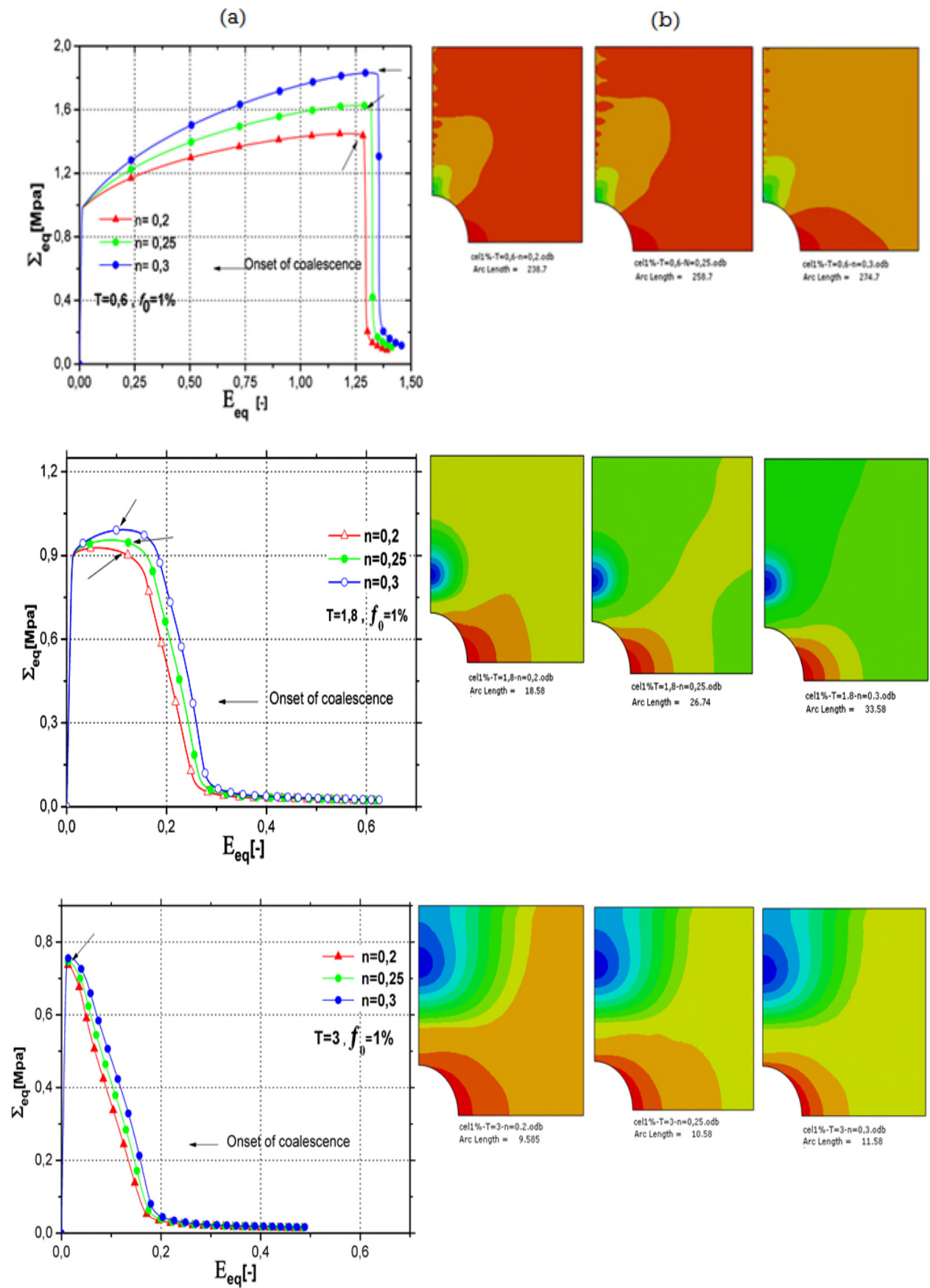
cel10%-T=3-n=0,2.odb



**Figure V.5 :** Isovaleurs des contraintes au moment de la coalescence (a) contrainte équivalente, (b) contrainte hydrostatique (moyenne).

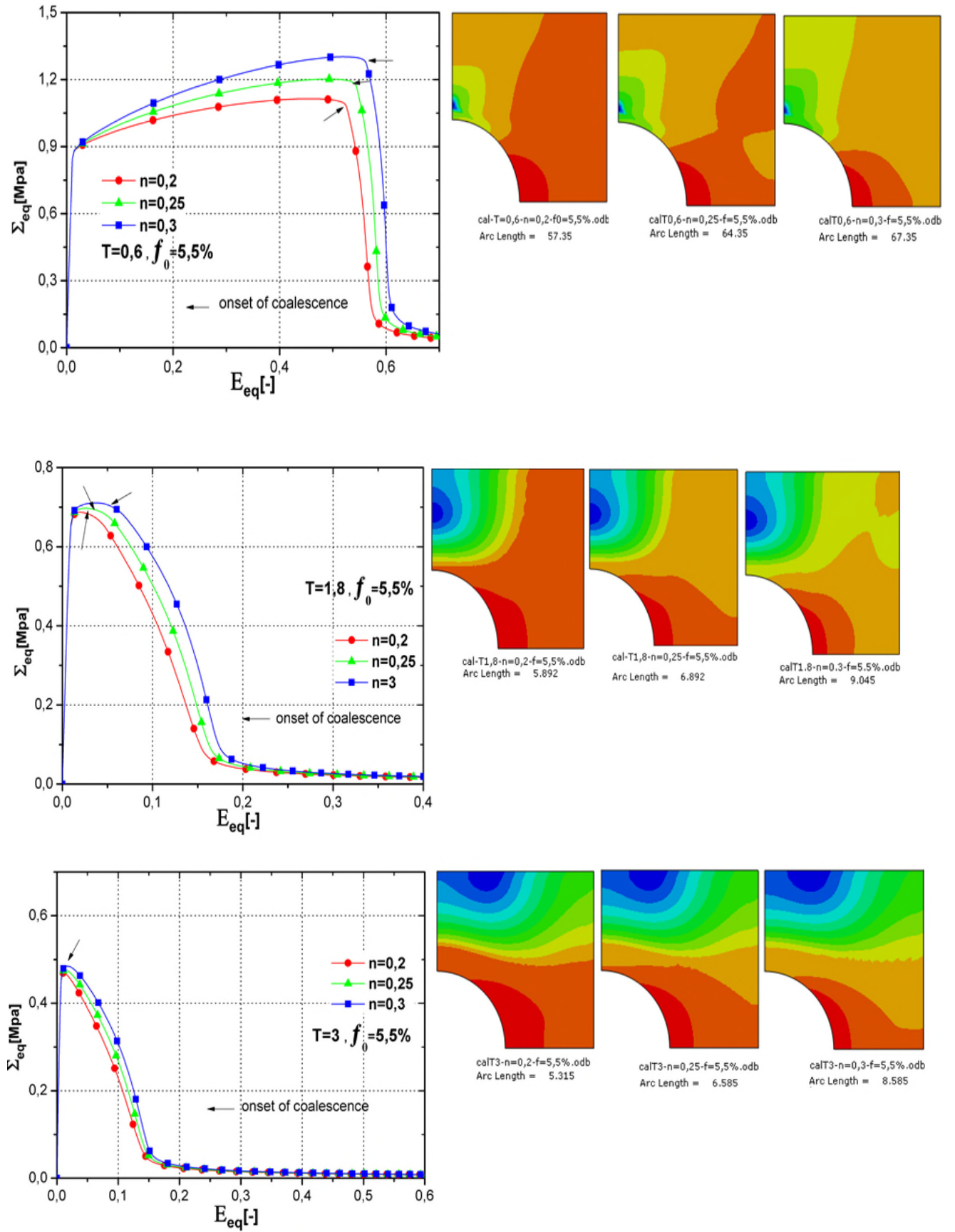
D'après les figures V.6, la hauteur de la zone de localisation des contraintes à taux de triaxialité des contraintes élevé correspond approximativement au rayon ( $R_{0z}$ ) du VER, alors qu'à une faible triaxialité des contraintes ( $T < 1-1.5$ ), elle représente seulement une fraction de ( $R_{0z}$ ). Par ailleurs, et d'après les iso-valeurs présentées ci-dessous, cette fraction de localisation des contraintes diminue avec l'augmentation du coefficient de durcissement quel que soit le taux de triaxialité des contraintes. Par ailleurs, la contrainte hydrostatique enregistre une valeur maximale au moment de la coalescence et elle augmente avec l'augmentation de la triaxialité des contraintes. L'évolution des contraintes et les déformations macroscopiques critiques en fonction de la porosité initiale pour les trois taux de triaxialité des contraintes étudiées sont représentées par le point maximum des courbes de la figure V-6, c.-à-d., que la coalescence finale des vides est supposée avoir lieu lorsque la porosité atteint cette valeur maximale.

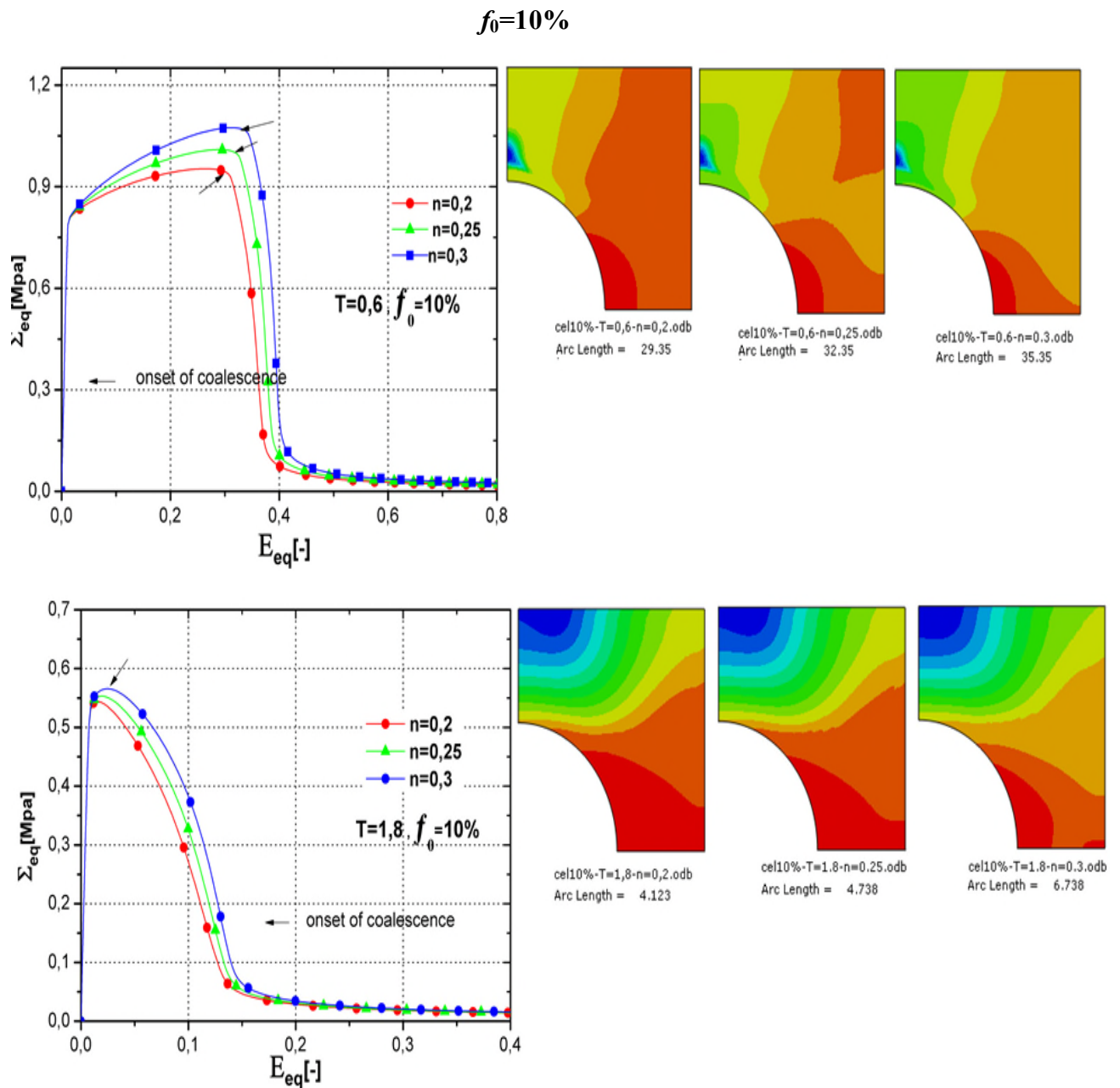
$f_0=1\%$





$f_0=5.5\%$





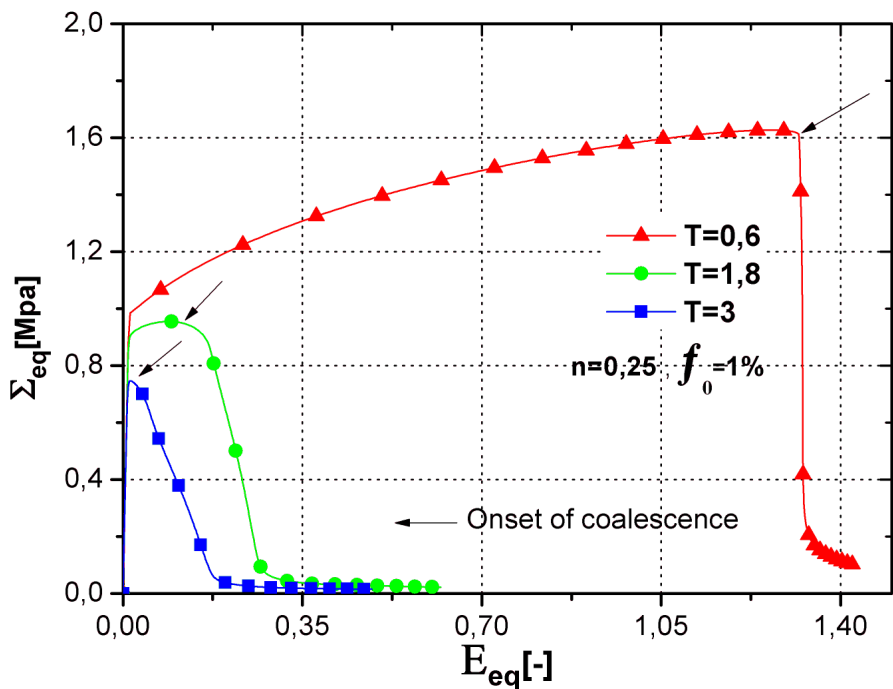
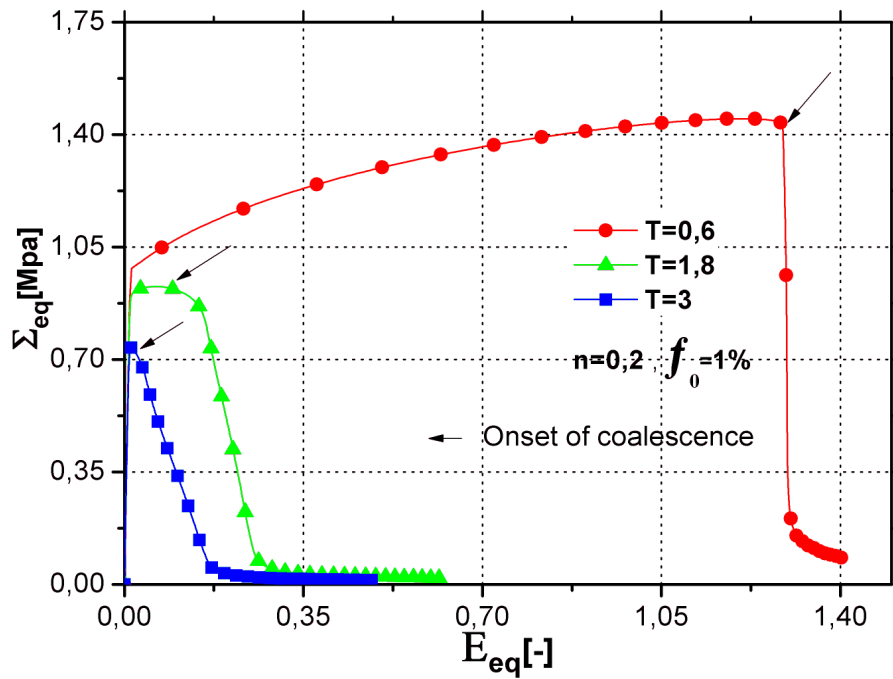
**Figure V.6 :** Réponse contraintes / déformations macroscopiques critiques, a) Variation du coefficient de durcissement, b) isovalues des contraintes au moment de l'instabilité plastique (coalescence) pour  $f_0$  (1%, 5.5% et.10%).

### V.5 Influence de la triaxialité

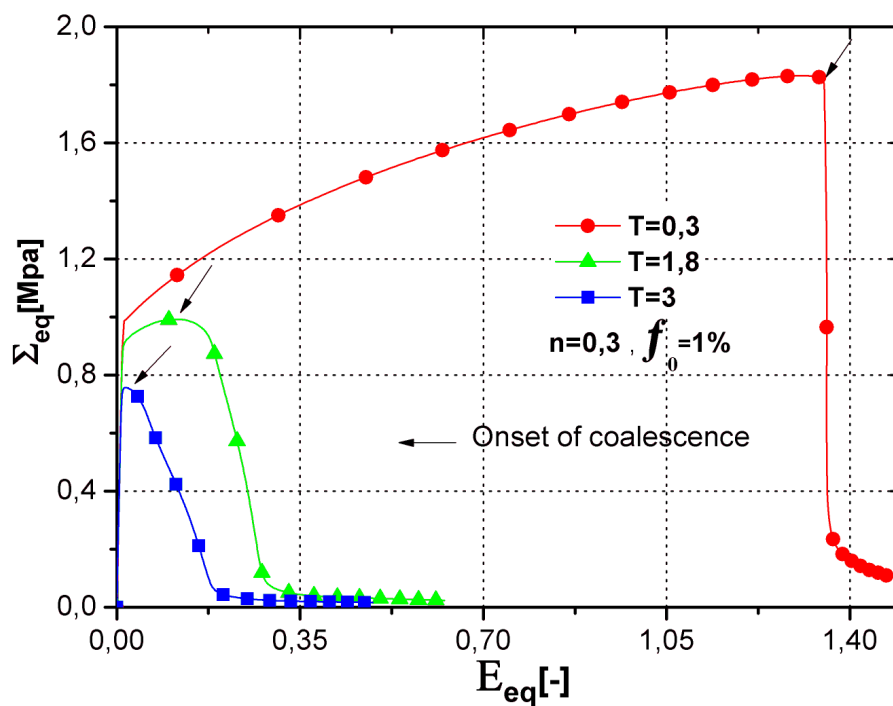
Les figures V.7-9 montrent les résultats obtenus de l'évolution des contraintes et déformations macroscopiques critiques, depuis le stade de croissance du vide jusqu'à la coalescence de la cavité, en fonction des fractions volumiques initiales 1%, 5.5% et 10%, coefficients de durcissement et les taux de triaxialité des contraintes  $T = 0.6, 1.8$  et 3.

Le début de la coalescence des vides correspond à un changement marqué de la pente, la transition est plus claire à une faible triaxialité de contrainte. La magnitude des contraintes

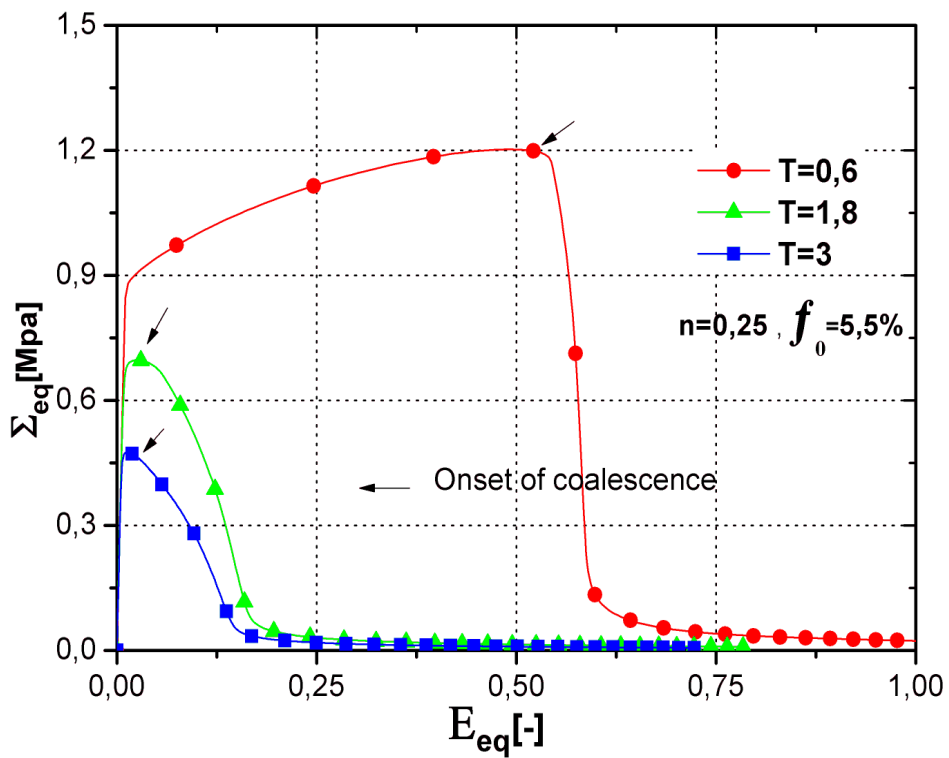
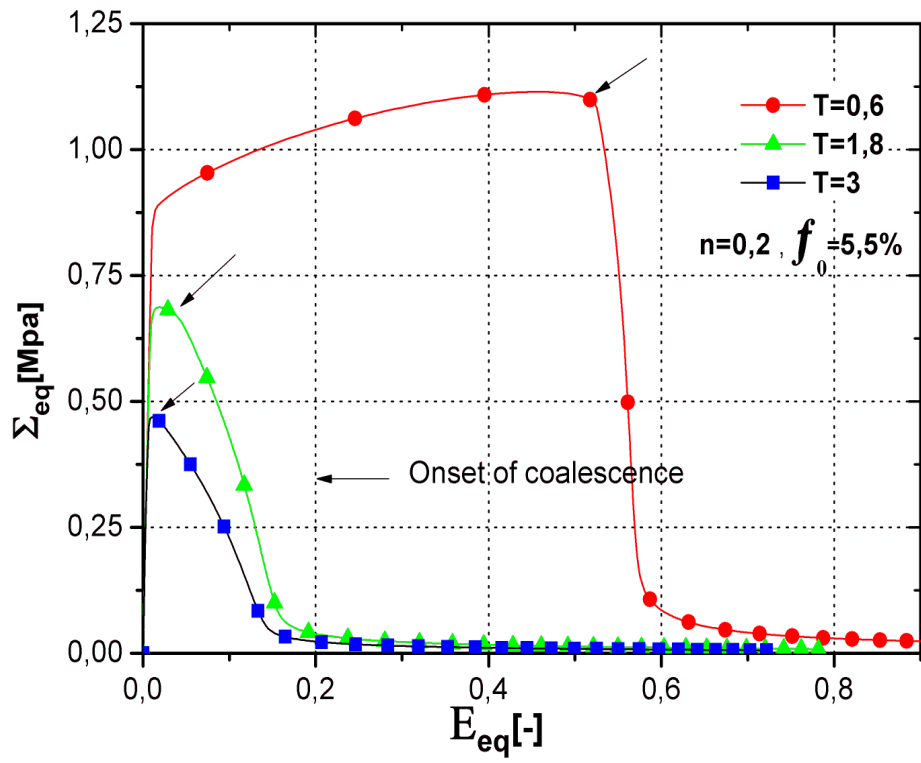
diminue lorsqu'on augmente la porosité, même avec l'augmentation du coefficient de durcissement. Les contraintes équivalentes critiques diminuent au fur et à mesure que la triaxialité des contraintes augmente et ceci quelles que soit la valeur du coefficient de durcissement ( $n$ ).



