

APPROCHE EXPÉRIMENTALE DU COMPORTEMENT MÉCANIQUE DES POLYMÈRES EN SOLLICITATION RAPIDE

THÈSE N° 1572 (1996)

PRÉSENTÉE AU DÉPARTEMENT DES MATÉRIAUX

ÉCOLE POLYTECHNIQUE FÉDÉRALE DE LAUSANNE

POUR L'OBTENTION DU GRADE DE DOCTEUR ÈS SCIENCES TECHNIQUES

PAR

Philippe BÉGUELIN

Ingénieur technicien ETS diplômé du Technicum Cantonal de Saint-Imier
originaire de Tramelan (BE)

acceptée sur proposition du jury:

Prof. H.H. Kausch, directeur de thèse
Prof. L. Pflug, corapporteur
Prof. H. Sautereau, corapporteur
Prof. K. Takahashi, corapporteur
Prof. J.G. Williams, corapporteur

Lausanne, EPFL
1996

Avant-propos

Ce travail est le fruit de nombreuses collaborations internes à l'EPFL, mais aussi avec d'autres institutions académiques et industrielles. Les institutions ne doivent leurs valeurs qu'aux hommes qui les composent. C'est eux que je voudrais remercier ici par l'aide qu'ils m'ont apporté.

En premier lieu, mes remerciements s'adressent au Prof. H. H. Kausch sans qui ce travail n'aurais jamais été entrepris. Je le remercie pour la confiance qu'il m'a toujours témoigné, pour les opportunités qu'il m'a offert et pour le soutien qu'il a apporté à ce travail.

J'adresse également mes remerciements particuliers à mes collègues pour leurs contributions à nos projets communs, reportés ici. Il s'agit du Dr. Christopher Plummer du L.P. et de M. Alexandre Gregory de l'EPFL, du Dr. Christophe Fond de l'ICS de Strasbourg, du Dr. Olivier Julien d'ELF Atochem, ainsi que le Prof. K. Takahashi et son équipe de l'Université de Kyushu.

J'aimerais exprimer ma gratitude à tous mes collègues de l'EPFL, actuels ou anciens pour leur expérience dont ils m'ont fait bénéficier. En particulier, je remercie Louis Boog, Pierre-Etienne Bourban, Wesley Cantwell, Willy Dufour, Serge Fleury, Jean Gramiger, Jöns Hilborn, Joachim Kiefer, Juraj Poliak, Pascal Scaramuzzino, Laurent Tézé, ..., pour leur assistance ou leurs discussions stimulantes.

Mes remerciements vont aussi à mes collègues de l'E.S.I.S. pour leurs motivantes rencontres bisannuelles, et en particulier au Prof. J. G. Williams qui en est l'instigateur. Ils vont aussi au Prof. J. A. Manson pour son soutien à la préparation des examens d'admission à la thèse.

Enfin, je voudrais exprimer ma gratitude à mon épouse Marianne et à mes enfants, Bastien et Fiona pour leur soutien moral et leur tolérance, et aussi mes excuses pour les loisirs perdus durant la période de la rédaction.

Lausanne le 31 juillet 1996

RESUME

Dans leurs applications, les polymères sont de plus en plus souvent soumis à des vitesses de sollicitations élevées. Etant viscoélastiques par nature, leurs propriétés mécaniques dépendent dans une large mesure de la vitesse de déformation. Il importe donc de les caractériser aux grandes vitesses de déformation. L'objectif de ce travail est double: i) proposer une technique expérimentale applicable à une gamme étendue de vitesses, en couvrant les essais d'impact, et ii) l'appliquer à l'étude de l'évolution des propriétés et des mécanismes de déformation de polymères techniques.

Dans la première partie, nous passons en revue les mécanismes de déformation des polymères et la façon dont ils sont affectés par la vitesse. Les fondements de la mécanique de la rupture sont brièvement abordés également. Nous proposons ensuite une approche originale des essais mécaniques aux grandes vitesses. Notre démarche vise à réduire les effets dynamiques qui perturbent généralement les mesures aux vitesses élevées. La technique développée transforme les essais de choc en essais statiques à vitesse de déformation élevée. Pour cela, outre l'utilisation de capteurs spécifiques, nous utilisons un amortisseur comme élément de couplage entre le vérin hydraulique, et l'échantillon. L'accélération prodiguée à l'éprouvette s'en trouve réduite, mais la vitesse élevée de déformation subsiste. Cette technique est applicable aux essais de traction et à ceux de rupture. Ce travail présente une analyse détaillée de la méthode proposée et de ses limites d'application.

La deuxième partie est consacrée à l'étude de l'influence de la vitesse de déformation sur les propriétés en traction et en rupture des polyoxyméthylènes (POM) et des polyméthacrylates de méthyle (PMMA) modifiés choc.

Il est montré que les POM de poids moléculaires élevés supportent mieux l'élévation de la vitesse de déformation que ceux de masse moléculaire plus faible. La structure physique joue également un grand rôle par le biais de la mise en oeuvre. Les résultats montrent une fragilisation plus grande du POM par l'élévation de la vitesse que par la réduction de la température des essais. Enfin un modèle moléculaire de ténacité est proposé.

Des PMMA contenant des fractions et des morphologies différentes de la phase modificatrice sont étudiés en traction et en rupture à température ambiante. Les différentes étapes des micro-mécanismes de déformation sont mises en évidence par une étude microscopique. Suite à la disparition progressive de certains mécanismes, des transitions ductile-fragile sont trouvées. Leurs positions dans la plage de vitesse dépendent de la concentration et de la morphologie de la phase modificatrice. Il est également montré qu'une morphologie sphérique de la phase modificatrice n'est pas une condition nécessaire à l'augmentation de la ténacité, mais qu'elle dépend plutôt des interactions entre les phases.

ABSTRACT

In the more recent applications of technical polymers, they are frequently submitted to high strain rates. Being viscoelastic by nature, their mechanical properties are rate dependent. It is therefore important to investigate their properties over a wide range of strain rates. The aims of this study are twofold: i) to propose an experimental technique applicable to a large domain of strain rates, included those covering impact tests, and ii) to apply this technique to the study of the rate dependence of the mechanical properties of some technical polymers.

In the first section, the deformation mechanisms of polymers, and the way in which they are influenced by strain rate, are reviewed. Some basics of fracture mechanics are also briefly presented. A detailed study of our original approach to the high rates tests then follows. This technique is based on the reduction of dynamic effects which often affect the measurements at high loading rates. Rather than impact tests, our technique is a quasi-static tests at high rates. This results from the use of a damper as the coupling element between the servohydraulic piston and the specimen, together with the specific design of load and displacement detectors. The transient acceleration, responsible for the dynamic effects is decreased, but the high loading rates are maintained.

The second section is devoted to the investigation of the rate effect on the tensile and rupture properties of polyoxymethylene (POM) and impact modified polymethylmethacrylate (PMMA).

It is shown that high molecular weight POM is less sensitive to the increase of the loading rates than for lower molecular weights. The physical structure, which depends on the processing conditions, plays an important role as well. Results show greater embrittlement by increasing the loading rate than by lowering the temperature. Finally, a molecular model of fracture is proposed.

PMMA modified by different fractions and morphologies of the rubbery phase are submitted to tensile and fracture tests at room temperature. Several stages in the micromechanisms of deformation are identified by transmission electron microscopy. The progressive disappearance of some of these stages leads to ductile to brittle transitions in some of the materials studied. The velocity at which these transitions occur depends on the fraction and on the morphology of the modifying phase. It is also shown that a spherical morphology of the rubbery phase is not necessarily required to improve the toughness, but that this latter depends on the interactions between the phases.