On constate également d'après ces courbes, que la progression de la déformation entraîne une contrainte effective maximale, suivi d'une diminution lorsque le durcissement de la matrice du matériau est insuffisant pour compenser une réduction de la surface du ligament cellulaire provoquée par la croissance des vides. Lorsque la déformation équivalente atteint une valeur critique ( $E_c^{eq}$ ), une chute rapide de la contrainte effective se produit, en particulier pour les niveaux de triaxialité à haute contrainte. La valeur de crête de la contrainte augmente alors que ( $E_c^{eq}$ ) diminue avec l'augmentation de la triaxialité des contraintes. Ceci reflète l'augmentation de la résistance et la diminution de la ductilité.



**Figure V.7** Réponse contrainte/déformation équivalente en fonction des triaxialité des contraintes et la fraction volumique  $f_0$  : (1%).



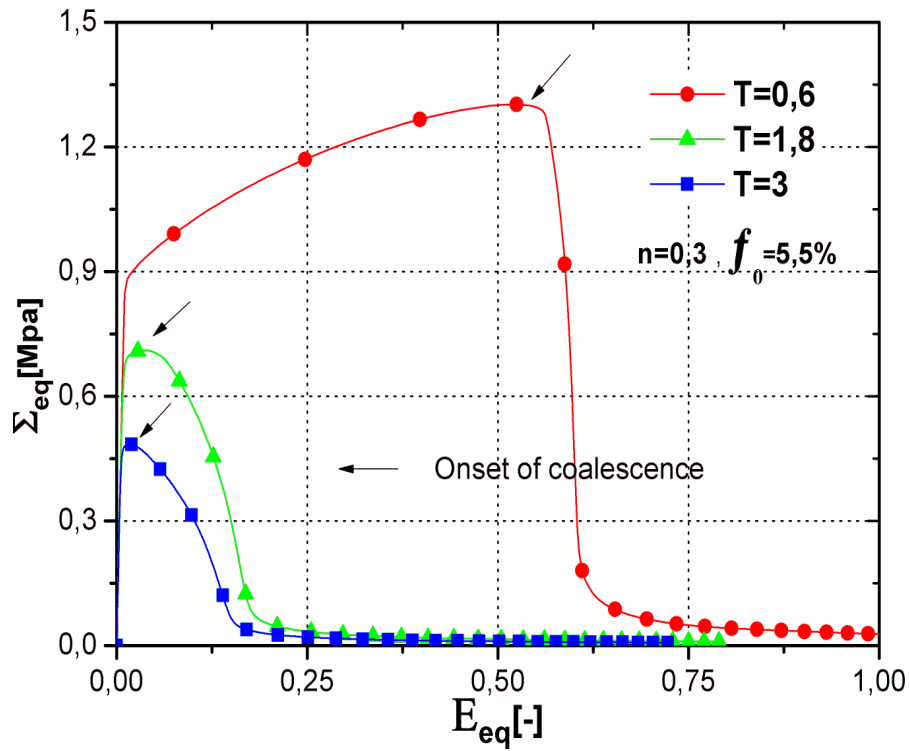
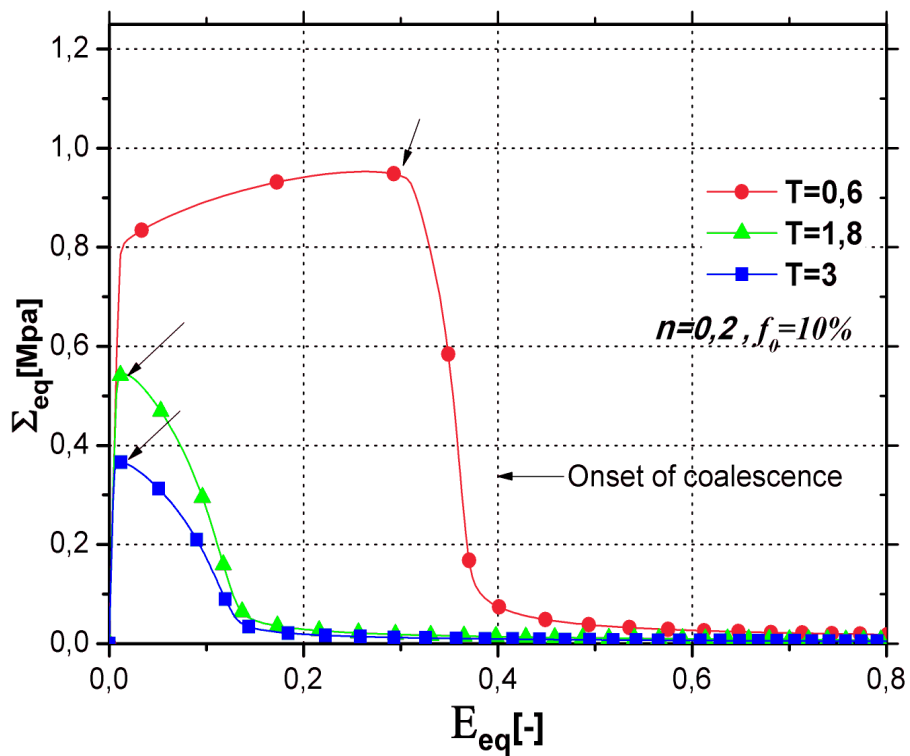


Figure V.8 : Réponse contrainte/déformation équivalente en fonction des triaxialité des contraintes et la fraction volumique  $f_0$  : (5.5 %).



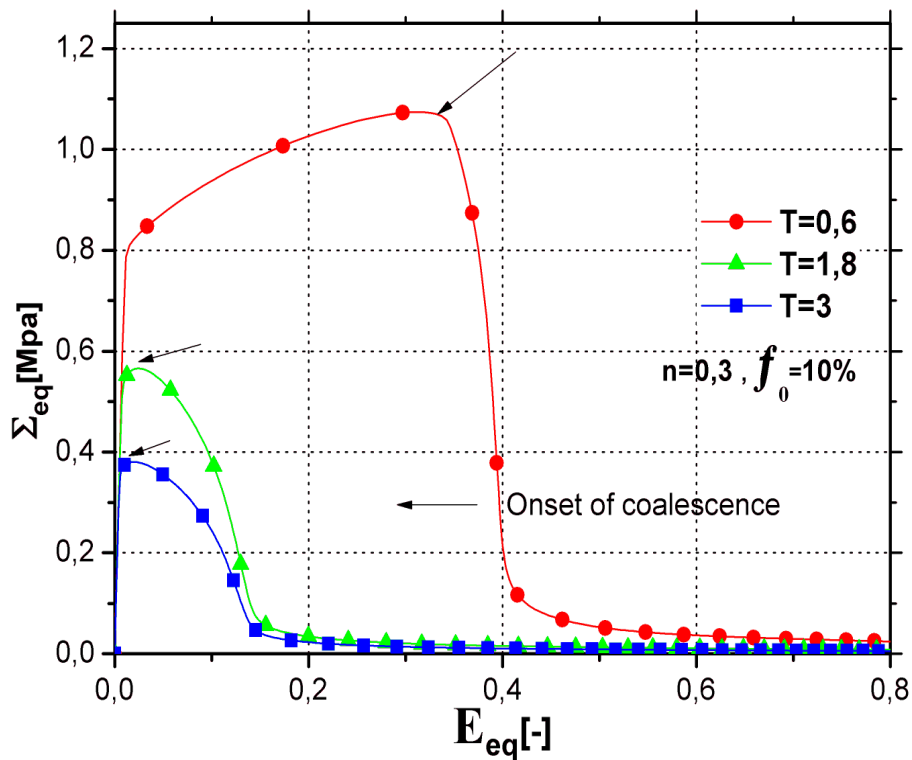
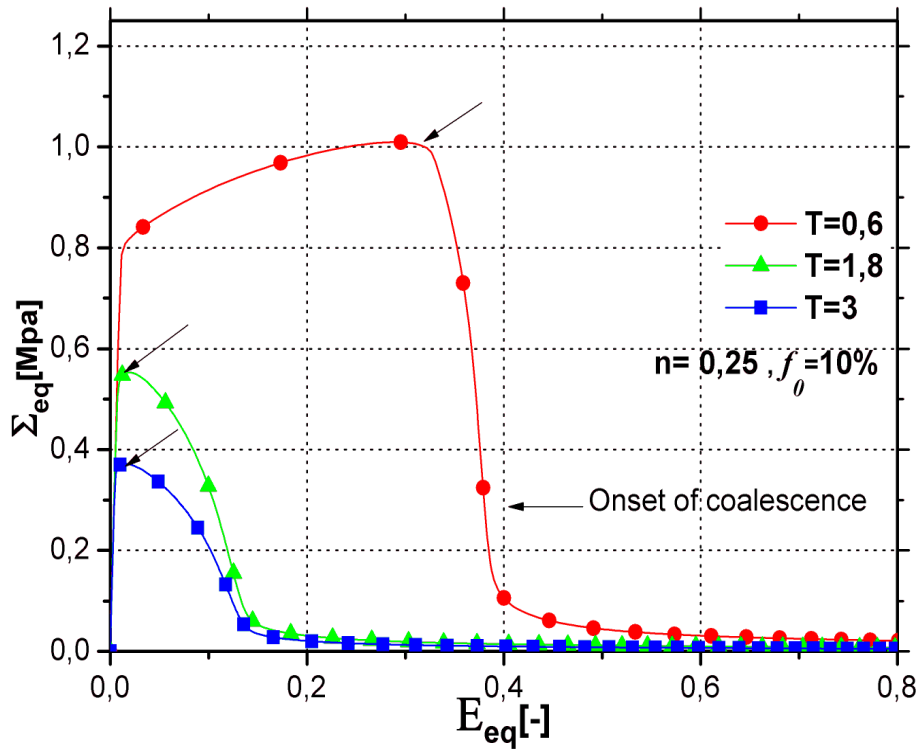
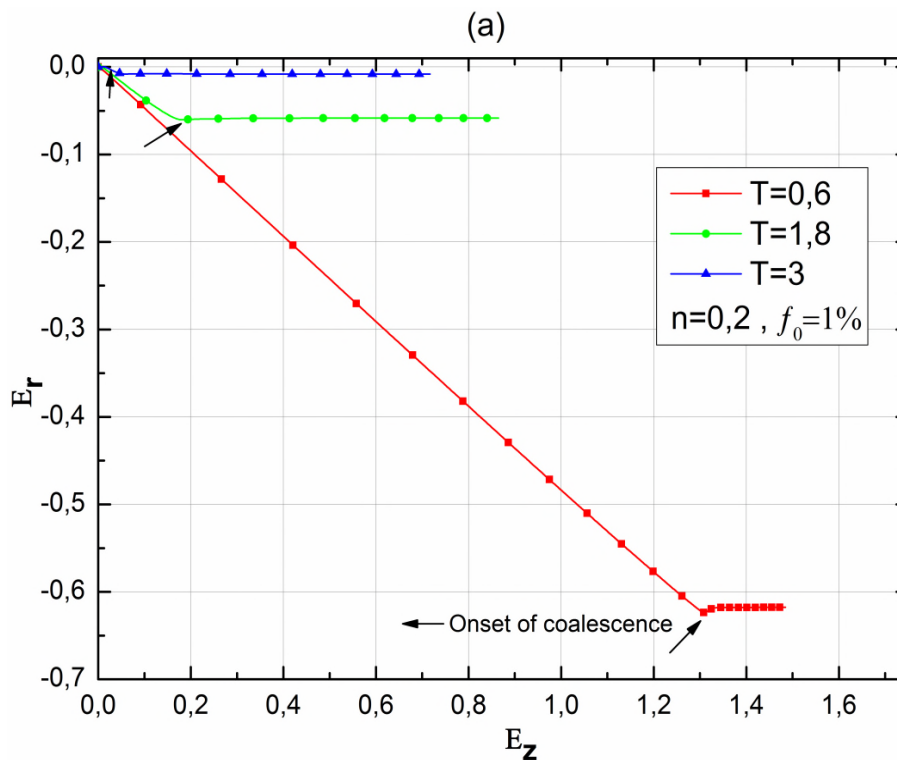


Figure V.9 : Réponse contrainte/déformation équivalente en fonction des triaxialité des contraintes et la fraction volumique  $f_0$  : (10%).

La figure V.10 montre la variation de la déformation radiale ( $E_r$ ) en fonction de la déformation axiale ( $E_z$ ). La transition à un mode de déformation uni-axial est presque instantanée [169,170]. Cette transition d'après la figure IV.10 (a-b-c) constitue un indicateur direct de la localisation des contraintes, elle est efficace pour quantifier la déformation au début de la coalescence des vides. On remarque à une triaxialité faible que le taux de déformation radiale en fonction du taux de déformation axial  $E_z$  au moment de la coalescence du vide est moins important par rapport à une triaxialité des contraintes élevé. On remarque également au moment de la coalescence une déformation radiale qui change de pente, elle se tendre vers une valeur constante. Elle reste significativement négative (un mode de déformation uni-axial n'est donc pas observé). En effet, le déchargement élastique radial de la cellule devient de moins en moins négligeable pour augmenter la triaxialité de la contrainte.





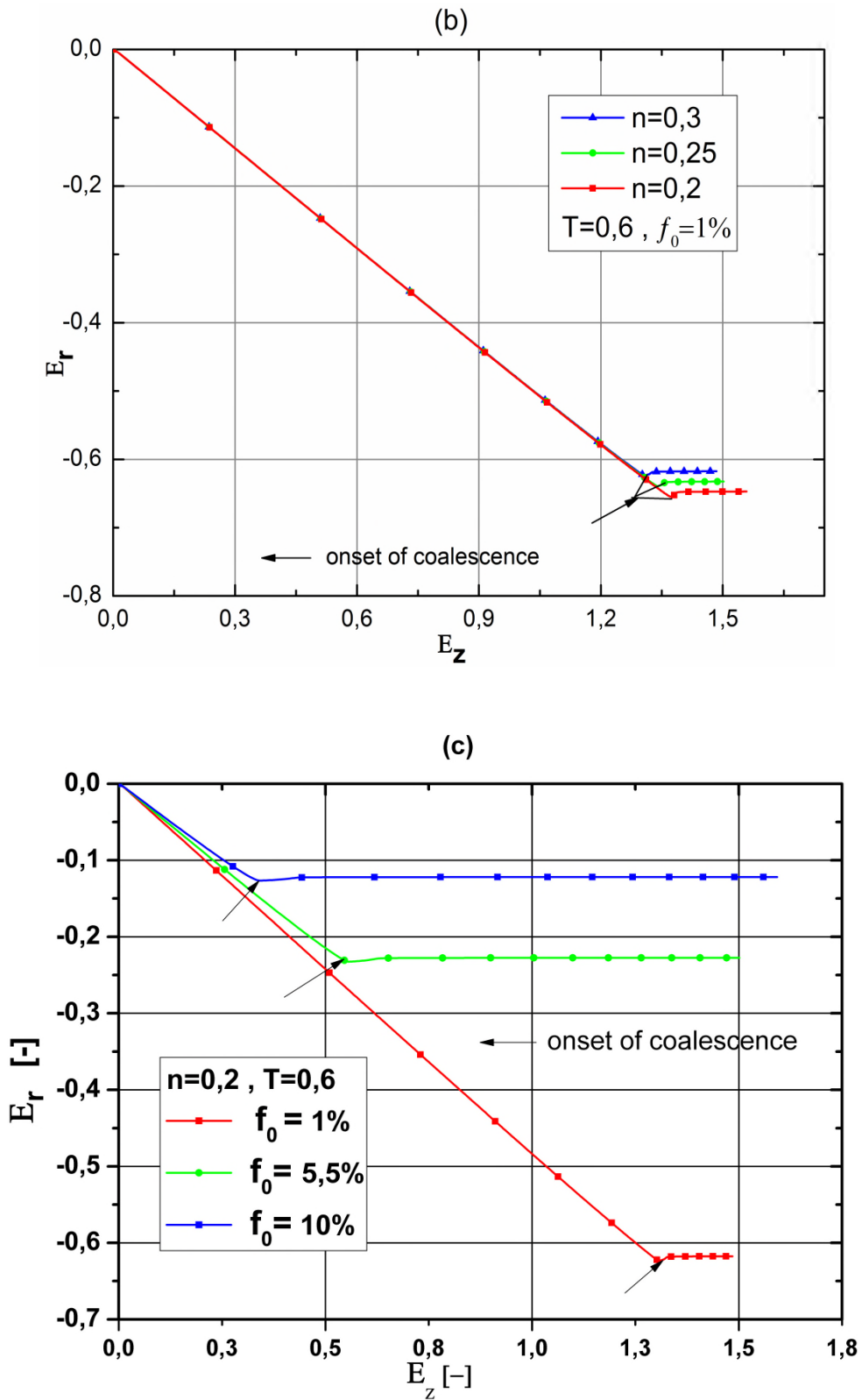


Figure V.10 : variation de la déformation radiale  $E_r$  en fonction de la déformation axiale  $E_z$ .

## V.6 Conclusion

La triaxialité de contraintes est l'un des principaux facteurs influençant la coalescence des vides dans les matériaux poreux. Trois taux de triaxialité des contraintes ont été considérés dans le calcul pour étudier la coalescence des vides dans ce chapitre. Les résultats obtenus ont montré que la triaxialité des contraintes affecte fortement le début de la coalescence des vides. Ceci suggère que la fraction volumique critique de Tvergaard (1984) ne doit pas être considérée comme une constante matérielle mais comme un critère d'endommagement. Dans cette partie de travail nous n'avons pas pris en compte les effets des vides secondaires sur la coalescence des vides. D'autres études peuvent être menées à l'avenir pour caractériser l'endommagement de ce mélange d'élastomère PBT/PTMO par l'effet de ces vides secondaires, la forme du vide et l'espacement entre les cavités.

## *Chapitre VI*

### Détermination de la prépondérance des paramètres de coalescence des cavités

*Les résultats de la modélisation de l'élément de volume représentatif « VER » contenant une cavité sphérique au centre de la cellule, sont analysées par la méthodologie des plans d'expérience. Cette méthodologie des plans d'expériences nous a permis également de mettre en évidence l'effet d'interaction de ces facteurs sur la contrainte équivalente maximale de coalescence. Un modèle mathématique constitutif qui contrôle la contrainte équivalente maximale en fonction des variables d'entrée imposés est développé. A travers cette technique d'analyse nous avons obtenu les valeurs optimales de la contrainte maximale de coalescence des cavités.*

## VI.1 Introduction

Le mécanisme de cavitation est un processus d'endommagement qui influe sur le comportement mécanique des polymères, il permet notamment au développement de l'écoulement plastique par croissance de cavité et il participe également à l'augmentation de la dissipation en sommet de fissure. De plus, la cavitation provoque une variation de volume induite par la présence de cavités en modifiant la répartition des contraintes. La modélisation de la croissance des cavités des matériaux solides ductiles a donné lieu à des méthodes prédictives pour détecter la propagation des fissures. Plusieurs modèles ont été utilisés pour la détermination de la contrainte maximale au point de coalescence de cavité telle que le modèle de (Gurson, A.L., 1977) [171]. Il a été modifié par la suite en introduisant des critères complexes et significatifs pour prédire la fissure à partir des essais expérimentaux sur des matériaux non fissurés [172-175]. De nombreux problèmes de la rupture ductile des structures non fissurées se produisent à une faible triaxialité des contraintes, dans ce cas, ces modèles ne prédisent pas de manière fiable la propagation de la fissure à une triaxialité élevée. Afin de reproduire quantitativement des courbes expérimentales, les paramètres du modèle doivent être identifiés par rapport aux données expérimentales prises dans des conditions de triaxialité à contrainte élevée [176]. La détermination de la contrainte maximale est limitée par des conditions non expérimentales comme la triaxialité et le durcissement [176]. Les critères utilisés pour déterminer la coalescence des cavités sont limités à une plage restreinte de conditions qui ne sont pas facilement mesurées expérimentalement. En particulier, la dépendance significative de la triaxialité à la condition de coalescence n'est pas saisie par les modèles actuels. La coalescence d'une cavité est un mode d'endommagement des matériaux ductiles, il est la conséquence de la localisation de la déformation plastique à l'échelle microscopique dans un ligament entre les cavités voisines. La coalescence d'une cavité en traction implique une transition vers un mode de contrainte uni-axiale de l'élément de volume représentatif « VER » [177]. Cette coalescence est une localisation diffusée à l'échelle microscopique, elle s'amorce par une croissance rapide de la cavité jusqu'à la rupture finale. En effet, le point maximum de la courbe contrainte /déformation équivalente de Von Mises signifie une localisation d'un écoulement plastique qui peut être attribuée au phénomène de coalescence due à la striction du ligament dans la matrice, qui va aboutir à la formation d'une fissure macroscopique par rupture totale.

La croissance des cavités dépend de plusieurs facteurs intrinsèques ou extrinsèques tels que les propriétés mécaniques, le type de chargement, la géométrie de l'éprouvette et la mise

en œuvre du matériau. Cette dépendance rend complexe la modélisation de ce phénomène. L'objectif de ce chapitre est d'analyser l'influence de trois paramètres sur l'endommagement du PBT/PTMO. L'idée est d'analyser les résultats de la modélisation de l'élément de volume représentatif « VER » contenant une cavité sphérique au centre de la cellule du chapitre V, par la méthodologie des plans d'expérience, et développés un modèle mathématique constitutif qui contrôle la contrainte équivalente maximale en fonction de trois variables d'entrée imposés : la triaxialité des contraintes, le volume de la cavité et le coefficient de durcissement. cette méthodologie des plans d'expériences nous a permis également de mettre en évidence l'effet d'interaction de ces facteurs sur la contrainte équivalente maximale de coalescence. Il a ainsi été trouvé que l'ordre des paramètres influant sur la contrainte est le suivant: le taux de triaxialité des contraintes, la fraction volumique de la cavité et le coefficient de durcissement. En outre, cette méthode nous a permis d'obtenir des valeurs optimales de la contrainte maximale de coalescence des cavités en fonction de trois paramètres imposés: la triaxialité des contraintes, la fraction volumique de la cavité sphérique et le coefficient de durcissement du matériau.

## VI.2 Méthodologie des plans d'expériences

La méthode des plans d'expériences représente un outil parmi d'autres qui permet d'améliorer de façon importante la qualité des produits et des procédés. Cette méthode (Annexe- I) a été utilisée au début du siècle avec les travaux de Fisher (1925), utilisée dans le domaine de l'agriculture, elle est très répandue dans l'industrie électronique, de la métallurgie et des processus chimiques. C'est une méthode de modélisation ainsi que d'optimisation des processus. Le procédé d'un système peut être défini, exprimant les  $n$  variables de sortie ( $Y_i, i = 1, \dots, n$ ), comme une fonction des variables d'entrée ( $u_i, i = 1, \dots, m$ ) qui peuvent être contrôlées (Figure VI.1).

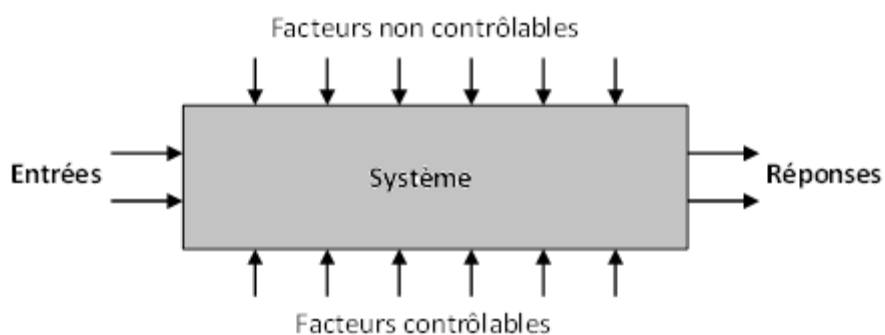


Figure VI.1. Représentation schématique d'un processus quelconque.

Pour vérifier l'évolution d'un processus, on mesure une réponse, et à partir de différents essais, on établit des relations de cause à effet entre les réponses et les différents facteurs.

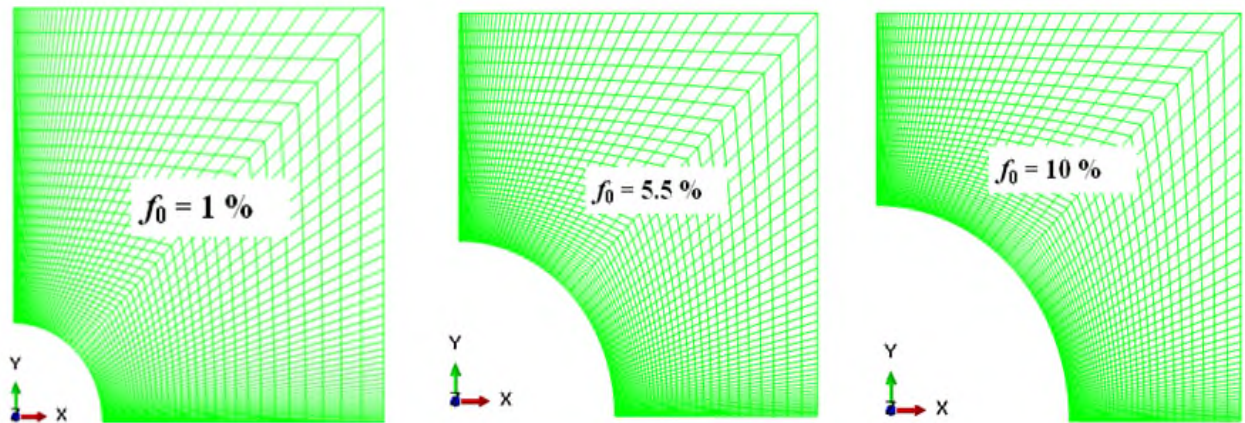
### VI.3 Matériau et méthode expérimentale

Le matériau à étudier est un mélange de Poly téréphtalate de butylène (PBT) et de poly oxyde de tétra méthylène (PTMO), il est de la famille des copolymères, ces propriétés mécanique ont été déterminées expérimentalement sont module de Young est de  $E = 85$  MPa, son coefficient de Poisson 0,42 et la limite d'élasticité 10 MPa. Le durcissement est décrit par une loi de puissance isotrope, pour laquelle la contrainte d'écoulement plastique est donnée par la relation suivante:

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\sigma}{\sigma_0} = \left( 1 + \frac{E\varepsilon^p}{\sigma_0} \right)^n \quad \dots\dots\dots \sigma > \sigma_0 \\ \frac{\sigma}{\sigma_0} = \frac{E\varepsilon}{\sigma_0} \quad \dots\dots\dots \sigma < \sigma_0 \end{array} \right. \quad (VI.1)$$

### VI.4 Approche expérimentale de conception

La conception d'un plans d'expériences [178-184] est nécessaire pour obtenir des informations pertinentes, et établir les effets et la signification du processus de croissance des cavités. Trois facteurs ont été proposés dans cette étude, la triaxialité des contraintes  $T$  (0,6-1,8 -3)[181], le coefficient de durcissement  $n$  (0,2-0,25-0,3) [182] et la fraction volumique de vides  $f_0$  (1%, 5.5% et 10%) [182], pour déterminer leurs effets sur la contrainte équivalente maximale de coalescence  $\Sigma_{eq}^{max}$ . Chaque paramètre a été testé à trois niveaux différents.



*Figure VI.2 : Modèle axisymétrique avec le type de maillage*

Les résultats des réponses contraintes / déformations vraie utilisées dans cette partie ont été obtenues par la méthode des éléments finis réalisée au chapitre V. La figure VI.2 décrit les trois fractions volumiques de cavités d'une cellule axisymétrique contenant une cavité sphérique unique au centre. La matrice de conception des expériences est obtenue selon le logiciel du plan d'expérience MODDE 5.0 (Modélisation et Conception), présentée dans le tableau VI.1.

On a adopté un plan d'expériences complet de trois facteurs à deux niveaux, le modèle de l'expérimentateur est quadratique suivant la forme:

$$y = a_0 + \sum_{i=1}^3 a_i x_i + \sum_{1 \leq i < j \leq 3} a_{ij} x_i x_j + \sum_{i=1}^3 a_{ii} x_i^2 \quad (\text{VI.2})$$

Où  $i, j$  varient de 1 au nombre de variables de processus 3;  $Y$  est la réponse du processus (contrainte équivalente de coalescence); le coefficient  $a_0$  est le moyen de réponse de toute l'expérience; le coefficient  $a_i$  représente l'effet de la variable  $x_i$  et  $a_{ij}$  sont les coefficients de régression qui représentent les effets des interactions des variables  $x_i x_j$ ; et  $a_{ii}$  sont les coefficients de régression qui représentent les effets des interactions de la variable  $x_i x_i$ ,  $e$  est l'erreur expérimentale.

N expérience	n	T	$f_0$	$\Sigma_{eq}^{max}$
1	0,2	0,6	1	1,4498
2	0,25	0,6	1	1,6275
3	0,3	0,6	1	1,831
4	0,2	1,8	1	0,927
5	0,25	1,8	1	0,955
6	0,3	1,8	1	0,992
7	0,2	3	1	0,7369
8	0,25	3	1	0,746
9	0,3	3	1	0,757
10	0,2	0,6	5,5	1,11478
11	0,25	0,6	5,5	1,20257
12	0,3	0,6	5,5	1,30228
13	0,2	1,8	5,5	0,544238
14	0,25	1,8	5,5	0,69688
15	0,3	1,8	5,5	0,710874
16	0,2	3	5,5	0,469292
17	0,25	3	5,5	0,475924
18	0,3	3	5,5	0,484869
19	0,2	0,6	10	0,952
20	0,25	0,6	10	1,009
21	0,3	0,6	10	1,07
22	0,2	1,8	10	0,544
23	0,25	1,8	10	0,5553
24	0,3	1,8	10	0,596
25	0,2	3	10	0,366
26	0,25	3	10	0,372
27	0,3	3	10	0,38

Table VI.1: matrice de conception des expériences

Le modèle polynomial proposé par le MODDE 5.0 décrivant les variations de la fonction réponse (contrainte équivalente de coalescence)  $\Sigma_{eq}^{max}$  en fonction des trois facteurs T, n,  $f_0$  est de la forme suivante:



$$\sum_{eq}^{max} = a_0 + a_1 T + a_2 n + a_3 f_0 + a_{12} T.n + a_{13} T.f_0 + a_{23} n.f_0 + a_{11} T^2 + a_{22} n^2 + a_{33} f_0^2 \quad (VI.3)$$

#### VI.4.1. Choix des intervalles d'étude

Les intervalles d'étude des différents facteurs ont été choisis suivants les réponses obtenues à partir des essais préliminaires.

#### VI.4.2. Intervalle d'étude du taux de triaxialité (T)

D'après le tableau des expériences préliminaires, on a choisi l'intervalle d'étude du rapport de charge comme suit :

$$0.6 \leq T \leq 3 \quad (VI.4)$$

La valeur centrale d'étude du rapport de charge est donnée par :

$$T_{moy} = \frac{T_{max} + T_{min}}{2} \quad (VI.5)$$

D'où ;  $T_{moy} = 1.8$ .

#### VI.4.3. Intervalle d'étude de la fraction cavitaire ( $f_0$ )

D'après le tableau des expériences préliminaires, on a choisi l'intervalle d'étude taux de surcharge comme suit :

$$1\% \leq f_m \leq 10\% \quad (VI.6)$$

La valeur centrale d'étude du taux de surcharge est donnée par :

$$f_{moy} = \frac{f_{max} + f_{min}}{2} \quad (VI.7)$$

D'où ;  $f_{moy} = 5.5\%$ .

#### VI.4.4. Intervalle d'étude du coefficient de durcissement (n)

D'après le tableau des expériences préliminaires, on a choisi l'intervalle d'étude de l'épaisseur comme suit :

$$0.2 \leq n \leq 0.3 \quad (VI.8)$$

La valeur centrale d'étude de l'épaisseur est donnée par :

$$n_{moy} = \frac{n_{max} + n_{min}}{2} \quad (VI.9)$$

D'où ;  $n_{moy} = 0.25$ .

## VI.5 Résultats et discussion

### VI.5.1 Analyse des effets par facteur d'entrée

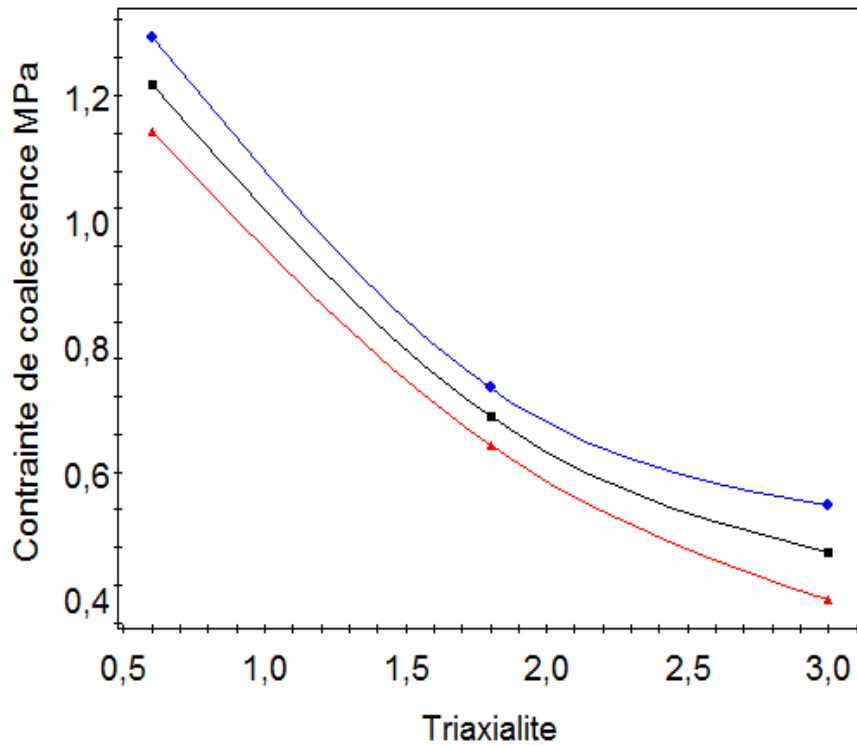
À partir de l'analyse du plan d'expérience «MODDE.5» on peut déterminer l'influence de chaque facteur sur la contrainte équivalente maximale de coalescence. En général, nous avons remarqué qu'au moment de l'augmentation de la fraction volumique initiale du vide, il y a une diminution du seuil élastique du matériau, montré au chapitre V. Cette limite est définie comme l'instant où la contrainte moyenne atteint son maximum. Afin de vérifier l'exactitude de cette hypothèse, on présente l'évolution de la contrainte critique pour les trois volumes de porosités initiales imposés. La contrainte critique évolue de manière non-linéaire avec l'évolution de la triaxialité et ceci quels que soient la taille de la porosité initiale et le coefficient de durcissement imposés. Cependant, l'effet de la triaxialité sur la contrainte critique est bien marqué. Plus la triaxialité est élevée, plus la contrainte est importante. De plus, on remarque une dépendance de la contrainte à la porosité du matériau.

#### VI.5.1.1 Effet de la triaxialité « T »

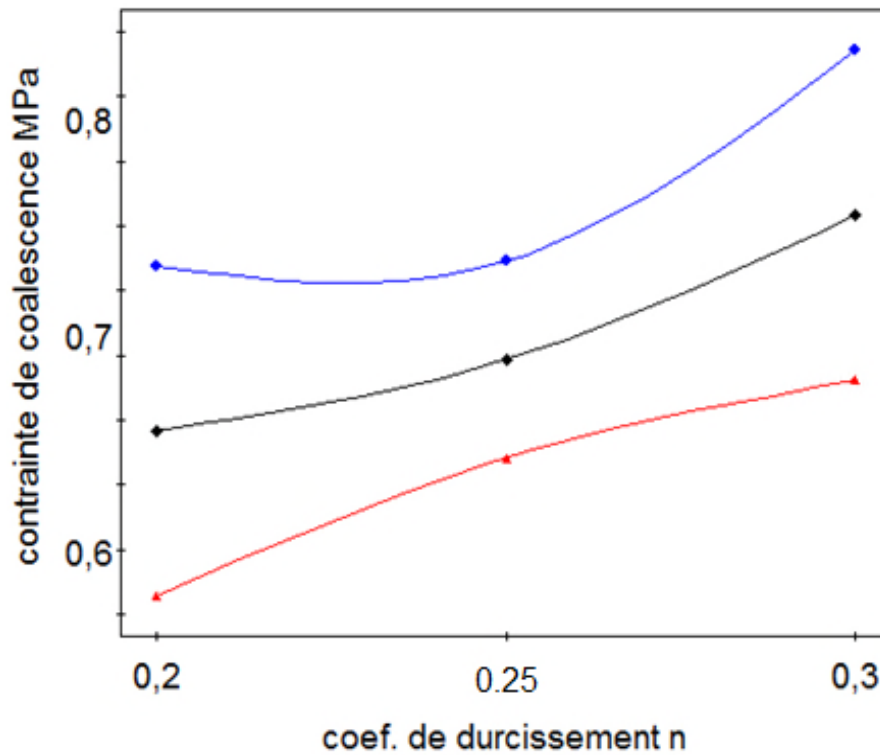
L'influence du taux de triaxialité des contraintes sur la contrainte maximale équivalente de coalescence est montrée par la figure VI.3. Les résultats montrent qu'un accroissement de la triaxialité entraîne une diminution de la contrainte de coalescence des vides. En effet, plus la contrainte suivant l'axe du chargement est moindre plus le niveau, de coalescence des vides, est faible. Ces résultats montrent que le chargement multiaxial a une influence considérable sur l'endommagement du matériau.

Un écart de 50% environ entre les deux triaxialités des contraintes (0.5 et 1.8) est observé. Ce qui est en bon accord avec les résultats obtenus par [185,186], l'auteur a constaté qu'à une forte triaxialité les contraintes provoquent une forte fibrillation consécutive de la

cavitation. Alors qu'à une faible triaxialité des contraintes, seuls quelques vides secondaires diffus sont observés.



*Figure VI.3 Evolution de la contrainte équivalente maximale de coalescence en fonction de la triaxialité*



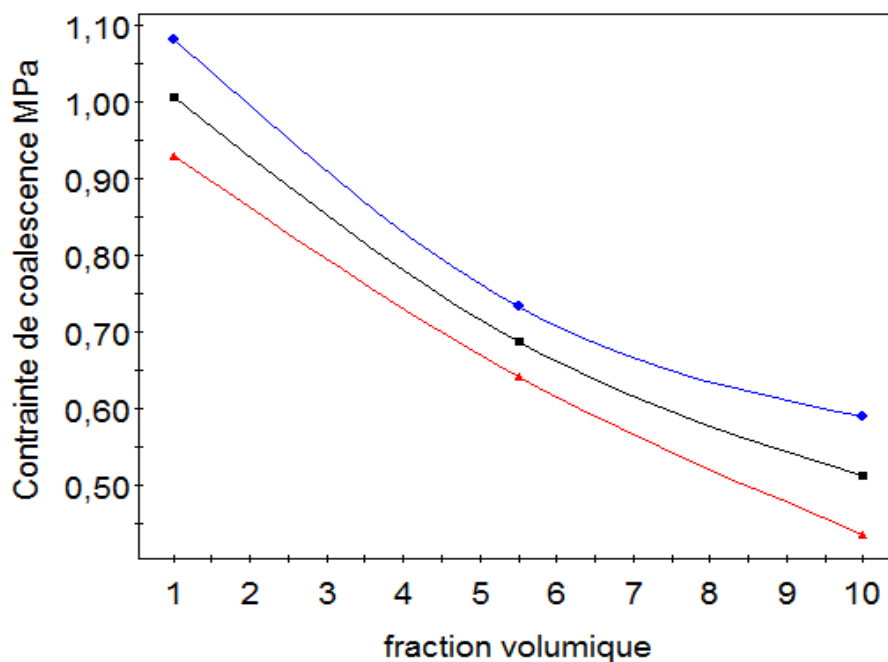
*Figure. VI.4: Evolution de la contrainte équivalente maximale de coalescence en fonction du coefficient de durcissement*

### VI.5.1.2 effet du coefficient de durcissement

La figure.VI.4 montre l'influence du coefficient de durcissement sur la contrainte équivalente de coalescence. Ainsi, nous observons qu'un accroissement de ce coefficient conduit à une augmentation de la contrainte équivalente de coalescence. Ceci montre clairement que le durcissement de la matrice provoque un retard considérable sur le phénomène de croissance des vides. Autrement dit, il augmente le niveau de la contrainte de coalescence des cavités. D'après ces résultats, il existe un coefficient de durcissement critique ( $n=0.25$ ), au-delà duquel on enregistre une augmentation rapide de la contrainte de coalescence.