TABLE DES PRINCIPAUX SYMBOLES ET ABBREVIATIONS

| | | | |
|-----------------------------|--|-----------|---|
| θ | angle | γ | énergie de surface |
| $2v$ | épaisseur de la craquelure | HIPS | <i>high impact polystyrène</i> |
| a | vitesse de fissure | IPN | <i>interpenetrating polymer network</i> |
| a | longueur de fissure | \dot{K} | vitesse de mise en charge au front de fissure |
| A | surface de rupture | k | rigidité |
| A.S.T.M | <i>American Society for Testing and Materials</i> | k^{dyn} | facteur de correction dynamique |
| B | épaisseur | K_I | facteur d'intensité de contrainte en mode I |
| C | complaisance ou <i>compliance</i> | K_{IC} | facteur critique d'intensité de contrainte en mode I |
| C | constante photoélastique | K_{II} | facteur d'intensité de contrainte en mode II |
| C_l | vitesse des ondes longitudinales | k_{iip} | facteur d'intensité des contrainte local |
| CT | <i>compact tension</i> , tension compacte | λ | degré d'étirement des fibrilles |
| D | déplacement | L.E.F.M. | <i>linear elastic fracture mechanics</i> , mécanique linéaire élastique de la rupture |
| D_0 | diamètre des fibrilles | L_A | nombre d'Avogadro |
| d_e | longueur entre deux points d'enchevêtrements | m, M | masse |
| ΔH | énergie d'activation | M_n | masse moléculaire en nombre |
| Δl | allongement | M_w | masse moléculaire en masse |
| Δt | incrément de temps | M_e | masse moléculaire entre enchevêtrements |
| Δu | incrément de déplacement | MEB | microscope électronique à balayage |
| e | coefficient de restitution | MET | microscope électronique à transmission |
| E, E^* | module d'élasticité | \bar{N} | ordre des franges photoélastiques |
| E.S.I.S. | <i>European Structural Integrity Society</i> | p | pression hydrostatique |
| ε | déformation | PA | polyamide |
| $\dot{\varepsilon}$ | vitesse de déformation | PC | polycarbonate |
| ε_c | déformation critique | PMMA | polyméthacrylate de méthyle |
| $\varepsilon_{cav.}$ | déformation cavitationnelle | POM | polyoxyméthylène |
| $\varepsilon_{lat.}$ | déformation latérale | R | constante des gaz |
| ε_{shear} | déformation en cisaillement | ρ | densité |
| $\varepsilon_{vol.}$ | déformation volumique | r | distance par rapport au front de fissure |
| $\varepsilon_{vol. elast.}$ | déformation volumique élastique | R | résistance à la rupture |
| f | facteur de calibration de complaisance | RIAM | <i>Research Institute of Applied Mechanics</i> |
| F | force | | |
| G | taux de restitution d'énergie | | |
| G_{IC} | taux de restitution d'énergie critique, ou énergie de la déchirure en mode I | | |
| GRL | groupe de recherche de Lacq | | |
| η | viscosité | | |

| | | | |
|-------------------------|---|---------------|---|
| σ | contrainte | $\tan \delta$ | facteur de pertes |
| σ_c, σ_{cb} | contrainte dans les craquelures | u | déplacement |
| s | longueur de la craquelure | \dot{u} | vitesse |
| Σ | nombre d'enchevêtrements par unité de surface | u | accélération |
| SENB | single edge notched in bending, flexion entaillée (en trois points) | U | énergie |
| σ_f | contrainte de rupture | ν | coefficient de Poisson |
| σ_y | contrainte au seuil de plasticité | ν | volume d'activation |
| τ | constante de temps | ν | vitesse |
| τ_y | seuil de plasticité en cisaillement | V | volume |
| T | température | V_0 | volume initial |
| T_f | température de fusion | V_f | fraction volumique |
| T_g | température de transition vitreuse | W | largeur |
| t | temps | W | travail |
| | | Z_{LL} | complaisance adimensionnelle sur la ligne de chargement |

| | |
|--|-----------|
| 1. STRUCTURE ET MECANISMES DE DEFORMATION DES POLYMERES . | 1 |
| 1.1. INTRODUCTION ET OBJECTIFS | 1 |
| 1.2. APPLICATION DES POLYMERES AUX GRANDES VITESSES DE DEFORMATION | 2 |
| 1.3. APERÇU DE LA STRUCTURE DES POLYMERES | 2 |
| 1.4. COMPORTEMENT MECANIQUE DES POLYMERES SOLLICITES AUX GRANDES DEFORMATIONS | 4 |
| 1.4.1. Mécanismes de déformation..... | 4 |
| 1.4.1.a) Bandes de déformation en cisaillement | 4 |
| 1.4.1.b) Seuil de plasticité | 6 |
| 1.4.1.c) Déformation après le seuil de plasticité | 8 |
| 1.4.1.d) Les craquelures des polymères amorphes | 10 |
| 1.4.1.e) Les craquelures dans les polymères semi-cristallins. | 17 |
| 1.4.2. Défauts et plasticité..... | 18 |
| 1.5. CRITERES DE PLASTICITE S'APPLIQUANT AUX POLYMERES..... | 19 |
| 1.6. DISCUSSION | 22 |
| 1.7. ENGLISH CAPTIONS | 25 |
| 1.8. REFERENCES | 27 |
| | |
| 2. MECANIQUE DE LA RUPTURE..... | 29 |
| 2.1. INTRODUCTION | 29 |
| 2.2. MECANIQUE DE LA RUPTURE LINEAIRE ELASTIQUE..... | 29 |
| 2.2.1. Défauts et concentrations des contraintes | 29 |
| 2.2.2. L'approche énergétique de Griffith..... | 30 |
| 2.2.3. Courbe R..... | 31 |
| 2.2.4. Analyse des contraintes autour des défauts..... | 33 |
| 2.2.5. Etat plan de contrainte, état plan de déformation..... | 35 |
| 2.2.6. Relation entre G et K..... | 36 |
| 2.2.7. Propagations instables et énergie cinétique..... | 36 |
| 2.2.7.a) Evaluation de l'énergie cinétique. | 37 |
| 2.2.7.b) Vitesse maximale des fissures. | 37 |
| 2.2.8. Facteur de correction pour la zone plastique. | 38 |
| 2.2.8.a) Correction d'Irwin | 38 |
| 2.2.8.b) Correction pour le modèle de la zone de cohésion | 39 |
| 2.3. VALIDITE DE LA MECANIQUE DE LA RUPTURE POUR LES POLYMERES ... | 40 |
| 2.3.1. Relation K- en propagation stable | 41 |
| 2.4. DISCUSSION..... | 41 |
| 2.5. ENGLISH CAPTIONS | 43 |
| 2.6. REFERENCES | 45 |
| | |
| 3. TECHNIQUE EXPERIMENTALE DES ESSAIS DE TRACTION AUX GRANDES VITESSES..... | 47 |

| | |
|---|-----------|
| 3.1. INTRODUCTION | 47 |
| 3.2. DESCRIPTION DE L'EQUIPEMENT UTILISE..... | 48 |
| 3.2.1. Dispositif de transmission du mouvement..... | 49 |
| 3.2.2. Mesure de la force en régime transitoire..... | 50 |
| 3.2.3. Mesure du déplacement..... | 51 |
| 3.2.3.a) Principe de la mesure | 52 |
| 3.2.3.b) Précision de la mesure | 53 |
| 3.2.3.c) Vitesse maximale de la mesure du déplacement..... | 54 |
| 3.3. PROBLEMES DYNAMIQUES | 55 |
| 3.3.1. Amortissement du contact dans l'unité de transmission..... | 57 |
| 3.3.2. Approche quasi-statique aux vitesses élevées..... | 57 |
| 3.3.3. Nature dynamique transitoire du mouvement: discussion | 59 |
| 3.4. EXEMPLES D'ESSAIS DE TRACTION AMORTIS AUX GRANDES VITESSES. .60 | |
| 3.5. CONCLUSIONS..... | 62 |
| 3.6. ENGLISH CAPTIONS | 63 |
| 3.7. REFERENCES | 65 |
| | |
| 4. ESSAIS DE RUPTURE AUX GRANDES VITESSES | 67 |
| 4.1. INTRODUCTION | 67 |
| 4.1.1. L'essai Charpy..... | 68 |
| 4.1.2. Approche des essais de choc par la mécanique de la rupture..... | 70 |
| 4.1.3. Instrumentation des essais de choc..... | 72 |
| 4.1.3.a) Instrumentation du marteau pour la mesure de la force | 72 |
| 4.1.3.b) La mesure du déplacement | 74 |
| 4.1.3.c) Nature dynamique des essais d'impact. | 76 |
| 4.2. NOUVELLE APPROCHE DES ESSAIS DE RUPTURE AUX GRANDES VITESSES | 78 |
| 4.2.1. Géométrie et mesure de la force. | 79 |
| 4.2.2. Contrôle de l'accélération et mesure du déplacement..... | 80 |
| 4.2.3. Influence du contact dans l'unité de transmission sur la nature de l'essai | 80 |
| 4.2.3.a) Essais de rupture sans amortisseur | 81 |
| 4.2.3.b) Essais de rupture avec contact amorti..... | 83 |
| 4.2.3.c) Discussion..... | 84 |
| 4.3. APPLICATION EXPERIMENTALE DE L'APPROCHE PROPOSEE | 87 |
| 4.3.1. Détermination de K..... | 87 |
| 4.3.2. Détermination de G..... | 88 |
| 4.3.3. Relation expérimentale entre G et K..... | 88 |
| 4.4. CONCLUSIONS..... | 89 |
| 4.5. ENGLISH CAPTIONS | 91 |
| 4.6. REFERENCES | 93 |