### VI.5.1.3 effet de la fraction volumique « $f_0$ »

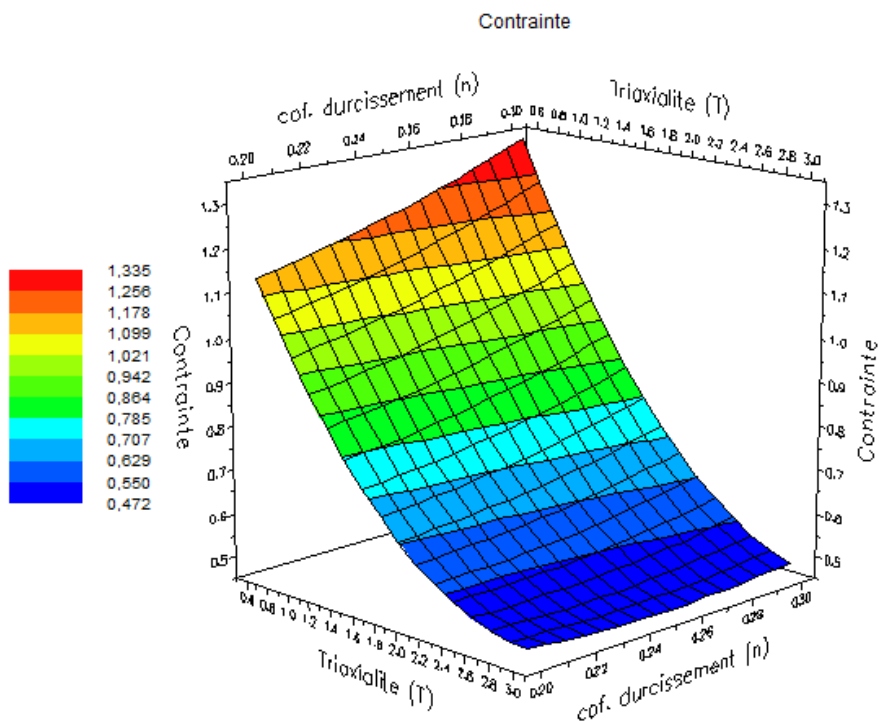
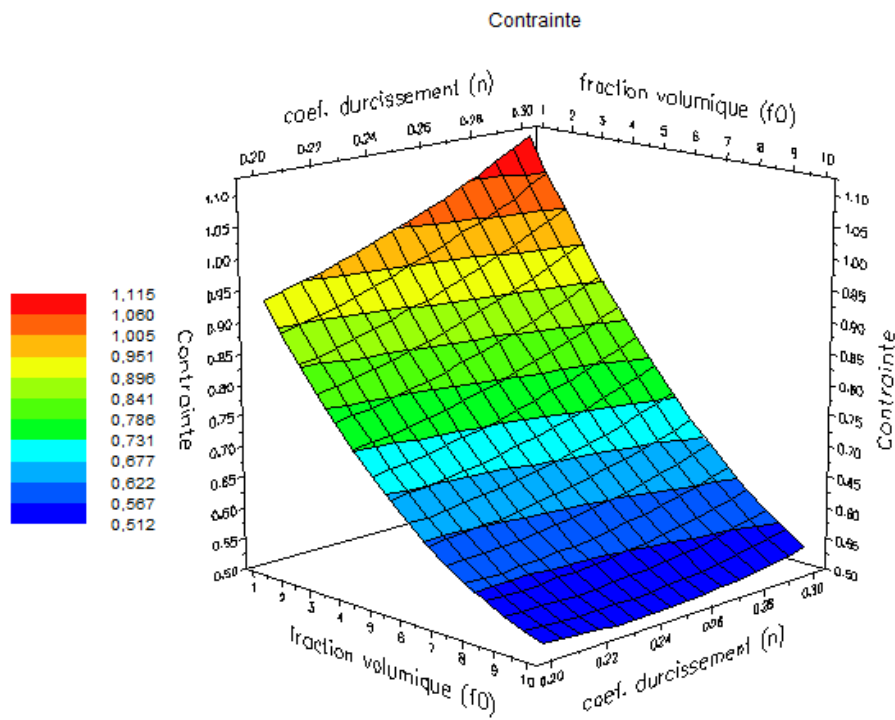
En examinant la figure.VI.5, nous observons l'effet de la fraction volumique de la cavité sur la contrainte maximale équivalente de coalescence. En analysant ces résultats, on peut dire que l'augmentation de la fraction volumique engendre une diminution considérable de la contrainte maximale équivalente. Soulignons que l'instabilité plastique menant à la chute brutale de la contrainte intervenant à la fin du processus de déformation peut être attribuée au phénomène de coalescence due à une interaction rapide entre les vides, causée par la striction des ligaments. La chute de contrainte est plus ou moins rapide selon la fraction volumique initiale du vide imposé à la cellule.

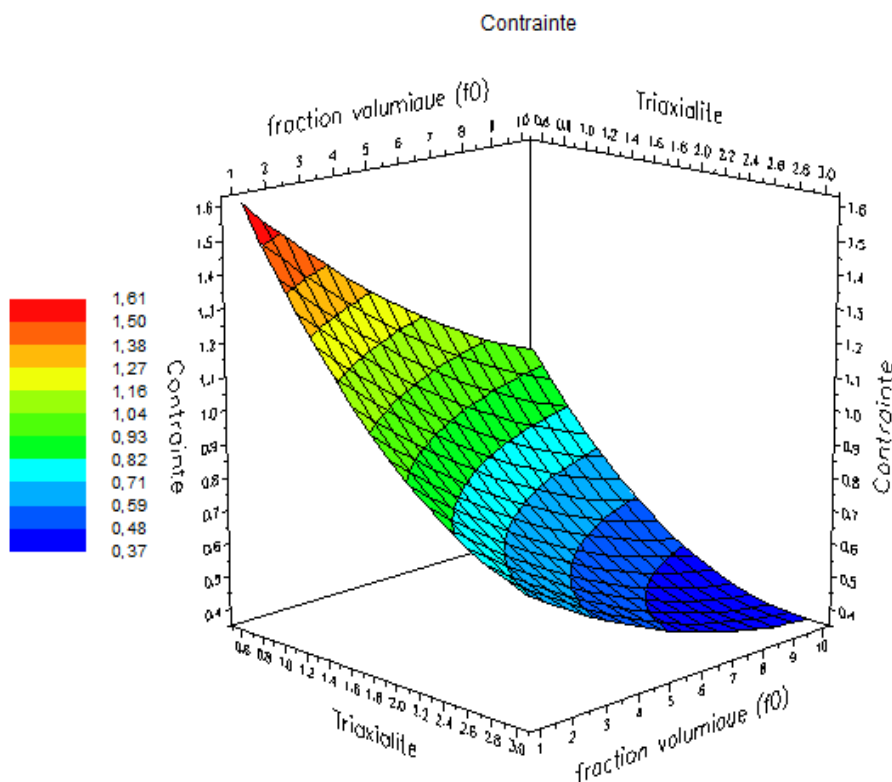


*Figure VI.5 : Evolution de la contrainte équivalente maximale de coalescence en fonction de la fraction volumique de la cavité*

### VI.5.2 Analyse d'effets par interaction de facteurs

Dans cette étape d'analyse nous prenons en compte cette fois-ci une interaction entre deux facteurs tout en gardant le troisième facteur constant. La figure VI.6 illustre les trois dimensions, elle présente la variation de la contrainte de coalescence en fonction de l'interaction des trois facteurs.

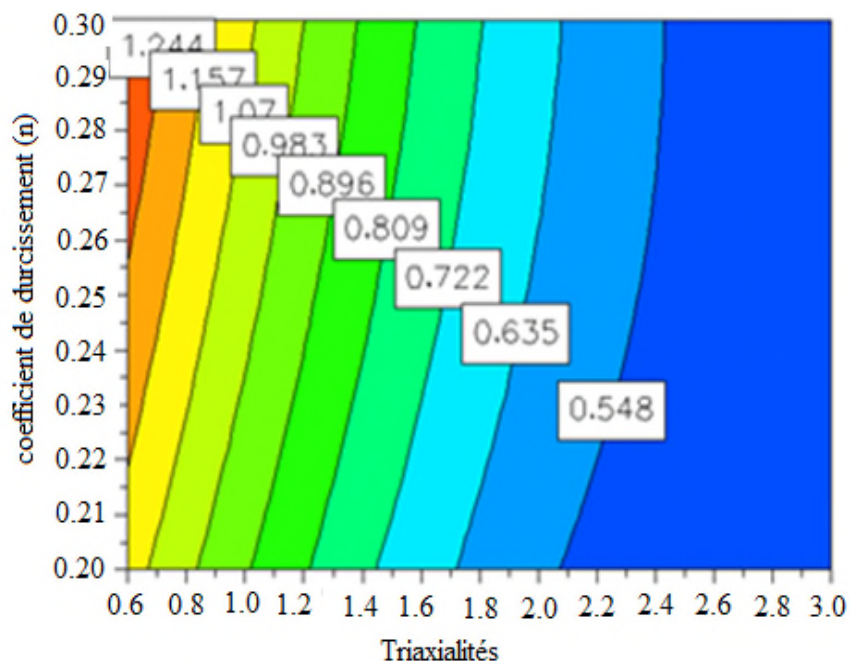




**Figure VI.6** Effets d'interaction des trois facteurs d'entrés sur la réponse

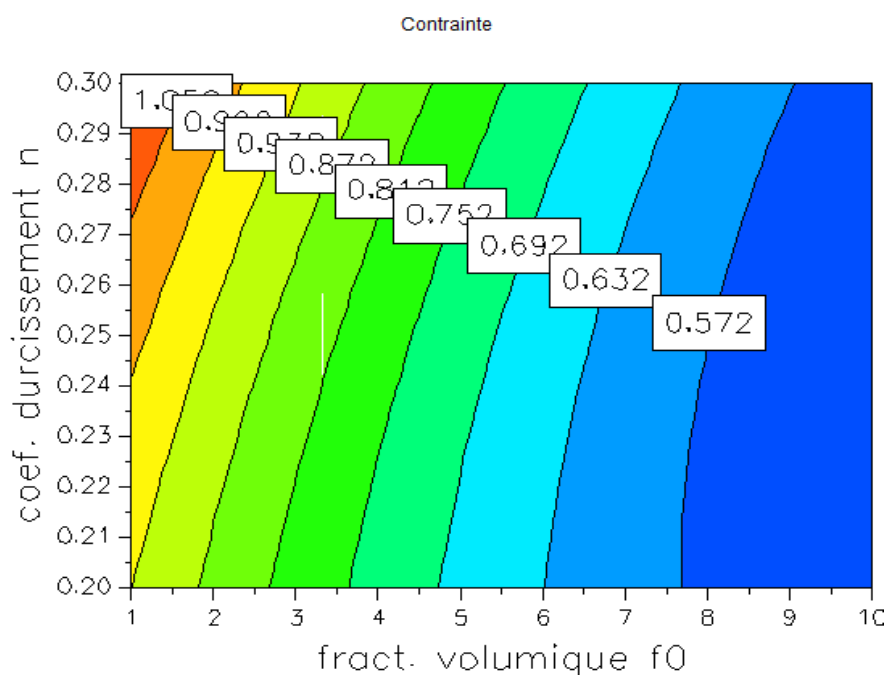
Les figures IV 7-9 ci-dessous sont des iso courbes représentant la projection des surfaces sur les plans. Selon la figure VI.7, à l'augmentation du taux de la triaxialité des contraintes, il y aura une contrainte équivalente maximale qui se diminue jusqu'à atteindre une valeur minimale de 0.548, ceci est valable quelle que soit la valeur du coefficient de durcissement ( $n$ ), mais si l'on diminue la triaxialité et l'on augmentant la valeur de ( $n$ ) nous atteindrons des valeurs maximales de contrainte équivalente de coalescence.

La figure VI.8 représente l'effet de deux facteurs, la fraction volumique de la cavité et le coefficient de durcissement sur la contrainte équivalente de coalescence. Les résultats obtenus montrent que plus on augmente la fraction volumique de cavité, plus on enregistre une contrainte équivalente de coalescence qui se diminue jusqu'à atteindre une valeur minimale de 0.572. À noter que, la contrainte de coalescence sera maximale pour un taux volumique de cavité  $f_0$  comprise entre (1 - 1.5) et un coefficient de durcissement ( $n$ ) qui varie entre 0.275 - 0.3.

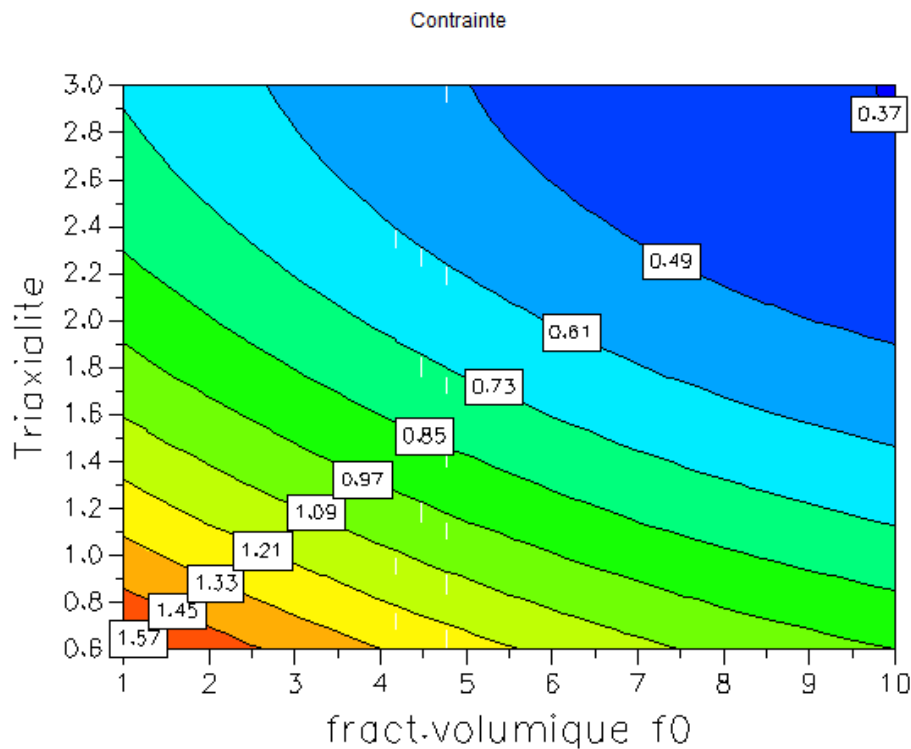


**Figure VI.7 :** interaction entre la triaxialité et le coefficient de durcissement

La figure.VI.9 illustre la variation de la contrainte équivalente de coalescence en fonction de la fraction volumique de la cavité et la triaxialité des contraintes. La diminution à la fois de la triaxialité de contrainte et le volume de la cavité enregistre une élévation de la contrainte équivalente de coalescence. Cela signifie que la contrainte équivalente de coalescence sera maximale si le volume de la cavité varie entre (1 – 2.5) et le taux de triaxialité des contraintes variées entre (0.6 - 0.9).



**Figure VI.8** interaction entre la fraction volumique et le coefficient de durcissement



*Figure.VI.9 interaction entre la triaxialité et la fraction volumique*

### VI.5.3 Analyse des effets du modèle sur la réponse

Le diagramme de la figure.VI.10 présente les effets de toutes les combinaisons des facteurs effectuées (linéaires, croisés et quadratiques), dans l'ordre décroissant de leur importance en valeur absolue. En analysant ces résultats, on peut estimer que les facteurs dominants sur la contrainte équivalente de coalescence sont dans l'ordre suivant :

1. Triaxialité (T)
2. fraction de la cavité ( $f_0$ )
3. coefficient de durcissement ( $n$ )

### VI.5.4 Modèles mathématiques

Le plan d'expérience utilisé dans cette étude est un plan complet quadratique, c'est-à-dire qu'on traite avec un modèle mathématique du second degré, le tableau 2 présente les coefficients des différents paramètres et leurs interactions. Le modèle mathématique proposé par le plan d'expérience « MODDE 5.0 » est exprimé comme suit :



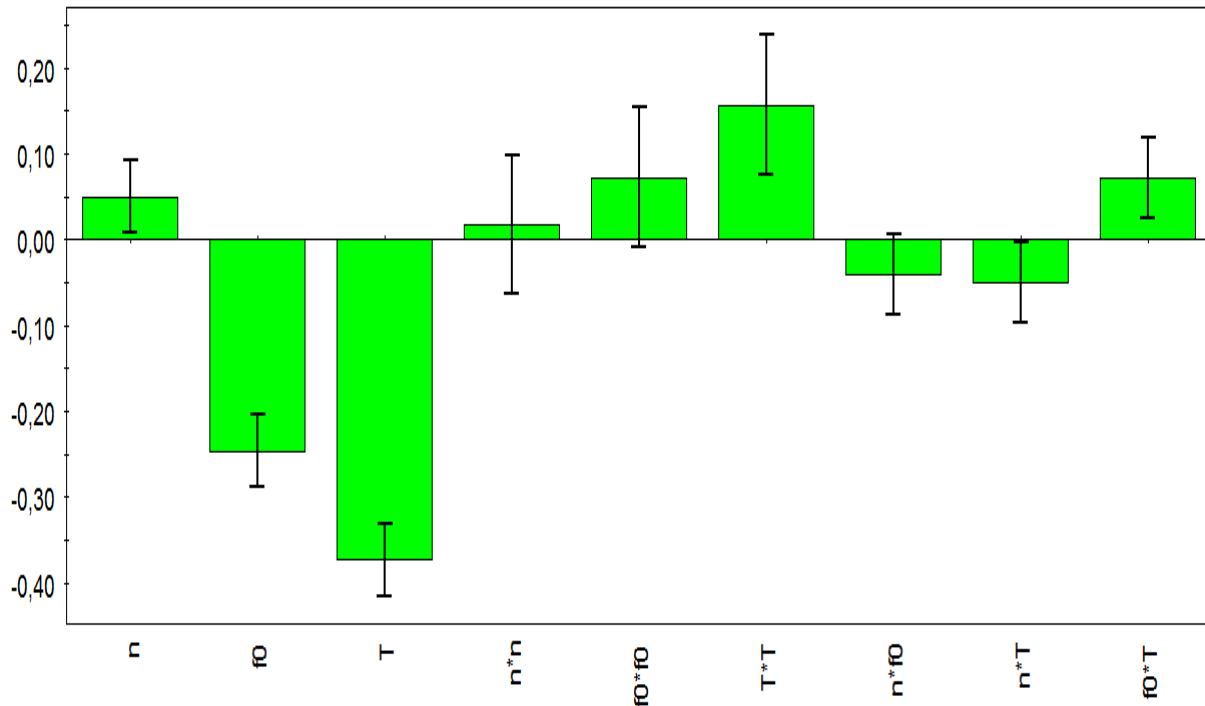
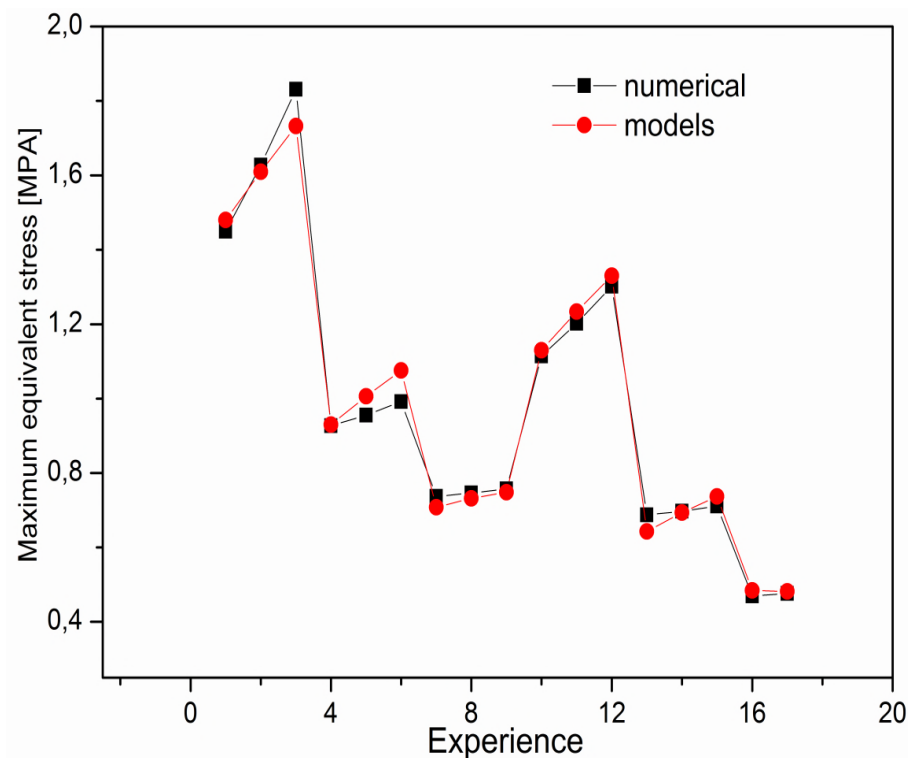


Figure.VI.10 : effets des combinaisons des facteurs (linéaires, croisés et quadratiques)

$$\sum_{eq}^{max} = 0,682231 + (-0,376164)T + (0,0566674)n + (-0,232106)f_0 + (-0,0530854)T.n + (0,06295)T.f_0 + (-0,0235251)n.f_0 + (0,172984)T^2 + (-0,013496)n^2 + (0,0929151)f_0^2 \quad (VI.10)$$

équation	Coeff. SC	Std. Err.	P	Conf. int(±)
Constant	0,682231	0,0167076	9,69E-21	0,0348514
N	0,0566674	0,0103121	2,23E-05	0,0215108
T	-0,376164	0,0103121	8,99E-20	0,0215108
f0	-0,232106	0,0103121	1,12E-15	0,0215108
N*N	-0,013496	0,0167076	0,428722	0,0348514
T*T	0,172984	0,0167076	1,76E-09	0,0348514
f0*f0	0,0929151	0,0167076	1,92E-05	0,0348514
N*T	-0,0530854	0,0126297	0,00043743	0,0263452
N*f0	-0,0235251	0,0126297	0,0772639	0,0263452
T*f0	0,06295	0,0126297	7,13E-05	0,0263452
N = 30	Q2 = 0,974		Cond. n <sub>0</sub> . = 3,9922	
DF = 20	R2 = 0,99		Y-miss = 0	
	R2 Adj. = 0,986		RSD = 0,0438	
	Conf. lev. = 0,95			

**Tableau VI.2** valeur du modèle mathématique

**Figure.VI.11** Comparaisons entre les valeurs numérique de la ( $\Sigma_{eq}$ ) et celles obtenue par le modèle mathématique

### VI.5.5 Validation du modèle

La validité du modèle développé peut également être tirée de la figure VI.11 qui présente la relation entre les valeurs calculées numériquement et prédites à partir du modèle proposé. Cette courbe indique que le modèle mathématique développé montre un bon accord entre les valeurs calculées et estimées des réponses.

## VI.6 Modélisation et critère d'endommagement

### VI.6.1 Optimisation

L'étude de l'influence de différents paramètres sur la contrainte équivalente de coalescence, nécessite d'aborder un stade d'optimisation de cette contrainte. Il consiste à déterminer les valeurs optimales de la triaxialité des contraintes, la fraction volumique de la cavité et le coefficient de durcissement. Le tableau VI.3, illustre les résultats de la modélisation et de l'optimisation des facteurs d'entrée qui ont contribué à maximiser la contrainte équivalente de coalescence des vides dans le mélange d'élastomère PBT/PTMO.