| | |
|--|------------|
| 5. INFLUENCE DE L'ACCELERATION SUR LES ESSAI DE RUPTURE AUX GRANDES VITESSES..... | 95 |
| 5.1. OBJECTIFS ET DEMARCHE SUIVIE..... | 95 |
| 5.2. CARACTERISATION DE L'ETAT DES CONTRAINTES PAR LA PHOTOELASTICITE..... | 95 |
| 5.2.1. Photoélasticité..... | 96 |
| 5.2.2. Matériaux des modèles photoélastiques..... | 97 |
| 5.2.3. Montage optique..... | 97 |
| 5.3. CONDITIONS EXPERIMENTALES..... | 98 |
| 5.4. SIMULATIONS NUMERIQUES PAR LES ELEMENTS FINIS..... | 100 |
| 5.4.1. Généralités..... | 100 |
| 5.4.2. Modèle d'éléments finis..... | 101 |
| 5.4.3. Validations..... | 102 |
| 5.5. RESULTATS..... | 103 |
| 5.5.1. Comparaison entre les figures photoélastiques expérimentales et numériques... | 103 |
| 5.5.2. Comparaison entre les paramètres de la mécanique de la rupture mesurés et simulés..... | 106 |
| 5.5.2.a) <i>La force</i> | 106 |
| 5.5.2.b) <i>Le facteur d'intensité des contraintes</i> | 108 |
| 5.5.3. Analyse modale..... | 109 |
| 5.6. DISCUSSION..... | 110 |
| 5.6.1. Validité de l'hypothèse quasi-statique pour les essais amortis..... | 111 |
| 5.6.2. Facteur de correction dynamique..... | 112 |
| 5.6.3. Mixité de mode..... | 113 |
| 5.6.4. Effets de l'accélération sur la sévérité des tests de rupture..... | 114 |
| 5.7. CONCLUSIONS..... | 116 |
| 5.8. ENGLISH CAPTIONS..... | 119 |
| 5.9. REFERENCES..... | 121 |
| | |
| 6. INFLUENCE DE LA VITESSE ET DE LA TEMPERATURE SUR LES PROPRIETES MECANQUES DU POLYOXYMETHYLENE (POM)..... | 123 |
| 6.1. INTRODUCTION..... | 123 |
| 6.1.1. Matériaux..... | 123 |
| 6.1.2. Mise en oeuvre..... | 124 |
| 6.1.3. Essais..... | 124 |
| 6.2. ESSAIS DE TRACTION DES EPROUVETTES INJECTEES..... | 125 |
| 6.2.1. Essais aux petites vitesses à différentes températures..... | 125 |
| 6.2.2. Essais aux grandes vitesses à température ambiante..... | 127 |
| 6.2.3. Approche énergétique..... | 128 |
| 6.2.4. Observations fractographiques..... | 129 |
| 6.2.5. Mécanismes de déformation..... | 131 |
| 6.3. ESSAIS DE MECANIQUE DE LA RUPTURE..... | 134 |

| | |
|---|-----|
| 6.3.1. Effets de la température et de la vitesse de déformation..... | 135 |
| 6.3.2. Effet de la température de cristallisation. | 136 |
| 6.3.3. Observations fractographiques..... | 137 |
| 6.3.4. Discussion: ténacité et mobilité moléculaire | 138 |
| 6.3.5. Modèles moléculaires de ténacité dans les matériaux formant des craquelures... 138 | |
| 6.3.5.a) <i>Modèle de Brown</i> | 138 |
| 6.3.5.b) <i>Modèles d'écrantage de la fissure</i> | 142 |
| 6.3.5.c) <i>Comparaison avec les résultats</i> | 143 |
| 6.4. CONCLUSIONS..... | 145 |
| 6.5. ENGLISH CAPTIONS | 147 |
| 6.6. REFERENCES | 149 |

7. COMPORTEMENT MECANIQUE AUX GRANDES VITESSES. DES POLYMETHACRYLATES DE METHYLE MODIFIES CHOC..... 151

| | |
|--|-----|
| 7.1. INTRODUCTION | 151 |
| 7.2. LA MODIFICATION DES PMMA | 152 |
| 7.2.1. Les matrices PMMA | 152 |
| 7.2.2. Composition et morphologie des nodules de modification | 153 |
| 7.2.3. Morphologie des réseaux de polymères interpénétrés (IPN)..... | 154 |
| 7.2.4. Matériaux étudiés..... | 155 |
| 7.2.5. Caractérisation de la morphologie des matériaux étudiés. | 155 |
| 7.3. PROPRIETES MECANQUES DES PMMA CHOC: REVUE DE LA LITTERATURE | 156 |
| 7.3.1. PMMA renforcés par des particules..... | 156 |
| 7.3.2. Réseaux de polymères interpénétrés | 158 |
| 7.4. COMPORTEMENT EN TRACTION. | 161 |
| 7.4.1. Courbes s-e. | 161 |
| 7.4.2. Module d'élasticité, E..... | 163 |
| 7.4.3. Contrainte et allongement au seuil de plasticité. | 163 |
| 7.4.4. Mécanismes de blanchiment en traction..... | 165 |
| 7.4.4.a) <i>Le blanchiment</i> | 165 |
| 7.4.4.b) <i>Interprétation des mesures de blanchiment</i> | 168 |
| 7.4.5. Séparation des processus de déformation | 169 |
| 7.4.6. Discussion..... | 174 |
| 7.5. ETUDE DU COMPORTEMENT DES PMMA CHOC EN RUPTURE. | 177 |
| 7.5.1. Préambule | 177 |
| 7.5.2. Pré-entaillage des éprouvettes..... | 178 |
| 7.5.3. Comportement | 178 |
| 7.5.4. Résultats expérimentaux des PMMA choc | 181 |
| 7.5.4.a) <i>Comparaison de matériaux modifiés par des fractions différentes de nodules de même taille de type 2L</i> | 181 |
| 7.5.4.b) <i>Différentes morphologies de la phase incluse</i> | 183 |
| 7.5.4.c) <i>Comparaison de matériaux modifiés par des nodules de type 3L</i> | 185 |

| | |
|--|------------|
| 7.5.4.d) Etude fractographique | 187 |
| 7.5.5. Discussion..... | 195 |
| 7.5.5.a) Résultats..... | 195 |
| 7.5.5.b) Mécanismes de déformation en rupture..... | 196 |
| 7.6. CONCLUSIONS..... | 197 |
| 7.7. ENGLISH CAPTIONS | 199 |
| 7.8. REFERENCES | 203 |
| 8. CONCLUSIONS..... | 207 |
| 8.1. TECHNIQUES EXPERIMENTALES PROPOSEES..... | 207 |
| 8.1.1. Essais de traction..... | 207 |
| 8.1.1.a) Méthode..... | 207 |
| 8.1.1.b) Interprétation des résultats..... | 208 |
| 8.1.1.c) Perspectives..... | 208 |
| 8.1.2. Essais de rupture..... | 209 |
| 8.1.2.a) Méthode..... | 209 |
| 8.1.2.b) Interprétation des résultats..... | 209 |
| 8.1.2.c) Perspectives..... | 210 |
| 8.2. APPLICATION A L'ETUDE DES POM ET DES PMMA CHOC..... | 210 |
| 8.2.1. Le POM..... | 210 |
| 8.2.2. Les PMMA modifiés choc..... | 211 |
| ANNEXES | |
| A1. VITESSE DE MISE EN CHARGE DU FRONT DE FISSURE | A1 |
| A2. MECANIQUE DE LA RUPTURE ET PLASTICITE DANS LES PMMA MODIFIES AU CHOC..... | A4 |

CHAPITRE 1

1. STRUCTURE ET MECANISMES DE DEFORMATION DES POLYMERES

1.1. INTRODUCTION ET OBJECTIFS

Dans ce chapitre, la nature très variée des divers mécanismes de déformation plastique des polymères est décrite. Ces mécanismes sont souvent complexes, à l'image de la structure qui compose les matières plastiques. Certains de ces mécanismes ont été étudiés intensivement et sont relativement bien connus lorsqu'ils se produisent en régime stable. Nous mettrons l'accent sur l'influence de la température et de la vitesse sur les mécanismes de déformation.

Les transitions de phase dans les polymères sont très proches de leurs températures d'utilisation, beaucoup plus proches que pour la plupart des autres matériaux. La mobilité structurale étant plus grande, elle est plus sensible aux conditions environnementales. Selon les vitesses de sollicitation et la température, les déformations des polymères peuvent passer d'un mécanisme à un autre par des transitions de comportement. Ainsi, dans l'étude expérimentale des polymères, la température est un paramètre à prendre en compte.