Factor	Role	Value	Low Limit	High Limit	Response	Criteria	Weight	Min	Target	Max
n	Free		0,2	0,3	1	Contrainte	Maximiz	1	1,69533	1,83767
f0	Free		1	10						
T	Free		0,6	3						

1	2	3	4	5	6
n	f0	T	Contrainte	iter	log(D)
0,2956	1,0002	0,6	1,7511	380	-0,4323
0,29	1,0002	0,6	1,732	287	-0,2588
0,29	1,0002	0,6	1,732	330	-0,2586
0,2909	1,0002	0,6	1,7349	443	-0,2833
0,2814	1	0,6	1,7035	556	-0,0515
0,3	1,0061	0,6009	1,7652	426	-0,5863
0,2956	1,0002	0,6	1,7511	380	-0,4323
0,2954	1,0001	0,6	1,7504	374	-0,4253

*Tableau VI.3 valeurs optimales du MODDE.5*

## VI.7 Conclusion

Notre travail s'est basé sur l'optimisation de certains paramètres sur l'endommagement par cavitation du PBT/PTMO, pour préciser la prépondérance des facteurs d'entrés et de déterminer leurs effets interactionnelles sur la réponse. Dans ce contexte, la méthodologie des plans d'expériences a traité principalement l'influence de trois facteurs, à savoir le rapport de triaxialité des contraintes, la fraction volumique du vide et le coefficient de durcissement sur la contrainte équivalente de coalescence. À travers cette technique d'optimisation, nous avons déterminé l'ordre d'influence de ces trois facteurs sur l'endommagement du matériau. Le modèle mathématique obtenu, a marqué une meilleure prédiction de l'influence de ces trois paramètres d'entrée sur la contrainte maximale de coalescence des vides. L'optimisation par la méthode des plans d'expérience peut être un moyen performant et fiable pour prédire l'évolution de la coalescence des vides dans les matériaux polymères, surtout dans le cas où le facteur d'entrée du système sera supérieur à 2.

## CONCLUSION GENERALE

### *Conclusions et perspectives*

L'endommagement plastique du Poly butylène téréphtalate (**PBT**) a été analysé à différents taux de triaxialité des contraintes, testé sous une charge uni-axiale avec des éprouvettes plates entaillées, dans le but d'imposer des valeurs spécifiques de triaxialité des contraintes dans la section transversale médiane et dans des conditions de contrainte planes. Le matériau a également été testé avec un système de mesure optique pour contrôler l'évolution du taux de déformation. Afin de décrire quantitativement l'endommagement de PBT, on a déterminé l'évolution de la déformation volumique, avec une décomposition d'une élasticité linéaire et des évolutions volumiques couplées à une déformation de cisaillement. Il a été constaté pour tous les tests, que le matériau a subi des changements de volume significatifs lors de la déformation favorisée par des valeurs élevées du rapport de triaxialité des contraintes. Globalement, la diminution de l'endommagement dans notre polymère s'explique par l'évolution de la déformation volumique de la microstructure du PBT. Cependant, cette évolution dépend de l'effet de triaxialité. Nous concluons qu'il y a un endommagement plus important pour une triaxialité plus élevée.

A partir d'une étude de détermination de l'endommagement par l'effet de la triaxialité sur le thermoplastique PBT, il a été montré aussi à travers deux approches complémentaires, macroscopique basée sur des essais de traction mécanique avec des mesures de déformation volumique et une approche thermomécanique basée sur des analyses thermomécaniques telles que «DSC et DMA», que le mélange du thermoplastique avec de l'élastomère a amélioré considérablement les propriétés mécaniques telles que la rigidité et la ductilité. Additivement aux propriétés physiques du PBT, nous avons enregistré une élévation du taux de dissipation d'énergie, l'amortissement et la température de services du mélange.

Alors que pour la déformation de ce mélange d'élastomère PBT-PTMO au-dessus de sa température de transition vitreuse, il s'accompagne d'un blanchissement lors des premiers stades du chargement. Ce phénomène est observé également dans plusieurs polymères notamment le PBT, PP, PE ou le POM. Il est généralement attribué à la création de microcavités au sein du matériau. L'essai de traction à différentes vitesses de déformation, nous apprend que ce changement de coloration est lié à l'état relaxé de la phase amorphe. En outre, il a été démontré qualitativement que les processus d'endommagement qui ont contribué à l'apparition de la déformation plastique sont la déformation volumique élastique et la déformation volumique par cavitation.

Suite aux tests de vieillissement physique effectués sur le mélange d'élastomère, nous avons remarqué que les températures de fusion pendant le vieillissement par rapport à l'échantillon non vieilli étaient pratiquement constantes, à l'exception d'une diminution de l'enthalpie de fusion et de cristallisation ( $\Delta H$ ) à (48h). Nous avons noté notamment à 48h et une semaine de vieillissement une petite variation de la température de cristallisation.

Nous nous sommes ensuite intéressés au comportement du mélange sous sollicitation monotone afin d'étudier l'endommagement du mélange d'élastomère PBT/PTMO. A cet effet, nous avons utilisé un VER contenant un vide sphérique à son centre, pour simuler la coalescence de la cavité et analysé son influence sur le comportement macroscopique de ce mélange d'élastomère en introduisant trois paramètres d'endommagement. Dans le but d'étudier la compétition de la cavitation avec ces paramètres, nous avons analysé le VER pour différents taux de triaxialité des contraintes, du volume de vide et le coefficient de durcissement. Cette étude a permis de confirmer d'autres résultats en littérature de l'effet de ces trois facteurs sur l'endommagement des polymères. Ce modèle de VER reproduit bien les effets de la coalescence, mais néglige l'effet de l'adoucissement et le durcissement du matériau, ainsi qu'il ne prend pas en considération l'existence des cavités secondaires.

Enfin, la dernière partie s'intéresse plus particulièrement aux résultats de la modélisation réalisée au chapitre V, sur l'endommagement par cavitation du mélange élastomère PBT/PTMO. Sur la base d'une prépondérance par la méthodologie des plans d'expérience de ces paramètres de l'endommagement choisi, nous avons remarqué que la triaxialité des contraintes a un effet majeur sur la contrainte de coalescence des cavités par rapport aux autres facteurs.

Au terme de cette thèse, plusieurs points restent à développer. Ils concernent le passage de l'échelle macroscopique à l'échelle microscopique. Sur ce point, on s'est restreint jusqu'à présent à une cellule élémentaire qui comporte une seule cavité sphérique au centre. Il serait peut être intéressant d'étudier le comportement macroscopique par une cellule qui comporte plusieurs cavités réparties aléatoirement. Pour le modèle viscoplastique utilisé décrivant l'écroutissage, nous pourrions dans le futur vérifier d'autres modèles comme les modèles hyper-élastiques destinés aux élastomères, parce que le Poly butylène téréphtalate (PBT) a un comportement ductile et a donné de bons résultats de miscibilité et d'homogénéité de la microstructure avec de l'élastomère.

***ANNEXE***

## **A. Méthodologie des plans d'expériences**

### **A.1. Introduction**

La recherche a été un des axes fondamentaux de progression des entreprises ces dix dernières années. Les progrès réalisés couvrent l'ensemble des domaines, depuis l'organisation de l'entreprise jusqu'au pilotage des procédés, en passant par des nouvelles relations entre les clients et les fournisseurs. Chaque secteur de l'entreprise est concerné et il est devenu impossible pour une entreprise d'assurer la qualité de ses produits ou de ses services sans une organisation efficace fondée sur un système qualité structuré.

La qualité se construit autour d'un système qualité qui apporte la stabilité et sur lequel chaque outil prendra sa place. La normalisation internationale ISO 9000 apporte aux industriels une aide précieuse pour l'établissement de ce système qualité. Les outils et les méthodes « Qualité » permettent de construire - pas à pas – la qualité des produits et des services. La méthode des plans d'expériences représente un outil parmi d'autres qui permet d'améliorer de façon importante la qualité des produits et des procédés.

L'amélioration permanente, pour répondre à la demande toujours plus précise des consommateurs, a poussé les industriels à faire évoluer les concepts et les outils de la qualité. Si nous regardons le chemin parcouru depuis la dernière guerre, nous constatons deux évolutions :

- Le premier est le stade de la vie du produit auquel on recherche la qualité ;
- La deuxième est une évolution vers plus de mesures.

La qualité à la conception s'établit principalement lorsqu'on définit les paramètres du produit et les tolérances qu'on admet sur ces valeurs.

Pour aborder cette phase dans les meilleures conditions, il faut au concepteur un outil lui permettant de mesurer l'importance de chacun des paramètres. Ces paramètres sont généralement nombreux et difficilement modélisables par les lois classiques de la physique. Le concepteur a donc besoin d'une méthode expérimentale, peu coûteuse en expérience qui lui permettra rapidement de mesurer l'influence de chacun des paramètres et ainsi de les fixer aux valeurs les plus favorables. Les plans d'expériences vont fournir une méthode sans équivalent pour aider le concepteur dans cette phase fondamentale.

Ainsi, les plans d'expériences offrent à l'ingénieur et au technicien une méthodologie de conduite d'essais qui s'inscrit parfaitement dans le processus de qualité à tous les stades de la vie d'un produit :



- Au stade de la conception pour permettre de fixer les paramètres de façon optimale.
- Au stade de la production comme complément indispensable des méthodes de Maîtrise Statistique des Procédés (M.S.P.) ou Statistical Process Control (S.P.C.).

Dans toutes les entreprises, et quel que soit le secteur d'activité, le technicien ou l'ingénieur est amené à comprendre comment réagit un **système** en fonction des différents **facteurs** qui sont susceptibles de le modifier. Pour vérifier l'évolution du processus, il mesure une **réponse**, et à partir de différents essais, il va tenter d'établir des relations de cause à effet entre la (ou les) réponse(s) et les différents facteurs (figure A.1).

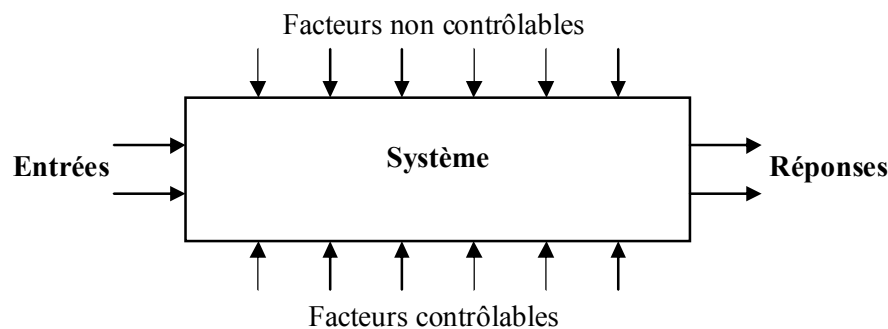


Figure A.1 : Environnement du système

Parmi les facteurs, on distinguera :

- Les facteurs contrôlables qui dépendent directement du choix.
- Les facteurs non contrôlables qui varient indépendamment des choix (conditions climatiques, environnement d'utilisation...).
- Les facteurs d'entrées telles que la matière première dans un processus de fabrication.

Il n'est pas simple de réaliser de telles relations entre réponse et facteurs, surtout s'il existe des interactions entre les facteurs ; les plans d'expériences permettent de réaliser ce type de relation, en minimisant le nombre d'expériences tout en maximisant la précision du résultat.

La méthode des plans d'expériences n'est pas une technique nouvelle. Elle date en fait du début du siècle avec les travaux de Fisher (1925). D'abord utilisé dans un cadre agricole, maintenant très répandus dans les domaines de l'industrie électronique, de la métallurgie, des

processus chimiques,...etc. et ils sont devenus en quelques sortes la vedette des méthodes de contrôle du processus, notamment depuis l'apparition des travaux de docteur Taguchi .

## **A.2 Plans factoriels**

L'étude d'un phénomène peut, le plus souvent, être schématisé de la manière suivante : On s'intéresse à une grandeur  $Y$  que nous appellerons par la suite Réponse qui dépend d'un grand nombre de variables,  $(x_1, x_2, \dots, x_n)$  que nous appellerons Facteurs.

La modélisation mathématique consiste à trouver une fonction  $(f)$  telle que  $Y = f(x_1, x_2, \dots, x_n)$ . Une méthode classique d'étude consiste en la mesure de la réponse  $Y$  pour plusieurs valeurs de la variable  $(x_i)$  tout en laissant fixe la valeur des  $(n - 1)$  autres variables. On itère alors cette méthode pour chacune des variables. Ainsi, par exemple, si nous avons 4 variables et si l'on décide de donner 5 valeurs expérimentales à chacune d'elles, nous sommes conduits à effectuer  $(5^4 = 625)$  expériences). Ce nombre élevé dépasse les limites de faisabilité tant en temps qu'en coût. Il faut donc réduire le nombre d'expériences à effectuer sans pour autant perdre la qualité des résultats recherchés. Le traitement de ces résultats se fait à l'aide du calcul statistique et de l'analyse de la variance.

## **A.3. Concepts fondamentaux : effets, interactions**

Les plans d'expériences factoriels à deux niveaux sont les plus simples, ils sont aussi les plus utiles car ils forment la base de tous les débuts d'étude. Les premiers résultats obtenus grâce à ces plans peuvent toujours être complétés par de nouvelles expériences permettant d'atteindre le degré de précision et d'information recherché.

Nous allons d'abord décrire le cas simple du plan  $2^2$ , commençons par expliquer cette notation :

- le 2 en exposant signifie qu'il y a deux facteurs étudiés ;
- l'autre 2 signifie que chaque facteur prend deux niveaux.

Cette notation se généralise immédiatement pour un plan comportant l'étude de  $k$  facteurs prenant chacun deux niveaux, donc il s'agit d'un plan  $2^k$ .

On peut donner une représentation géométrique du domaine d'étude (figure A.2). Chaque point de ce domaine représente des conditions opératoires possibles donc une expérience que l'opérateur pourrait réaliser.

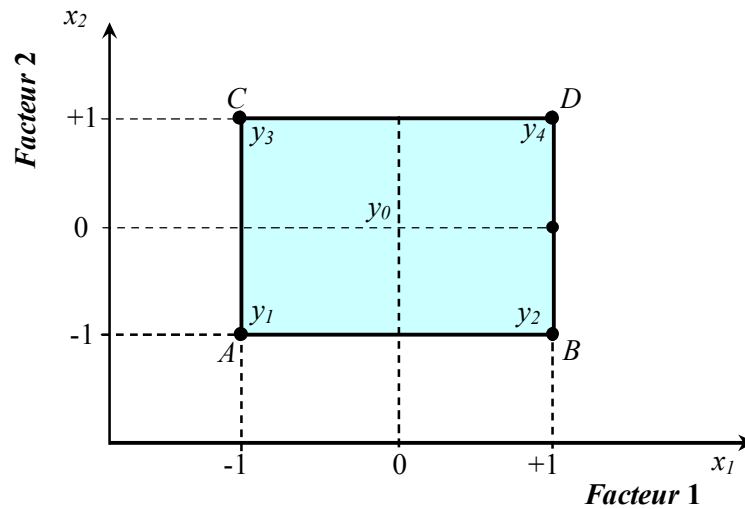


Figure A.2 : Définition du domaine d'étude

Le choix des meilleures expériences est le problème fondamental de l'expérimentateur. En l'absence de toute information sur la fonction  $f$ , on se donne, a priori, une loi d'évolution de la réponse en fonction des variables. Comme on ne désire effectuer, dans un premier temps, que deux essais par facteur, soit deux niveaux par facteur, on adopte une loi du premier degré par rapport à chaque variable. Cette loi est la suivante pour les plans factoriels complets comportant deux facteurs :

$$Y = a_0 + a_1 x_1 + a_2 x_2 + a_{12} x_1 x_2 \quad (\text{A-1})$$

Avec ces hypothèses, on démontre que le meilleur emplacement des points expérimentaux se situe aux sommets du carré représentant le domaine d'étude : points A, B, C et D. La figure I-2 illustre les expériences à réaliser et le domaine d'étude. Mais cette représentation géométrique est commode pour comprendre le mécanisme des plans d'expériences, elle ne peut plus être employée dès que le nombre de facteurs est supérieur à trois.

Pour les espaces multidimensionnels, nous adopterons une représentation matricielle. Pour montrer la correspondance entre les deux représentations, géométrique et matricielle, nous allons expliquer la construction de la matrice d'expériences du plan  $2^2$  associée à la figure II-2. La matrice d'expériences est constituée de deux sous-tableaux : le premier définit les essais à réaliser et le second le domaine d'étude (Tableau A-1). Le premier sous-tableau comprend trois colonnes ; la première identifie les essais : ici par exemple : 1, 2, 3 et

4 ; la seconde et la troisième indiquent les coordonnées des points représentatifs des expériences prévues. Le deuxième sous tableau indique, en unités courantes, les valeurs des niveaux haut et bas de chacun des facteurs. À titre d'exemple, nous avons indiqué des tensions et des vitesses. Les deux représentations, géométrique et matricielle, sont équivalentes. Il faut savoir passer de l'une à l'autre pour bien interpréter les résultats des plans d'expériences.

<b>Essais à réaliser</b>		
<b>N° Essai</b>	<b>Facteur 1</b>	<b>Facteur 2</b>
1 (A)	-1	-1
2 (B)	+1	-1
3 (C)	-1	+1
4 (D)	+1	+1
<b>Domaine d'étude</b>		
<b>Niveau -</b>	60 tr/min	30 kV
<b>Niveau +</b>	90 tr/min	34 kV

Tableau A-1. Matrice d'expériences

### a- Effet d'un facteur

L'expérimentateur ayant réalisé les essais est en possession de quatre valeurs de la réponse:  $y_1, y_2, y_3$  et  $y_4$  ; Il a donc un système de quatre équations à quatre inconnues. Les inconnues étant les coefficients du modèle :  $a_0, a_1, a_2$  et  $a_{12}$ . ; En remplaçant dans la relation (A-1) les  $x_i$  par leur valeur du tableau II-1, on obtient :

$$y_1 = a_0 - a_1 - a_2 + a_{12} \quad (\text{A-2})$$

$$y_2 = a_0 + a_1 - a_2 - a_{12} \quad (\text{A-3})$$

$$y_3 = a_0 - a_1 + a_2 - a_{12} \quad (\text{A-4})$$

$$y_4 = a_0 + a_1 + a_2 + a_{12} \quad (\text{A-5})$$

La résolution de ce système donne :

$$a_0 = \frac{1}{4} (+y_1 + y_2 + y_3 + y_4) \quad (\text{A-6})$$

$$a_1 = \frac{1}{4}(-y_1 + y_2 - y_3 + y_4) \quad (\text{A-7})$$

$$a_2 = \frac{1}{4}(-y_1 - y_2 + y_3 + y_4) \quad (\text{A-8})$$

$$a_{12} = \frac{1}{4}(+y_1 - y_2 - y_3 + y_4) \quad (\text{A-9})$$

- Signification de  $a_0$

Si nous donnons à  $x_1$  et à  $x_2$  la valeur zéro, nous définissons le centre du domaine d'étude. La relation (II-1) devient alors :

$$y_0 = a_0 \quad (\text{A-10})$$

Le coefficient  $a_0$  est la valeur de la réponse au centre du domaine d'étude. La formule (I-6) montre également que  $a_0$  peut être considéré comme la moyenne des quatre réponses.

- Signification de  $a_1$

Donnons la valeur zéro à  $x_2$ , la relation (A-1) devient :

$$y = a_0 + a_1 x_1 \quad (\text{A-11})$$

Puis, donnons maintenant successivement à  $x_1$  les valeurs  $-1$  et  $+1$ , on obtient les deux réponses  $y_-$  et  $y_+$  :

$$y_- = +a_0 - a_1 \quad (\text{A-12})$$

$$y_+ = +a_0 + a_1 \quad (\text{A-13})$$

d'où :

$$a_1 = \frac{1}{2}(+y_+ - y_-) \quad (\text{A-14})$$

$y_-$  est la valeur de la réponse pour le point de coordonnées  $x_1 = -1$  et  $x_2 = 0$ , c'est-à-dire celle qui correspond au point milieu du segment AC (Figure A-4). Aucune expérience n'a été réalisée en ce point mais, si l'on utilise les relations (A-6) et (A-7), on vérifie que  $y_-$  est la moyenne des réponses au niveau bas du facteur 1, en effet :

$$y_- = +a_0 - a_1 \quad (\text{A-15})$$

ce qui donne :

$$y_- = \frac{1}{2}(+y_1 + y_3) \quad (\text{A-16})$$

On montrerait de même que  $y_+$  est la moyenne des réponses au niveau haut du facteur 1 :

$$y_+ = \frac{1}{2}(y_2 + y_4) \quad (\text{A-17})$$

$a_1$  est donc la demi-différence entre ces deux moyennes. On peut dire aussi que  $a_1$  représente la moitié de la variation de la réponse quand on passe du niveau bas au niveau haut du facteur 1.

Ce résultat est important car il donne la signification du coefficient  $a_1$ . C'est la variation de la réponse due au facteur 1 seul, quand on passe du centre du domaine d'étude au niveau haut de ce facteur ;  $a_1$  s'appelle l'effet du facteur 1.

On démontrerait de même que  $a_2$  est l'effet du facteur 2. Il est commode de représenter l'effet d'un facteur comme l'indique la figure A.3 où l'on fait appel au plan de coupe  $yox_1$  passant par  $x_2 = 0$  pour le facteur 1.