En raison de la nature viscoélastique des matières plastiques, la vitesse de sollicitation est une variable aussi importante que la température. La vitesse est généralement prise en compte comme paramètre expérimental, et est variée dans la mesure du possible pour l'étude des lois de comportement et des mécanismes de déformation. Malheureusement, les outils expérimentaux pour l'étude de l'influence de la vitesse sont lacunaires. La plupart des machines d'essais des matériaux sont capable de travailler seulement à des vitesses inférieures au mètre par minute pour les machines mécaniques, et au mètre par seconde pour les vérins servo-hydrauliques. Pour accéder aux vitesses plus élevées, on a en général recours aux essais de choc Charpy ou Izod. La vitesse de ces essais normalisés est de $\sim 3\text{m/s}$ pour les matières plastiques. Un grand nombre de polymères ont un comportement fragile à cette vitesse. Les laboratoires ne disposent généralement pas d'outils qui permettent l'étude fine des transitions ductile-fragile qui se produisent dans le domaine entre le m/min et 10 m/s. Comme nous le verrons plus loin, la nature dynamique des essais d'impact rend l'analyse difficile et procure souvent des résultats imprécis. L'utilisation de techniques expérimentales différentes en fonction des vitesses de déformation rend les données obtenues difficilement comparables entre le régime statique (basses vitesses) et le régime dynamique (hautes vitesses).

L'objectif de ce travail est précisément de proposer une solution expérimentale simple et fiable en développant les outils de mesure et d'analyse nécessaires. Ceux-ci doivent permettre de couvrir la plus large plage de vitesse possible, y compris le domaine qui n'est traditionnellement accessible que par les essais d'impact, afin de pouvoir suivre les zones de transition des polymères au moyen d'une analyse continue. Les Chapitre 3 et 4, décrirons en détail l'approche proposée en justifiant les choix opérés. Nous tenterons de prouver l'adéquation de la technique, et nous en explorerons ses limites au Chapitre 5. Les Chapitres 6 et 7 seront consacrés à l'étude d'exemples d'application de cette approche. Les exemples choisis et traités dans ces chapitres ne rendent compte que d'une petite partie des études réalisées à ce

jour selon l'approche proposée, mais reflètent bien les domaines d'application. Bien que développée principalement par l'auteur du présent travail, cette approche expérimentale a déjà été utilisée dans le cadre de plusieurs autres travaux de thèse [1-6] et d'études industrielles.

1.2. APPLICATION DES POLYMERES AUX GRANDES VITESSES DE DEFORMATION

Les atouts des matières plastiques et des composites qui en sont issus sont tels que leurs applications dans la quasi-totalité des domaines industriels ont considérablement augmenté durant les trente dernières années. Bien que limitée au départ, l'application des polymères organiques à des composants de structure est en pleine expansion, conduisant ainsi à des exigences de plus en plus élevées quant aux propriétés des matériaux, mais également vers une meilleure connaissance de ces propriétés. En raison de leur faible densité et de leur facilité de mise en oeuvre, l'industrie des transports porte un intérêt tout particulier aux matières plastiques pour le remplacement de matériaux métalliques. Pour des raisons évidentes, le secteur des transports s'intéresse plus particulièrement aux propriétés des matériaux sur une large gamme de vitesses de sollicitations qui s'étend du fluage jusqu'à l'impact balistique. Comme illustration, prenons l'exemple des pare-chocs des automobiles pour lesquelles les propriétés mécaniques requises sont: une bonne résistance au fluage, l'intégrité de la structure lors d'impacts à faible vitesse, une dissipation d'énergie la plus élevée possible en cas de choc.

Comme autre exemple où les exigences liées aux applications sont difficilement conciliables, citons les conduites de gaz en matières plastiques. Elles incluent les propriétés de fluage pour résister à la déformation engendrée par la pression interne, la résistance à l'initiation de fissures en fatigue et aux chocs, et l'arrêt rapide des fissures se propageant à grande vitesse (résultant de l'onde de dépressurisation de la conduite) en cas de rupture.

Le grand nombre d'applications liées à une résistance aux chocs accrue explique l'intense activité de recherche dans le domaine des polymères renforcés chocs, des copolymères ou encore des alliages.

1.3. APERÇU DE LA STRUCTURE DES POLYMERES

Les propriétés physiques et mécaniques des polymères présentent un certain nombre de particularités qui découlent de leur structure macromoléculaire et de l'organisation supramoléculaire. A partir d'une variété très restreinte d'atomes, l'assemblage de l'unité monomère de quelques dizaines de milliers à quelques millions de fois peut donner naissance à une variété quasi-infinie de matériaux. La microstructure finale résultant de l'assemblage dépend de paramètres chimiques, tels que:

- la nature du monomère, et en particulier la nature et l'encombrement stérique des groupes latéraux,
- le poids moléculaire et la polydispersité résultant de la polymérisation,
- la linéarité de la macromolécule,
- la présence de réticulation,

les paramètres physiques jouent également un rôle capital dans les propriétés du produit final.