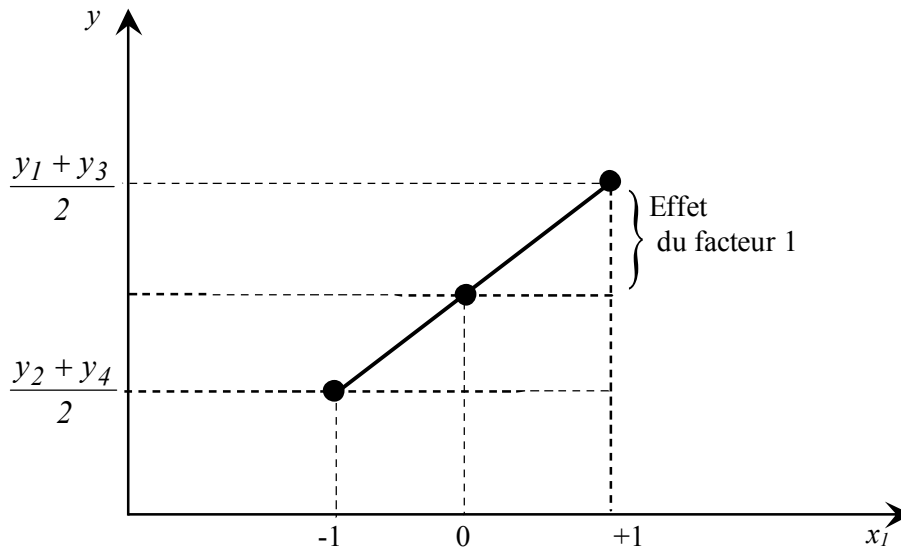


Figure A.3: Représentation de l'effet d'un facteur dans le plan vertical passant par  $x_2 = 0$

### b. Interaction entre deux facteurs

L'effet d'un facteur a été défini au niveau zéro de l'autre facteur. Mais on peut aussi définir l'effet d'un facteur pour un autre niveau de l'autre facteur. En particulier, on peut introduire l'effet d'un facteur soit au niveau  $-1$ , soit au niveau  $+1$  de l'autre facteur. L'effet du facteur 1 au niveau  $-1$  du facteur 2 est la demi-différence entre  $y_2$  et  $y_1$ , et l'effet du facteur 1 au niveau  $+1$  du facteur 2 est la demi-différence entre  $y_4$  et  $y_3$ . Si ces deux effets sont égaux, on dit qu'il n'y a pas d'interaction entre les facteurs. Si ces deux effets sont différents, on dit qu'il y a interaction entre les deux facteurs.

Il y a donc interaction lorsque l'effet d'un facteur dépend du niveau de l'autre facteur.

Par définition, la valeur de l'interaction, notée  $E_{12}$ , est la demi-différence entre l'effet du facteur 1,  $e_+$ , au niveau haut du facteur 2 et l'effet du facteur 1,  $e_-$ , au niveau bas du facteur 2.

On a :

$$E_{12} = \frac{I}{2}(e_+ - e_-) \quad (\text{A-18})$$

En développant :

$$E_{12} = \frac{I}{4}(+y_1 - y_2 - y_3 + y_4) \quad (\text{A-19})$$

Si l'on compare la valeur de  $E_{12}$  à celle de  $a_{12}$ , relation (A-9), on constate qu'elle lui est égale. Si l'on faisait le même calcul pour le facteur 2, en prenant les niveaux haut et bas du facteur 1, on trouverait que l'interaction est la même et qu'elle est égale, elle aussi, à  $a_{12}$ .

### c. Calcul de l'effet d'un facteur

Reprenons la formule (A-7) qui donne l'effet du facteur 1 :

$$a_1 = \frac{I}{4}(-y_1 + y_2 - y_3 + y_4) \quad (\text{A-20})$$

On constate :

- que toutes les réponses participent au calcul de l'effet ;
- que chaque réponse est précédée d'un signe et que la suite de ces signes est la même que celle de la colonne du facteur 1 dans la matrice d'expériences, soit  $- + - +$  ;
- qu'il y a un coefficient, (ici  $\frac{1}{4}$ ), dont le dénominateur est égal au nombre d'expériences effectuées.

On remarque qu'il en est de même pour le facteur 2, la suite des signes étant cette fois  $- - + +$ , c'est-à-dire celle de la colonne du facteur 2 dans la matrice d'expériences.

Le calcul pratique d'un effet est le suivant : on multiplie chaque réponse par le signe correspondant de la colonne du facteur ; on additionne les produits et l'on divise la somme par le nombre d'expériences.

### d. Matrice de calcul des effets

Nous venons de voir que les signes de la matrice d'expériences permettent de calculer les effets. Mais il faudrait pouvoir calculer aussi la moyenne et l'interaction.

#### ▪ Calcul de la moyenne

Le processus de calcul adopté pour les effets peut s'appliquer en utilisant une colonne de signes  $+$  puisqu'il n'y a que ce signe dans la formule (A-6).

▪ Calcul de l'interaction

La suite des signes de la relation (A-9) est + - - +. Chacun de ces signes provient du produit  $x_1x_2$  figurant dans la relation (A-1). On peut retrouver cette suite de signes de la manière suivante : on écrit, en colonne, les signes correspondant à  $x_1$  et à  $x_2$ , puis on applique la règle des signes :

$x_1$	$x_2$	$x_1x_2$
-	-	+
+	-	-
-	+	-
+	+	+

Cette colonne de signes permet de calculer l'interaction par le même mécanisme que celui déjà décrit pour les effets ou la moyenne.

Ayant la matrice d'expériences, il est facile de construire la matrice de calcul des effets (Tableau A-2) en ajoutant une colonne de signes + pour la moyenne et en calculant celle de l'interaction par la règle des signes.

N° Essai	Moyenne	Facteur 1	Facteur 2	Interaction 12
1	+1	-1	-1	+1
2	+1	+1	-1	-1
3	+1	-1	+1	-1
4	+1	+1	+1	+1

Tableau A-2. Matrice de calcul des effets

#### A.4. Plans factoriels complets

Il s'agit de plans pour lesquels on étudie  $k$  facteurs prenant chacun deux niveaux. Le modèle mathématique adopté a priori est un polynôme prenant en compte la moyenne, les effets de chaque facteur et toutes les interactions entre les facteurs pris deux à deux, trois à trois, quatre à quatre, ...,  $k$  à  $k$ .

$$y = a_0 + \sum a_i x_i + \sum a_{ij} x_i x_j + \sum a_{ijl} x_i x_j x_l + \dots + \sum a_{ij\dots k} x_i x_j \dots x_k \quad (\text{A-21})$$



Un plan  $2^k$  comporte  $2^k$  points expérimentaux qui se situent aux  $2^k$  sommets d'un hyper cube de  $k$  dimensions. Le modèle mathématique contient  $2^k$  coefficients qui sont les inconnues. L'ensemble des résultats d'un plan  $2^k$  conduit donc à un système de  $2^k$  équations à  $2^k$  inconnues, si l'on ne tient pas compte des erreurs expérimentales. Ce système peut se mettre sous la forme matricielle :

$$Y = Xa \quad (\text{A-22})$$

Avec :

$Y$  : vecteur ayant pour composantes les réponses de chaque essai, et représenté par une matrice colonne ( $2^k, 1$ ),

$a$  : vecteur ayant pour composantes la moyenne, les effets des facteurs et toutes les interactions, et représenté par une matrice colonne ( $2^k, 1$ ) ; ces composantes sont les inconnues que l'on cherche à déterminer,

$X$  : matrice carrée ( $2^k, 2^k$ ) composée de  $-1$  et  $+1$  suivant les valeurs des niveaux  $x_i$ .

Si nous reprenons le système du plan  $2^2$  du paragraphe I-5-1-1, la relation (A-22) prend la forme suivante :

$$\begin{bmatrix} y_1 \\ y_2 \\ y_3 \\ y_4 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} +1 & -1 & -1 & +1 \\ +1 & +1 & -1 & -1 \\ +1 & -1 & +1 & -1 \\ +1 & +1 & +1 & +1 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} a_0 \\ a_1 \\ a_2 \\ a_3 \end{bmatrix} \quad (\text{A-23})$$

La matrice  $X$  comporte une colonne de  $+1$  et trois colonnes ayant chacune autant de signes positifs que de signes négatifs. Si l'on multiplie signe à signe deux quelconques de ces quatre colonnes et que l'on additionne les produits, on trouve zéro. On dit que la matrice est orthogonale. Cette propriété est très importante car, dans ce cas, l'inverse de  $X$  est égale à la transposée de  $X$  divisée par le nombre de lignes  $n$ . En effet, d'après Hadamard, on a, pour ce type de matrice, la relation suivante :

$$X^t X = nI \quad (\text{A-24})$$

Avec  $n$  multiple de 4 et  $I$  représentant la matrice unité. L'opération compliquée de l'inversion d'une matrice se réduit alors à la transposition de  $X$ , soit un simple échange de lignes et de colonnes. Le calcul de l'inconnue  $a$  s'effectue à partir de la relation (A-22), en tenant compte de la relation :

$$\left. \begin{aligned} X^t Y &= X^t X a \\ X^t Y &= n I a \\ a &= \frac{I}{n} X^t Y \end{aligned} \right\} \quad (\text{A-25})$$

Cette relation est valable pour tous les plans factoriels complets. Chaque élément de  $\mathbf{a}$  est donc de la forme :

$$a_I = \frac{I}{n} [\pm y_1 \pm y_2 \pm y_3 \pm \dots \pm y_n] \quad (\text{A-26})$$

La relation semblable à (A-6), (A-7), (A-8) et (A-9) nous permet de généraliser le processus de calcul que nous avons décrit pour le plan  $2^2$  pour tous les plans  $2^k$ .

#### A.5. Plans factoriels fractionnaires

Les plans factoriels fractionnaires sont très utiles car ils permettent de diminuer considérablement le nombre des essais. Mais, pour que les résultats de tels plans soient correctement interprétés, il faut avoir la condition d'orthogonalité. Deux actions disjointes, i.e. ne comportant pas de facteur en commun, sont orthogonale si, à chaque niveau de l'une, tous les niveaux sont associés le même nombre de fois dans le plan d'expériences (figure A-4).

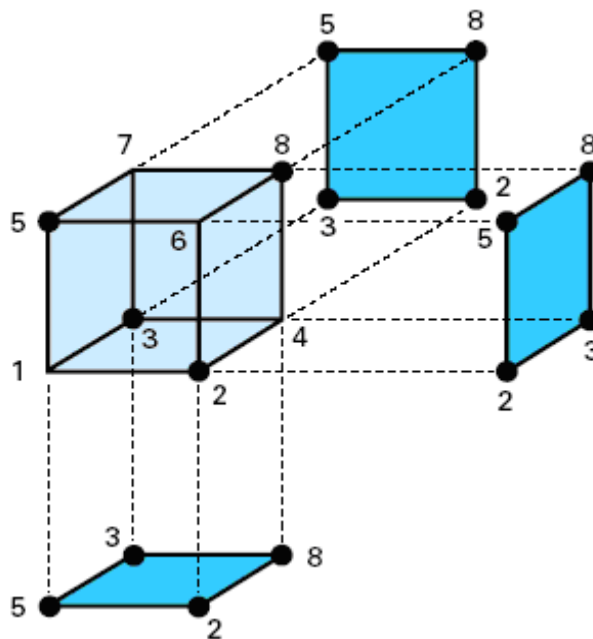


Figure A-4. Projection des points d'expériences d'un plan fractionnaire sur les faces du cube

Un plan d'expériences est orthogonal vis-à-vis du modèle si toutes les actions disjointes du modèle sont orthogonales dans le plan d'expériences.

Pour trois facteurs prenant deux niveaux, le plan complet est noté  $2^3$ . Il comporte huit essais.

Le plan fractionnaire, moitié du plan complet, n'a que quatre essais soit  $1/2 2^3$  ou  $2^{3-1}$  essais.

Chaque chiffre de cette notation a une signification :

- 3 signifie qu'il y a trois facteurs étudiés ;
- 2 signifie que chaque facteur prend deux niveaux ;
- 1 signifie qu'il y a un facteur supplémentaire par rapport au plan complet sur lequel est construit le plan de base.

Le plan de base  $2^3$  peut avoir un facteur supplémentaire, on le notera  $2^{4-1}$  : quatre facteurs étudiés, deux niveaux par facteur et un facteur supplémentaire.

Le plan de base  $2^3$  peut avoir deux facteurs supplémentaires, on le notera  $2^{5-2}$  : cinq facteurs étudiés, deux niveaux par facteur et deux facteurs supplémentaires.

Un plan fractionnaire à deux niveaux avec lequel on étudie k facteurs dont p supplémentaires se note  $2^{k-p}$ .

On prend l'exemple d'un plan complet  $2^3$  et écrivons la matrice d'expériences pour quatre essais : 2, 3, 5 et 8. Ces essais sont disposés comme l'indique la figure A-7 et leurs coordonnées conduisent à une matrice orthogonale.

La matrice d'expériences du plan fractionnaire est donnée par le tableau A-3 où les essais ont été volontairement mis dans un certain ordre.

N° essai	Facteur 1	Facteur 2	Facteur 3	Réponse
5	-1	-1	+1	$y_5$
2	+1	-1	-1	$y_2$
3	-1	+1	-1	$y_3$
8	+1	+1	+1	$y_8$
Niveau -	faible	faible	A	
Niveau +	forte	forte	B	

Tableau A-3 : Matrice d'expériences du plan fractionnaire du plan  $2^3$

Pour calculer les effets, on applique la même méthode que pour les plans complets : on multiplie les réponses par les signes correspondants des colonnes, on additionne ces produits et on divise leur somme par le nombre d'essais.

Comme conclusion de ce sous-chapitre que le modèle du premier degré permet de calculer la valeur de la réponse au centre du domaine d'étude. Il est facile de comparer cette valeur calculée à la mesure réelle effectuée en ce point. Si ces deux valeurs diffèrent peu, on peut considérer le modèle du premier degré comme valide; si elles diffèrent trop, il faut adopter un modèle polynomial du second degré. On réalise alors des expériences supplémentaires pour déterminer tous les coefficients de ce nouveau modèle.

Au lieu d'effectuer une seule mesure au centre du domaine, on peut en faire plusieurs. Cela permet d'obtenir une estimation de l'erreur expérimentale.

On remarquera que des mesures au point central introduisent un niveau supplémentaire d'étude des facteurs. Il y a maintenant trois niveaux par facteur :  $-1$ ,  $0$  et  $+1$ .

#### **A. 6 Plans d'expériences pour l'étude des surfaces de réponse**

Les plans d'expériences pour l'étude des surfaces de réponses sont apparus dans la seconde moitié du XX<sup>ème</sup> siècle. Leur construction permet de minimiser les incertitudes affectant les prédictions d'une réponse au sein d'un domaine expérimental.

Le nombre d'essais d'un plan d'expériences pour l'étude des surfaces de réponse croît rapidement en fonction du nombre de facteurs. Pour qu'un plan d'expériences constitue une stratégie efficace et économique, il convient donc de limiter le nombre de facteurs mise en œuvre. Ce constat conduit fréquemment à fixer à un niveau constant un nombre important de paramètres de réglage. Ce choix ne doit en aucun cas être fait au hasard. C'est pourquoi, les plans pour l'étude des surfaces de réponse succèdent généralement à une étape de criblage des facteurs, pour laquelle le recours à un dispositif expérimental présenté dans le paragraphe précédent.

Si la construction de la majorité des plans pour l'étude des surface de réponse peut s'effectuer à partir de règles simples, trouvant le plus souvent une justification géométrique, l'analyse des résultats d'essais requiert l'utilisation d'outil informatique, à la fois pour l'estimation des coefficients du modèle polynomial, ainsi une pour l'exploitation de ce dernier.

#### **A.7. Modèle polynomial du second degré**

Le modèle mathématique est analogue à la relation (I-21) à laquelle on ajoute un terme carré:

$$y = a_0 + \sum a_i x_i + \sum a_{ij} x_i x_j + \sum a_{ijl} x_i x_j x_l + \dots a_{i..k} x_{i..} x_k + \sum a_{ii} x_i^2 \quad (\text{A-27})$$

Dans le cas d'un plan à deux facteurs, la formule est la suivante :

$$y = a_0 + a_1 x_1 + a_2 x_2 + a_{12} x_1 x_2 + a_{11} x_1^2 + a_{22} x_2^2 \quad (\text{A-28})$$

Il y a donc six inconnues à déterminer.

Le plan d'expériences fournit un certain nombre de valeurs de la réponse  $y$ . L'interprétation du plan consiste donc à trouver les coefficients et, par la suite, résoudre un système de  $n$  équations (s'il y a  $n$  réponses) et  $p$  inconnues (s'il y a  $p$  coefficients). Il est commode d'écrire ce système sous forme matricielle sans tenant compte des erreurs expérimentales :

$$\underset{(n,1)}{y} = \underset{(n,p)}{X} \cdot \underset{(p,1)}{a} \quad (\text{A-29})$$

La résolution de ce système est généralement conduite selon la méthode des moindres carrés, et la solution est notée  $\hat{a}$ .

Cette solution est donnée par la formule suivante:

$$\hat{a} = (X^t X)^{-1} X^t y \quad (\text{A-30})$$

Le calcul de l'inconnue  $\hat{a}$  est beaucoup moins facile que pour les plans  $2^k$ . L'emploi d'un logiciel se révèle absolument nécessaire.

Il existe plusieurs types de plans du second degré. Nous allons décrire celui qui présente plusieurs avantages : c'est le plan composite.

### A.7.1. Plan composite centré

Le plan composite centré (Central Composite Design) fait partie des plans d'expériences pour l'étude des surfaces de réponses. Dans ce contexte, il s'agit sûrement des dispositifs expérimentaux les plus répandus dans la littérature anglo-saxonne. Leur usage est particulièrement destiné aux problèmes d'optimisation, quand la stratégie expérimentale conduit à construire et interpréter un modèle empirique, pour la recherche d'une solution dans le domaine expérimental.

La construction d'un plan composite centré proposée par George E. Box et K.B. Wilson peut se décomposer en trois parties :

- ◆ les  $2^k$  sommets du domaine sont définis à partir d'un plan factoriel à deux niveaux par facteur analogue à ceux que nous avons précédemment décrits;
- ◆ les points en étoile positionnés à une distance  $\pm\alpha$  du centre du domaine suivant les axes des facteurs figure (A- 4) sont destinés à l'estimation des termes carrés présents dans le modèle mathématique (A-28). L'ensemble des points en étoile constitue un dispositif au sein duquel on ne fait varier qu'un seul facteur à la fois. Il y a donc  $2k$  points en étoile.
- ◆ On effectue enfin  $n_0$  répétitions au centre du domaine. Le nombre de répétitions au point central dans les plans d'expériences pour l'étude des surfaces de réponse est généralement trois points.

La figure (A.5) représente un exemple d'un plan composite pour deux facteurs. Les points A, B, C et D sont les points d'un plan  $2^2$ . Le point E est le point central. Ce point peut être répliqué une ou plusieurs fois. Les points F, G, H et I sont les points axiaux. Ces quatre derniers points forment ce que l'on appelle le plan en étoile. Dans cet exemple, l'expérimentateur réalise 9 essais et doit déterminer 6 coefficients. Il faut donc résoudre un système de 9 équations à 6 inconnues. Le calcul est effectué à l'aide d'un logiciel approprié.

L'intérêt des plans composites réside dans le fait qu'ils prennent facilement la suite d'un premier plan factoriel dont les résultats sont inexplicables par un modèle du premier degré. Il suffit d'effectuer les expériences correspondantes aux points en étoile et de faire les calculs sur l'ensemble de toutes les expériences. Les plans composites sont parfaitement adaptés à l'acquisition progressive des résultats. Le nombre de niveaux d'un plan composite est de cinq par facteur : le point central, les deux niveaux du plan factoriel et les deux niveaux des points en étoile.

Les points en étoile sont sur les axes des facteurs. Mais quelles coordonnées faut-il leur donner?

Mettons-nous dans le cas idéal où tous les emplacements sont possibles et où les contraintes expérimentales ne gênent pas. La disposition des points expérimentaux dépend alors du critère d'optimalité que l'on choisit. En général, on s'arrange pour que les erreurs sur les coefficients du modèle soient les plus petites possibles ou qu'elles soient les mieux réparties.

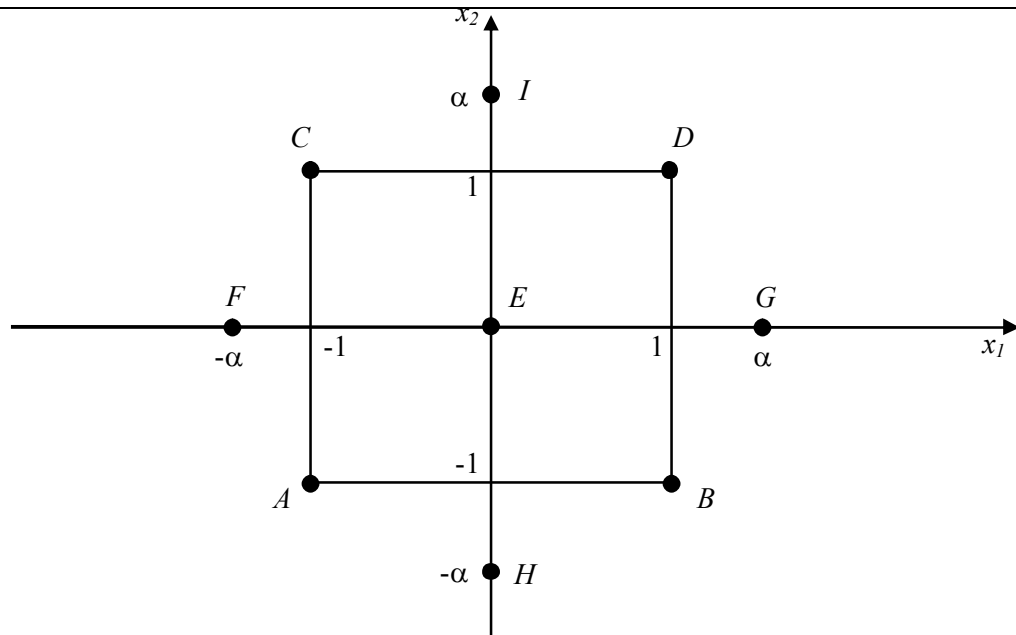


Figure A-5 : Représentation d'un plan composite pour l'établissement d'un modèle du second degré

### A.8 Logiciels des plans d'expérience

La plupart des logiciels qui traitent des plans d'expériences sont inclus dans des logiciels de statistiques. Les premiers logiciels de plans d'expériences étaient très pauvres et mal adaptés aux besoins des expérimentateurs. Depuis peu, un effort considérable a été entrepris par les informaticiens et les statisticiens pour que ces logiciels répondent mieux à l'esprit et aux besoins des expérimentateurs. Cette introduction s'est faite petit à petit sous la pression de la demande.

Ces logiciels sont encore très marqués par leur origine statistique et peuvent rebuter certains utilisateurs. Mais l'on constate un progrès constant vers l'amélioration, c'est-à-dire vers une meilleure prise en compte des exigences des expérimentateurs. Néanmoins, ces logiciels nécessitent tous une bonne connaissance de la méthode des plans d'expériences et ne peuvent pas être utilisés sans une formation solide aux plans d'expériences.

Ces logiciels comportent, en général, les chapitres suivants :

- Construction des plans d'expériences :

Plans factoriels complets, plans factoriels fractionnaires, plans à plus de deux niveaux (surfaces de réponse), plans de mélanges, plans D-optimaux ;

- Interprétation et analyse :

Calcul des effets, des interactions, des coefficients du modèle mathématique, modélisation, calcul des réponses prédites, analyse des résidus ;

- Représentations graphiques :

Diagramme des effets, diagramme des interactions, diagramme des résidus, diagramme de Daniel, courbes iso réponses en 2-D ou 3-D ;

- Aide :

Tutorial, aide en ligne, possibilité d'importer et d'exporter des fichiers de données dans différents formats, parfois hotline.

Parmi ces logiciels on cite le logiciel MODDE de la société Umetrics, qui est un logiciel spécialisé pour la construction et l'analyse de plans d'expériences. Il permet de bâtir et d'analyser des plans de criblage, en surface de réponse, Taguchi, de mélanges, D-optimaux, des plans multi variés « Onion Designs » ainsi que des plans comportant à la fois des composantes et des facteurs de procédés. Pour estimer les modèles, il utilise soit la méthode des moindres carrés usuelle (MLR) soit la méthode des moindres carrés partiels (PLS). Cela permet notamment d'ajuster un modèle reliant les variations de toutes les réponses aux facteurs en prenant en compte la structure de covariances.

La méthodologie de conduite des recherches et d'organisation des essais que nous avons décrite tout le long de ce chapitre apporte souplesse, précision, sûreté, gain de temps, économie d'argent dans toute expérimentation.

La démarche utilisée pour mener à bien, et dans les meilleures conditions, toute expérimentation peut être résumée dans trois grandes parties :

- 1- Le choix d'une méthode d'expérimentation.
- 2- L'analyse des résultats d'essais.

Dans le dernier point l'analyse appelle à la méthode des moindres carrés dont les mises en œuvre sont présentées dans les chapitres et ils sont illustrés dans les chapitres présentant l'optimisation du patch.



*Références bibliographiques*

- [1] H.H. Kausch, C.J.G. Plummer, Semicrystalline Polymers: Fracture Properties, *Encycl. Mater. Sci. Technol.* (2001) 8420–8427. doi:10.1016/b0-08-043152-6/01505-9.
- [2] Najia, F. de Technologie, Etude expérimentale et simulation numérique de l'effet de la triaxialité sur le comportement mécanique du PVC, S.D.L.D.S.-B.-A.Thèse. (2013).
- [3] C.Oudet, *structure et propriétés des polymères*, Masson,Par, 1994.
- [4] J.M. Haudin., Structure morphologiques des polymères semi-cristallins in: *Introduction à la mécanique des polymères*, Inst. Natl. Polytech. Lorraine. 97-115 (1995).
- [5] K.H. Storks, An Electron Diffraction Examination of Some Linear High Polymers, *J. Am. Chem. Soc.* 60 (1938) 1753–1761. doi:10.1021/ja01275a013.
- [6] J. Varga, Supermolecular structure of isotactic polypropylene, *J. Mater. Sci.* 27 (1992) 2557–2579. doi:10.1007/bf00540671.
- [7] L. Cangemi, Une approche méso-macro continue pour la modélisation du comportement des polymères semi-cristallins à usage structural A mesoscopic continuum modelling for the behaviour of semicrystalline polymers for structural applications, *Mécanique Ind.* 3 (2002) 557–570. doi:10.1016/s1296-2139(02)01201-0.
- [8] H.B.H. Hamouda, Endommagement et fissuration en fluage de Polyéthylène extrudé: approche globale -approche locale, Thèse, ENSMP. (2000).
- [9] B. Monasse, S. Queyroy, O. Lhost, Molecular Dynamics prediction of elastic and plastic deformation of semi-crystalline polyethylene, *Int. J. Mater. Form.* 1 (2008) 1111–1114. doi:10.1007/s12289-008-0174-1.
- [10] S. Castagnet, S. Girault, J.L. Gacougnolle, P. Dang, Cavitation in strained polyvinylidene fluoride: mechanical and X-ray experimental studies, *Polymer (Guildf)*. 41 (2000) 7523–7530. doi:10.1016/s0032-3861(00)00077-x.
- [11] F. Addiego, *Caractérisation de la variation volumique du polyéthylène au cours de la déformation plastique en traction et en fluage*, INPL, 2006.
- [12] C. G'sell, A. Dahoun, Evolution of microstructure in semi-crystalline polymers under large plastic deformation, *Mater. Sci. Eng. A.* 175 (1994) 183–199. doi:10.1016/0921-5093(94)91058-8.
- [13] A. Peterlin, Molecular model of drawing polyethylene and polypropylene, *J. Mater. Sci.* 6 (1971) 490–508. doi:10.1007/bf00550305.
- [14] A. Pawlak, Cavitation during tensile deformation of high-density polyethylene, *Polymer (Guildf)*. 48 (2007) 1397–1409. doi:10.1016/j.polymer.2006.12.054.
- [15] A. Galeski, Strength and toughness of crystalline polymer systems, *Prog. Polym. Sci.* 28 (2003) 1643–1699. doi:10.1016/j.progpolymsci.2003.09.003.
- [16] S. Castagnet, *Comportement mécanique du PVDF: compétition entre cavitation et écoulement visqueux*, Université de Poitiers, 1998.

- [17] L. Belec, Mise en évidence de la contribution des phases amorphe et cristalline du polyamide 12 autour de la transition vitreuse, Université de Poitiers, 1995.
- [18] S. Hillmansen, S. Hobeika, R.N. Haward, P.S. Leever, The effect of strain rate, temperature, and molecular mass on the tensile deformation of polyethylene, *Polym. Eng. Sci.* 40 (2000) 481–489. doi:10.1002/pen.11180.
- [19] L. Olasz, P. Gudmundson, Viscoelastic Model of Cross-Linked Polyethylene Including Effects of Temperature and Crystallinity, *Mech Time-Depend Mater.* 9 (2005) 23–44. doi:10.1007/s11043-005-9002-x.
- [20] L. Sinien, Y. Lin, Z. Xiaoguang, Q. Zongneng, Microdamage and interfacial adhesion in glass bead-filled high-density polyethylene, *J. Mater. Sci.* 27 (1992) 4633–4638. doi:10.1007/bf01165998.
- [21] A. Meddad, B. Fisa, Stress-strain behavior and tensile dilatometry of glass bead-filled polypropylene and polyamide 6, *J. Appl. Polym. Sci.* 64 (1997) 653–665. doi:10.1002/(sici)1097-4628(19970425)64:4<653::aid-app4>3.0.co;2-m.
- [22] T. Quatravaux, S. Elkoun, C. G'Sell, L. Cangemi, Y. Meimon, Experimental characterization of the volume strain of poly(vinylidene fluoride) in the region of homogeneous plastic deformation, *J. Polym. Sci. B Polym. Phys.* 40 (2002) 2516–2522. doi:10.1002/polb.10318.
- [23] D. Heikens, S.D. Sjoerdsma, W.J. Coumans, A mathematical relation between volume strain, elongational strain and stress in homogeneous deformation, *J Mater Sci.* 16 (1981) 429–432. doi:10.1007/bf00738633.
- [24] J.M. Gloaguen, J.M. Lefebvre, Plastic deformation behaviour of thermoplastic/clay nanocomposites, *Polymer (Guildf).* 42 (2001) 5841–5847. doi:10.1016/s0032-3861(00)00901-0.
- [25] F. Addiego, A. Dahoun, C. G'Sell, J.-M. Hiver, Characterization of volume strain at large deformation under uniaxial tension in high-density polyethylene, *Polymer (Guildf).* 47 (2006) 4387–4399. doi:10.1016/j.polymer.2006.03.093.
- [26] C. G'Sell, J.M. Hiver, A. Dahoun, A. Souahi, Video-controlled tensile testing of polymers and metals beyond the necking point, *J Mater Sci.* 27 (1992) 5031–5039. doi:10.1007/bf01105270.
- [27] S.I. Naqui, I.M. Robinson, Tensile dilatometric studies of deformation in polymeric materials and their composites, *J. Mater. Sci.* 28 (1993) 1421–1429. doi:10.1007/bf00363333.
- [28] V. Gaucher-Miri, C. Depecker, R. Seguela, Reversible strain-induced order in the amorphous phase of a low-density ethylene/butene copolymer, *J. Polym. Sci. B Polym. Phys.* 35 (1997) 2151–2159. doi:10.1002/(sici)1099-0488(19970930)35:13<2151::aid-polb15>3.0.co;2-3.
- [29] C. G'Sell, S.-L. Bai, J.-M. Hiver, Polypropylene/polyamide 6/polyethylene–octene elastomer blends. Part 2: volume dilatation during plastic deformation under uniaxial

- tension, *Polymer (Guildf)*. 45 (2004) 5785–5792. doi:10.1016/j.polymer.2004.06.020
- [30] S. Castagnet, Y. Deburck, Relative influence of microstructure and macroscopic triaxiality on cavitation damage in a semi-crystalline polymer, *Mater. Sci. Eng. A*. 448 (2007) 56–66. doi:10.1016/j.msea.2006.11.100.
- [31] P. Weiss, Toughened plastics, C. B. Bucknall, Applied Science Publishers, Ltd., London, 1977, 359pp., \$36.00., *J. Polym. Sci. Polym. Lett. Ed.* 16 (1978) 376. doi:10.1002/pol.1978.130160714.
- [32] H.G.H. van Melick, L.E. Govaert, H.E.H. Meijer, Localisation phenomena in glassy polymers: influence of thermal and mechanical history, *Polymer (Guildf)*. 44 (2003) 3579–3591. doi:10.1016/s0032-3861(03)00089-2.
- [33] P.B. Bowden, J.A. Jukes, The plastic flow of isotropic polymers, *J. Mater. Sci.* 7 (1972) 52–63. doi:10.1007/bf00549550.
- [34] R. Quinson, J. Perez, M. Rink, A. Pavan, Components of non-elastic deformation in amorphous glassy polymers, *J. Mater. Sci.* 31 (1996) 4387–4394. doi:10.1007/bf00356465.
- [35] H. Eyring, Viscosity, Plasticity, and Diffusion as Examples of Absolute Reaction Rates, *J. Chem. Phys.* 4 (1936) 283. doi:10.1063/1.1749836.
- [36] R.E. Robertson, Theory for the Plasticity of Glassy Polymers, *J. Chem. Phys.* 44 (1966) 3950. doi:10.1063/1.1726558.
- [37] A.S. Argon, A theory for the low-temperature plastic deformation of glassy polymers, *Philos. Mag.* 28 (1973) 839–865. doi:10.1080/14786437308220987.
- [38] C. G'Sell, J.J. Jonas, Yield and transient effects during the plastic deformation of solid polymers, *J. Mater. Sci.* 16 (1981) 1956–1974. doi:10.1007/bf00540644.
- [39] E.M. Arruda, M.C. Boyce, A three-dimensional constitutive model for the large stretch behavior of rubber elastic materials, *J. Mech. Phys. Solids*. 41 (1993) 389–412. doi:10.1016/0022-5096(93)90013-6.
- [40] M.C. Boyce, O. Yeh, S. Socrate, K. Kear, K. Shaw, Micromechanics of cyclic softening in thermoplastic vulcanizates, *J. Mech. Phys. Solids*. 49 (2001) 1343–1360. doi:10.1016/s0022-5096(00)00077-6.
- [41] J.M.H. C. G'Sell, *Lois de comportement mécanique des polymères solides*, 1995.
- [42] E.M. Arruda, M.C. Boyce, R. Jayachandran, Effects of strain rate, temperature and thermomechanical coupling on the finite strain deformation of glassy polymers, *Mech. Mater.* 19 (1995) 193–212. doi:10.1016/0167-6636(94)00034-e.
- [43] A.A. Silano, K.D. Pae, J.A. Sauer, Effects of hydrostatic pressure on shear deformation of polymers, *J. Appl. Phys.* 48 (1977) 4076. doi:10.1063/1.323433.
- [44] R.N. Haward, B.M. Murphy, E.F.T. White, Relationship between compressive yield and tensile behavior in glassy thermoplastics, *J. Polym. Sci. A-2 Polym. Phys.* 9 (1971) 801–

814. doi:10.1002/pol.1971.160090503.
- [45] J. Koplik, A. Needleman, Void growth and coalescence in porous plastic solids, *Int. J. Solids Struct.* 24 (1988) 835–853. doi:10.1016/0020-7683(88)90051-0.
- [46] N. Ouali, M.B.M. Mangion, J. Perez, Experimental and theoretical analysis of both the small- and the large-stress mechanical response of poly(methyl methacrylate), *Philos. Mag. A.* 67 (1993) 827–848. doi:10.1080/01418619308213962.
- [47] J. Richeton, S. Ahzi, K.S. Vecchio, F.C. Jiang, 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, *Int. J. Solids Struct.* 43 (2006) 2318–2335. doi:10.1016/j.ijsolstr.2005.06.040.
- [48] S. Rabinowitz, I.M. Ward, J.S.C. Parry, The effect of hydrostatic pressure on the shear yield behaviour of polymers, *J Mater Sci.* 5 (1970) 29–39. doi:10.1007/bf00553440.
- [49] W.A. Spitzig, O. Richmond, Effect of hydrostatic pressure on the deformation behavior of polyethylene and polycarbonate in tension and in compression, *Polym. Eng. Sci.* 19 (1979) 1129–1139. doi:10.1002/pen.760191602.
- [50] S. Rabinowitz, P. Beardmore, Cyclic deformation and fracture of polymers, *J. Mater. Sci.* 9 (1974) 81–99. doi:10.1007/bf00554758.
- [51] P. Combette, I. Ernoult. *Physique des polymères – Tome II : Propriétés mécaniques*, Edition Hermann, 2005.
- [52] J. Delmotte, *Modélisation numérique de la déchirure ductile en milieu bidimensionnel à l'aide d'une approche locale*, Université de Technologie de Compiègne, 1992.
- [53] J.R. Rice, D.M. Tracey, On the ductile enlargement of voids in triaxial stress fields\*, *J. Mech. Phys. Solids.* 17 (1969) 201–217. doi:10.1016/0022-5096(69)90033-7.
- [54] A.L. Gurson, porous rigid-plastic materials containing rigid inclusions - yield function, plastic potential, and void nucleation, *Phys. Metall. Fract.* (1978) 357–364. doi:10.1016/b978-0-08-022138-0.50058-7.
- [55] S. Socrate, Micromechanics of toughened polycarbonate, *J. Mech. Phys. Solids.* 48 (2000) 233–273. doi:10.1016/s0022-5096(99)00037-x.
- [56] P.A. Lovell, M.M. Sherratt, R.J. Young, Mechanical Properties and Deformation Micromechanics of Rubber-Toughened Acrylic Polymers, *Adv. Chem.* (1996) 211–232. doi:10.1021/ba-1996-0252.ch015.
- [57] L. Corté, F. Beaume, L. Leibler, Crystalline organization and toughening: example of polyamide-12, *Polymer (Guildf)*. 46 (2005) 2748–2757. doi:10.1016/j.polymer.2005.01.040.
- [58] B. Abramoff, J. Covino, Transmittance and mechanical properties of PMMA-fumed silica composites, *J. Appl. Polym. Sci.* 46 (1992) 1785–1791. doi:10.1002/app.1992.070461009.

- [59] S. Benmesli, F. Riahi, Dynamic mechanical and thermal properties of a chemically modified polypropylene/natural rubber thermoplastic elastomer blend, *Polym. Test.* 36 (2014) 54–61. doi:10.1016/j.polymertesting.2014.03.016.
- [60] R. Pożdżała, Z. Rosłaniec, Rheological Properties of Multi- block Ether-Ester Copolymers, *Kautschuk Gummi Kunststoffe.* 10 (1999) 656–662.
- [61] T. Saleesung, P. Saeoui, C. Sirisinha, Mechanical and thermal properties of thermoplastic elastomer based on low density polyethylene and ultra-fine fully-vulcanized acrylonitrile butadiene rubber powder (UFNBRP), *Polym. Test.* 29 (2010) 977–983. doi:10.1016/j.polymertesting.2010.08.008.
- [62] F. Zaïri, M. Naït-Abdelaziz, K. Woznica, J.-M. Gloaguen, Constitutive equations for the viscoplastic-damage behaviour of a rubber-modified polymer, *Eur. J. Mech. - A/Solids.* 24 (2005) 169–182. doi:10.1016/j.euromechsol.2004.11.003.
- [63] M. L. Chocinski-Arnault, F. Touchard, M. Comyn, Comparaison microstructurale et mécanique de polypropylènes-choc recyclés : suivi de l'endommagement et du vieillissement, *Comptes Rendus des JNC 17 - (2011)* 1–10.
- [64] F. C, Endommagement des polymers chocs: modélisation micromécaniques et comportement à la rupture, l'université Louis Pasteur de Strasbourg, 2000.
- [65] R. Schirrer, C. Fond, A. Lobbrecht, Volume change and light scattering during mechanical damage in polymethylmethacrylate toughened with core-shell rubber particles, *J. Mater. Sci.* 31 (1996) 6409–6422. doi:10.1007/bf00356243.
- [66] C.B. Bucknall, D.S. Ayre, D.J. Dijkstra, Detection of rubber particle cavitation in toughened plastics using thermal contraction tests, *Polymer (Guildf).* 41 (2000) 5937–5947. doi:10.1016/s0032-3861(99)00799-5.
- [67] C.B. Bucknall, R. Rizzieri, D.R. Moore, Detection of cavitation in rubber phase of rubber toughened poly (methyl methacrylate) using thermal contraction measurements, *Plast. Rubber Compos.* 30 (2001) 183–189. doi:10.1179/146580101101541615.
- [68] A. van der Wal, A.J.J. Verheul, R.J. Gaymans, Polypropylene–rubber blends: 4. The effect of the rubber particle size on the fracture behaviour at low and high test speed, *Polymer (Guildf).* 40 (1999) 6057–6065. doi:10.1016/s0032-3861(99)00215-3.
- [69] A.F. Yee, D. Li, X. Li, The importance of constraint relief caused by rubber cavitation in the toughening of epoxy, *J. Mater. Sci.* 28 (1993) 6392–6398. doi:10.1007/bf01352202.
- [70] P. Sivaraman, N.R. Manoj, V.S. Mishra, R.D. Raut, a. B. Samui, B.C. Chakraborty, Thermoplastic copolyether ester elastomer toughened polycarbonate blends 3. Microhardness and abrasion resistance of the blends, *Polym. Test.* 24 (2005) 241–243. doi:10.1016/j.polymertesting.2004.07.006.
- [71] R.W. Meyer, L.A. Pruitt, The effect of cyclic true strain on the morphology, structure, and relaxation behavior of ultra-high molecular weight polyethylene, *Polymer (Guildf).* 42 (2001) 5293–5306. doi:10.1016/s0032-3861(00)00626-1.
- [72] S.L. Bai, M. Wang, Plastic damage mechanisms of polypropylene/polyamide

- 6/polyethelene octene elastomer blends under cyclic tension, *Polymer (Guildf)*. 44 (2003) 6537–6547. doi:Doi 10.1016/S0032-3861(03)00739-0.
- [73] R. Schirrer, R. Lenke, J. Boudouaz, Study of mechanical damage in rubber-toughened poly(methyl methacrylate) by single and multiple scattering of light, *Polym. Eng. Sci.* 37 (1997) 1748–1760. doi:10.1002/pen.11823.
- [74] S. Géhant, R. Schirrer, Multiple light scattering and cavitation in two phase tough polymers, *J. Polym. Sci. Part B Polym. Phys.* 37 (1999) 113–126. doi:10.1002/(sici)1099-0488(19990115)37:2<113::aid-polb2>3.0.co;2-p.
- [75] C. Fond, R. Schirrer, Influence of crack speed on fracture energy in amorphous and rubber toughened amorphous polymers, *Plast. Rubber Compos.* 30 (2001) 116–124. doi:10.1179/146580101101541525.
- [76] D. Dompas, G. Groeninckx, Toughening behaviour of rubber-modified thermoplastic polymers involving very small rubber particles: 1. A criterion for internal rubber cavitation, *Polymer (Guildf)*. 35 (1994) 4743–4749. doi:10.1016/0032-3861(94)90727-7.
- [77] C.B. Bucknall, A. Karpodinis, X.C. Zhang, A model for particle cavitation in rubber-toughened plastics, *J. Mater. Sci.* 29 (1994) 3377–3383. doi:10.1007/bf00352036.
- [78] S. Géhant, *Endommagement Mécanique par Cavitation dans des Polymères Amorphes à Deux Phases : Mesures par Diffusion Multiple de la Lumière et Analyse Micro-Mécanique*, Université Louis Pasteur, Strasbourg., 2000.
- [79] C. Fond, A. Lobbrecht, R. Schirrer, Polymers toughened with rubber microspheres: an analytical solution for stresses and strains in the rubber particles at equilibrium and rupture, *Int. J. Fract.* 77 (1996) 141–159. doi:10.1007/bf00037234.
- [80] M.F. Butler, A.M. Donald, A.J. Ryan, Time resolved simultaneous small- and wide-angle X-ray scattering during polyethylene deformation—II. Cold drawing of linear polyethylene, *Polymer (Guildf)*. 39 (1998) 39–52. doi:10.1016/s0032-3861(97)00226-7.
- [81] F.J. Guild, R.J. Young, A predictive model for particulate-filled composite materials, *J. Mater. Sci.* 24 (1989) 298–306. doi:10.1007/bf00660971.
- [82] A.A. Benzerga, “Micromechanics of coalescence in ductile fracture”, *J. Mech. Phys. Solids*, Vol. 50, No. 6, pp. 1331-1362, 2002.
- [83] A.A. Benzerga, J. Besson, A. Pineau, “Anisotropic ductile fracture. Part I: experiments”, *Acta Mater.*, Vol. 52, No. 15, pp. 4623-4638, 2004.
- [84] A.A. Benzerga, J. Besson, A. Pineau, “Anisotropic ductile fracture. Part II: theory”, *Acta Mater.*, Vol. 52, No. 15, pp. 4639-4650, 2004.
- [85] X. Gao, T. Wang, J. Kim, “On ductile fracture initiation toughness: Effects of void volume fraction, void shape and void distribution”, *Int. J. Sol. Struct.*, Vol. 42, No. 18-19, pp.5097-5117, 2005.
- [86] S.M. Keralavarma, A.A. Benzerga, “A constitutive model for plastically anisotropic solids with non-spherical voids”, *J. Mech. Phys. Solids*, Vol. 58, No. 6, pp. 874-901,

- 2010.
- [87] S.M. Keralavarma, S. Hoelscher, A.A. Benzerga, "Void growth and coalescence in anisotropic plastic solids", *Int. J. Sol. Struct.*, Vol. 48, No. 11-12, pp. 1696-1710, 2011.
- [88] A.E. Huespe, A. Needleman, J. Oliver, P.J. Sánchez, "A finite thickness band method for ductile fracture analysis", *Int. J. Plast.*, Vol 25, No. 12, pp. 2349-2365, 2009.
- [89] M.R. and D.J.S. Ayatollahi, Effect of Constraint on the Initiation of Ductile Fracture in Shear Loading M.R. Ayatollahi<sup>1</sup>, D.J. Smith<sup>2</sup> and M.J. Pavier<sup>2</sup> 1, 263 (2004) 183–188. doi:10.4028/www.scientific.net/KEM.261-263.183.
- [90] Y. Li, D.G. Karr, "Prediction of ductile fracture in tension by bifurcation, localization, and imperfection analyses", *Int. J. Plast.*, Vol. 25, No. 6, pp. 1128-1153, 2009.
- [91] Y. Li, T. Wierzbicki, "Prediction of plane strain fracture of AHSS sheets with post-initiation softening", *Int. J. Sol. Struct.*, Vol. 47, No. 17, pp. 2316-2327, 2010.
- [92] H. Li, M.W. Fu, J. Lu, H. Yang, "Ductile fracture: Experiments and computations", *Int. J. Plast.*, Vol. 27, No. 2, pp. 147-180, 2011.
- [93] H. Stumpf, J. Makowski, K. Hackl, "Dynamical evolution of fracture process region in ductile materials", *Int. J. Plast.*, Vol. 25, No. 5, pp. 995-1010, 2009.
- [94] S. Akhtar, H.L. Khan, "A new approach for ductile fracture prediction on Al 2024-T351 alloy", *Int. J. Plast.*, Vol. 35, pp. 1-12, 2012.
- [95] L. Lecarme, C. Tekoglu, T. Pardoen, "Void growth and coalescence in ductile solids with stage III and stage IV strain hardening", *Int. J. Plast.*, Vol. 27, No. 8, pp. 1203-1223, 2011.
- [96] T.K. H.J.KIM\*, Effect of stresses triaxiality on fracture behaviour of Al-Li system Alloy, Trans Tech Publications, Switzerland. 222 (1996) 1499–1504. doi:10.4028/www.scientific.net/MSF.217-222.1499.
- [97] M. Dunand, D. Mohr, "Optimized butterfly specimen for the fracture testing of sheet materials under combined normal and shear loading", *Eng. Fract. Mech.*, Vol. 78, No. 17, pp. 2919-2934, 2011.
- [98] S.M. Graham, T. Zhang, X. Gao, M. Hayden, "Development of a combined tension torsion experiment for calibration of ductile fracture models under conditions of low triaxiality", *Int. J. Mech. Sci.*, Vol. 54, No.1, pp. 172-181, 2012.
- [99] C. G'sell, J.J. Jonas, "Determination of the plastic behavior of solid polymers at constant true strain rate", *J. Mater. Sci.*, Vol. 14, No. 3, pp. 583-591, 1979
- [100] C. G'sell, Plastic Deformation of Amorphous and Semi-Crystalline Materials, Eds., B. Escaig, C. G'sell, Les Editions de Physique, Les Ulis, pp. 375, 1982.
- [101] C. G'sell, N.A. Aly-Helal, J.J. Jonas, "Effect of stress triaxiality on neck propagation during the tensile stretching of solid polymers", *J. Mater. Sci.*, Vol. 18, No. 6, pp. 1731-



- 1742, 1983.
- [102] C. G'ssell, A. Marquez-Lucero, P. Gilormini, J.J. Jonas, "Flow localization and determination of constitutive relations in highly drawn polymers: one dimensional eulerian formulation of the effect of stress triaxiality", *Acta. Metall. Mater.*, Vol. 33, No. 5, pp. 759-770, 1985.
- [103] C. G'ssell, "Instabilités de déformation pendant l'étirage des polymères solides", *J. PHYS.III*, Vol. 23, No. 6, pp. 1085-1101, 1988.
- [104] C. G'ssell, J.M. Hiver, A. Dahoun, A. Souahi, "Video-controlled tensile testing of polymers and metals beyond the necking point", *J. Mater. Sci.*, Vol. 27, No. 18, pp. 5031-5039, 1992.
- [105] C. G'ssell, J.M. Hiver, F. Gehin, "Real-time quantitative determination of volume variations in polymers under plastic strain", In: *Deformation, Yield and Fracture of Polymers*, The Institute of Metals, London, pp. 371-374, 2000.
- [106] C. G'ssell, J.M. Hiver, A. Dahoun, "Experimental characterization of deformation damage in solid polymers under tension, and its interrelation with necking", *Int. J. Sol. Struct.*, Vol. 39, No.13-14, pp. 3857-3872, 2002.
- [107] M. Schultz, "Microstructural aspects of failure in semi-crystalline polymers", *Polym. Eng. Sci.*, Vol. 24, pp. 770-785, 1984.
- [108] M.C. Boyce, D.M. Parks, A.S. Argon, "Large inelastic deformation of glassy polymers. Part I: rate dependent constitutive model", *Mech. Mater.*, Vol. 7, No. 1, pp. 15-33, 1988.
- [109] S.G. Bardenhagen, M.G. Stout, G.T. Gray, "Three-dimensional, finite deformation, viscoplastic constitutive models for polymeric materials", *Mech. Mater.*, Vol. 25, No. 4, pp. 235-253, 1997.
- [110] T.A. Tervoort, R.J.M. Smit, W.A.M. Brekelmans, L.E. Govaert, "A constitutive equation for the elasto-viscoplastic deformation of glassy polymers", *Mech. Time-Depend Mat.*, Vol. 1, No. 3, pp. 269-291, 1997.
- [111] J.M. Gloaguen, J.M. Lefebvre, "Plastic deformation behaviour of thermoplastic / clay nanocomposites", *Polymer*, Vol 42, No.13, pp. 5841-5847, 2001.
- [112] L. Anand, M.E. Gurtin, "A theory of amorphous solids undergoing large deformations, with application to polymeric glasses", *Int. J. Sol. Struct.*, Vol. 40, No. 6, pp. 1465-1487, 2003.
- [113] A.D. Mulliken, M.C. Boyce, "Mechanics of the rate-dependent elastic-plastic deformation of glassy polymers from low to high strain rates", *Int. J. Sol. Struct.*, Vol. 43, No. 5, pp. 1331-1356, 2006.
- [114] J. Richeton, S. Ahzi, K.S. Vecchio, F.C. Jiang, A. Makradi, "Modeling and validation of the large deformation inelastic response of amorphous polymers over a wide range of temperatures and strain rates", *Int. J. Sol. Struct.*, Vol. 44, No. 24, pp. 7938-7954, 2007.
- [115] S. Castagnet, Y. Deburck, "Relative influence of microstructure and macroscopic

- triaxiality on cavitation damage in a semi-crystalline polymer”, *Mat. Sci. Eng. A- Struct.*, Vol. 448, No. 1, pp. 56-66, 2007.
- [116] G. Boisot, L. Laiarinandrasana, J. Besson, C. Fond, G. Hochstetter, “Experimental investigations and modeling of volume change induced by void growth in polyamide 11”, *Int. J. Sol. Struct.*, Vol. 48, No. 19, pp. 2642-2654, 2011.
- [117] A.R. Ragab, M.A. Mahmoud, S.A. Khorshied, “Yielding of commercial poly(vinyl chloride) pipe material”, *J. Appl. Polym. Sci.*, Vol. 81, No. 4, pp. 991-999, 2001.
- [118] H. Mae, “Characterization of material ductility of PP/EPR/talc blend under wide range of stress triaxiality at intermediate and high strain rates”, *J. Appl. Polym. Sci.*, Vol. 111, No. 2, pp. 854-868, 2009.
- [119] Y. Bai, Y. Bao, T. Wierzbicki, “Fracture of prismatic aluminum tubes under reverse straining”, *Int. J. Impact Eng.*, Vol. 32, No. 5, pp. 671-701, 2005.
- [120] Y. Bai, T. Wierzbicki, “A new model of metal plasticity and fracture with pressure and Lode dependence”, *Int. J. Plast.*, Vol. 24, No. 6, pp. 1071-1096, 2007.
- [121] Y. Bai, “Effect of loading history on necking and fracture”, PhD thesis, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, MA, 2008.
- [122] M. Brünig, S. Gerke, “Simulation of damage evolution in ductile metals undergoing dynamic loading conditions”, *Int. J. Plast.*, Vol. 27, No. 10, pp. 1598-1617, 2011.
- [123] L. Malcher, F.M. Andrade Pires, J.M.A. Cesar de Sa, “An assessment of isotropic constitutive models for ductile fracture under high and low stress triaxiality”, *Int. J. Plast.*, Vol. 30-31, pp. 81-115, 2012.
- [124] L. Meng, D. Matthieu, M. Dirk, “Experiments and modeling of anisotropic alumina extrusions under multi-axial loading – Part II: Ductile fracture”, *Int. J. Plast.*, Vol. 32-33, pp. 36-58, 2012.
- [125] J. Zhou, X. Gao, M. Hayden, J.A. Joyce, “Modeling the ductile fracture behavior of an aluminum alloy 5083-H116 including the residual stress effect”, *Eng. Fract. Mech.*, Vol. 85, pp. 103-116, 2012.
- [126] A.L. Gurson, “Continuum theory of ductile rupture by void nucleation and growth-I Yield criteria and flow rules for porous ductile media”, *J. Eng. Mater-T. Asme*, Vol. 99, pp. 2-15, 1977.
- [127] A.L. Gurson, “Porous rigid-plastic materials containing rigid inclusions-yield function, plastic potential and void nucleation”, In. *Proc. Int. conf. Fracture*. ed. D.M.R. Taplin, Vol. 2A, pp. 357-364, Pergamon Press, 1977.
- [128] Y. Sun, D. Wang, “A lower bound approach to the yield loci of porous materials”, *Acta Mech. Sin.*, Vol. 5, No. 3, pp. 237-243, 1989.
- [129] A. Lazzeri, C.B. Bucknall, “Dilatational bands in rubber-toughened polymers”, *J. Mater. Sci.*, Vol. 28, No. 24, pp. 6799-6808, 1993.

- [130] H.Y. Jeong, J. Pan, "A macroscopic constitutive law for porous solid with pressure-sensitive matrices and its implications to plastic flow localization", *Int. J. Sol. Struct.*, Vol. 32, No. 24, pp. 3669-3691, 1995.
- [131] A.C. Steenbrink, E. Van der Giessen, P.D. Wu, "Void growth in glassy polymers", *J. Mech. Phys. Solids*, Vol. 45, No. 3, pp. 405-437, 1997.
- [132] H.Y. Jeong, "A new yield function and a hydrostatic stress-controlled void nucleation model for porous solids with pressure-sensitive matrices", *Int. J. Sol. Struct.*, Vol. 39, No. 5, pp. 1385-1403, 2002.
- [133] Th. Seelig, E. Van der Giessen, "Localized plastic deformation in ternary polymer blends", *Int. J. Sol. Struct.*, Vol. 39, No. 13-14, pp. 3505-3522, 2002.
- [134] P.J. Sanchez, A.E. Huespe, J. Oliver, "On some topics for the numerical simulation of ductile fracture", *Int. J. Plast.*, Vol. 24, No. 6, pp. 1008-1038, 2008.
- [135] D. Heikens, S.D. Sjoerdsma, W.J. Coumans, "A mathematical relation between volume strain, elongational strain and stress in homogenous deformation", *J. Mater. Sci.*, Vol. 16, No. 2, 429-432, 1981.
- [136] P.W. Bridgman, *Studies in Large Plastic Flow and Fracture*, McGraw- Hill, New York, 1952.
- [137] J. Chen, W. Huang, Q. Xu, Y. Tu, X. Zhu, and E. Chen, "PBT-b-PEO-b-PBT triblock copolymers: Synthesis, characterization and double-crystalline properties," *Polymer*, vol. 54, no. 25, pp. 6725–6731, 2013.
- [138] C. G'Sell, J.M. Hiver, A. Dahoun, A. Souahi. Video- Controlled tensile testing of polymers and metals beyond the necking point. *J. Mater. Sci.*, 27, 5031-5039, 1992.
- [139] R. Hill. On the discontinuous plastic states with special reference to localized necking in thin sheet. *J. Mech. Phys. Solids*, 1, 19-30, 1952.
- [140] A. Szymczyk, E. Senderek, J. Nastalczyk, and Z. Roslaniec, "New multiblock poly(ether-ester)s based on poly(trimethylene terephthalate) as rigid segments," *European Polymer Journal*, vol. 44, no. 2, pp. 436 – 443, 2008.
- [141] P. Archondouli and N. . Kalfoglou, "Compatibilization and properties of PBT/PU polymeric alloys," *Polymer*, vol. 42, no. 8, pp. 3489–3502, 2001.
- [142] T. Saleesung, P. Saeoui, and C. Sirisinha, "Mechanical and thermal properties of thermoplastic elastomer based on low density polyethylene and ultra-fine fully-vulcanized acrylonitrile butadiene rubber powder (UFNBRP)," *Polymer Testing*, vol. 29, no. 8, pp. 977–983, 2010.
- [143] C.W. Shyang, *Tensile and Thermal Properties of Poly ( Butylene Terephthalate )*, 3 (2008) 1–13.
- [144] S. Fakirov, *Handbook of Condensation Thermoplastic Elastomers*. 2006.
- [145] C. G'Sell, J.M. Hiver, a. Dahoun, Experimental characterization of deformation damage in solid polymers under tension, and its interrelation with necking, *Int. J. Solids Struct.* 39

- (2002) 3857–3872. doi:10.1016/S0020-7683(02)00184-1.
- [146] C. G'Sell, J.M. Hiver, A. Dahoun, A. Souahi, Video-controlled tensile testing of polymers and metals beyond the necking point, *J Mater Sci.* 27 (1992) 5031–5039. doi:10.1007/bf01105270.
- [147] C. B. Bucknall and D. Clayton, “Rubber-toughening of plastics,” *J Mater Sci*, vol. 7, no. 2, pp. 202–210, 1972.
- [148] D. Heikens, S. D. Sjoerdsma, and W. J. Coumans, “A mathematical relation between volume strain, elongational strain and stress in homogeneous deformation,” *J Mater Sci*, vol. 16, no. 2, pp. 429–432, 1981.
- [149] Gurson AL. Continuum theory of ductile rupture by void nucleation and growth: Part I – Yield criteria and flow rules for porous ductile media. *J Eng Mater Technol* 1977; 99:2–15.
- [150] Tvergaard V. Influence of voids on shear bands instabilities under plane strain conditions. *Int J Fracture* 1981;17:389–407.
- [151] Tvergaard V. On localization in ductile materials containing spherical voids. *Int J Fracture* 1982;18:237–52.
- [152] A.L. Gurson. Continuum theory of ductile rupture by void nucleation and growth-I. Yield criteria and flow rules for porous ductile media. *J. Eng. Mater. Techno.*, 99, 2-15,1977.
- [153] K. Siruguet, J.B. Leblond. Effect of void locking by inclusions upon the plastic behavior of porous ductile solids I: theoretical modeling and numerical study of void growth. *Int. J. Plast.*, 20, 225-254, 2004.
- [154] Tvergaard V, Needleman A. Analysis of the cup-cone fracture in a round tensile bar. *Acta Metall* 1984;32:157–69.
- [155] Belytschko T, Liu WK, Moran B. *Nonlinear finite element for continua and structures*. Chichester: John Wiley & Sons Ltd; 2000.
- [156] Hibbitt, Karlsson, Sorensen. *Application of implicit and explicit finite element techniques to metal forming*. *J Mater Process Technol* 1994;45:649–56.
- [157] Hughes TJR. *The finite element method – linear static and dynamic element analysis*. Englewood Cliffs, (NJ): Prentice-Hall;1987.
- [158] Rebelo N, Nagtegaal JC, Comparison of implicit and explicit finite element methods in simulation of metal forming processes, 1992. p. 99–108.
- [159] Brocks W, Sun DZ, Honig A. Verification of the transferability of micromechanical parameters by cell model calculations with viscoplastic materials. *Int J Plasticity* 1995;11.
- [160] Hom CL, McMeeking MJ. Void growth in elastic–plastic materials. *ASME J Appl. Mech* 1989; 56: 309–17.
- [161] Worswick MJ, Pick RJ. Void growth and constitutive softening in a periodically voided

- solids. *J Mech. Phys. Solid* 1990 ; 38:601–25.
- [162] Richelsen AB, Tvergaard V. Dilatant plasticity or upper bound estimates for porous ductile solids. *Acta. Metall. Mater* 1994;8:2561–77.
- [163] Kuna M, Sun DZ. Three dimensional cell model analyses of void growth in ductile materials. *Int. J. Fracture* 1996; 81:235–58.
- [164] J. Koplik, A. Needleman. Void growth and coalescence in porous plastic solids. *Int. J.Solid. Struct.*, 24, 835-853, 1988.
- [165] ABAQUS/CAE.: Ver 6.13 User’s Manual. Hibbitt, Karlsson & Sorensen, Inc; (2013).
- [166] L. Siad, M. Ould Ouali, A. Benabbes, Comparison of explicit and implicit finite element simulations of void growth and coalescence in porous ductile materials, *Mater. Des.* 29 (2008) 319–329. doi:10.1016/j.matdes.2007.02.003.
- [167] Pardoen, T.Hutchinson J.W.: Extended model for void growth and coalescence, *J.Mech. Phys. Solids.* 48 2467–2512 (2000).
- [168] Pardoen, T. : Numerical simulation of low stress triaxiality ductile fracture, *Comput. Struct.* 84 1641–1650 (2006).
- [169] Becker, R., Smelser, R.E., Richmond, O., Appleby, E.J., 1989. The effect of void shape on void growth and ductility in axisymmetric tension tests. *Metallurgical Transactions A* 20, 853–861.
- [170] Richelsen, A.B., Tvergaard, V., 1994. Dilatant plasticity or upper bound estimates for porous ductile solids. *Acta Metallurgica et Materialia* 42, 2561–2577.
- [171] Gurson, A.L.: Continuum theory of ductile rupture by void nucleation and growth, Part I - Yield criteria and flow rules for porous ductile media. *J. of Eng. Mat. and Technol.* 99, 2–15 (1977).
- [172] Tvergaard, V., on localization in ductile materials containing voids. *Int. J. of Fract.* 18, 237–251 (1982).
- [173] Tvergaard, V.,.: Material failure by void growth to coalescence. *Adv. in Appl. Mech.* 27, 83–151 (1990).
- [174] Needleman, A.: Void growth in an elastic-plastic medium. *J. of Appl. Mech.* 39, 964–970 (1972).
- [175] Needleman, A., Kushner, A.S.: An analysis of void distribution effects on plastic flow in porous solids. *Eur. J. of Mech. A/Solids* 9, 193–206 (1990).
- [176] Gao, X., Faleskog, J., Shih, C.F.: Cell model for nonlinear fracture analysis- II Fracture-process calibration and verification. *Inter. J. of Fract.* 89, 374–386 (1998).
- [177] Koplik, J., Needleman, A.: Void growth and coalescence in porous plastic, solids *Inter. J. of Solids and Struct.* 24, 835–853(1988).

- [178] Rabold, F., Kuna, M. : Cell model simulation of void growth in nodular cast iron under cyclic loading, *Comput. Mater. Sci.* 32 489–497 (2005).
- [179] Coit, D.W.: A review of: “Practical Guide to Experimental Design” Normand L. Frigon and David Mathews John Wiley and Sons Inc., 342 pp., ISBN 0-471-13919-x, *IIE Trans.* 29 1083–1084(1997).
- [180] Siad, L., Ould Ouali, M., Benabbes, A.: Comparison of explicit and implicit finite element simulations of void growth and coalescence in porous ductile materials, *Mater. Des.* 29 319–329 (2008).
- [181] Pardoën, T., Hutchinson, J.W.: Extended model for void growth and coalescence, *J. Mech. Phys. Solids* 48 2467–2512 (2000).
- [182] Pardoën, T.: Numerical simulation of low stress triaxiality ductile fracture, *Comput. Struct.* 84 1641–1650 (2006).
- [183] Yala, A.A., Megueni, A.: Optimisation of composite patches repairs with the design of experiments method, *Mater. Des.* 30 200–205 (2009).
- [184] Kaddour, B. Bouchouicha, B. Benguediab, M. Slimane, A., Modeling and optimization of a cracked pipeline under pressure by an interactive method: design of experiments, *Int. J. Interact. Des. Manuf.* 1–11 (2017).
- [185] M. Elmequenni, Effet de la triaxialité sur le comportement et la rupture du polyéthylène haute densité : approches expérimentales et numériques. Thèse, université Lille 1 Sciences et Technologies, 2010.
- [186] Scheyvaerts, F., Onck, P.R., Tekoğlu, C., Pardoën, T.: The growth and coalescence of ellipsoidal voids in plane strain under combined shear and tension, *J. Mech. Phys. Solids* 59 373–397 (2011).