L'aptitude des macromolécules à former une structure régulière ne dépend pas seulement de l'encombrement stérique des groupes latéraux, mais aussi de leurs interactions électromagnétiques, de la cinétique de formation du solide (vitesse de polymérisation et/ou réticulation, vitesse de solidification du fondu). L'ordre ainsi obtenu couvre une large plage qui va des polymères amorphes (absence d'ordre à l'échelle moléculaire) à des structures possédant un degré de cristallinité tel que la mise en oeuvre devient difficile (de l'ordre de 98% pour le polytétrafluoréthylène -PTFE-). La très grande majorité des polymères à l'état solide possède un degré de cristallinité compris entre 0 (amorphes) et 80%.

Le degré d'ordre dans les structures semi-cristallines est bien inférieur à celui rencontré dans un cristal atomique ou ionique. Etant donné que seule une fraction du matériau cristallise, cet ordre reste très local, donnant ainsi naissance à un matériau biphasé composé de régions amorphes et semi-cristallines.

Comme dans les semi-cristallins à la température ambiante, la phase amorphe est souvent en dessus de la température de transition vitreuse, T_g , et que pour exister, la phase cristalline doit être en dessous de sa température de fusion, T_f , les mécanismes de déformation affectant ces deux phases sont différents et peuvent interagir.

En dehors de la température et de la vitesse de déformation qui sont des paramètres extérieurs à la structure influençant directement la cinétique de déformation, cette dernière dépend de l'organisation supramoléculaire. Si les phases amorphes et cristallines ont chacune des mécanismes de déformation qui leur sont propres, la nature et la cinétique de ces mécanismes dépendent du degré d'interaction macromoléculaire. L'interaction est largement dépendante de la nature des liaisons dans la phase considérée (liaisons physiques, ou chimiques en cas de réticulation) et du degré d'interpénétration des macromolécules, en particulier par le biais du nombre d'enchevêtrements. Ce nombre d'enchevêtrements est caractérisé par la masse moléculaire entre enchevêtrements, M_e , et dépend des masses des macromolécules, M_w ou M_n , et suit une distribution statistique. Dans le cas des polymères amorphes non-réticulés où les propriétés mécaniques résultent directement des interactions supramoléculaires, l'obtention de propriétés mécaniques significatives est bien entendue subordonnée à l'utilisation de macromolécules d'un poids moléculaire supérieur à la masse critique entre enchevêtrements.

Pour les polymères semi-cristallins, partant d'une macromolécule donnée, le degré de cristallinité et la taille des régions cristallines résultent des conditions de mise en oeuvre. La vitesse de refroidissement et le gradient de température dans le moule jouent un grand rôle dans la construction de la structure finale du solide. Ainsi les mécanismes de déformation du matériau dépendent dans une large mesure des conditions de la mise en oeuvre.

1.4. COMPORTEMENT MECANIQUE DES POLYMERES SOLLICITES AUX GRANDES DEFORMATIONS

1.4.1. Mécanismes de déformation

Les mouvements moléculaires qui sont responsables de la déformation à grande échelle sont largement influencés par le caractère aléatoire de la structure et des enchevêtrements macromoléculaires. Ainsi, les paramètres moléculaires ont une influence prédominante sur la plasticité des polymères. De plus, du fait de leur origine, ces déformations ont un caractère cinétique qui ne dépend pas seulement de la structure moléculaire du matériau, mais aussi de la température, T , et de la vitesse de sollicitation, $\dot{\epsilon}$. Dès lors, il n'est pas étonnant que la variété et la complexité des mécanismes de déformations observés dans les polymères soient élevées, à l'image de la structure moléculaire de ces matériaux.

Les mécanismes de déformation des polymères en tant que réponse aux contraintes élevées auxquels ils sont soumis, peuvent être à grande ou à petite échelle. Les mécanismes à grande échelle ou macroscopiques engendrent une déformation initialement homogène de la zone impliquée dans les déformations. Une fois initiés, certains mécanismes de plasticité peuvent conduire à une instabilité plastique, comme par exemple la striction de certains matériaux observés sous déformation de traction. Ils sont en général très dissipatifs et conduisent à une modification de la géométrie aisément observable de la structure déformée. Il s'agit généralement de déformation en *cisaillement*. Les mécanismes à petite échelle en revanche résultent de déformations qui n'impliquent pas la contribution de l'ensemble du volume soumis à la contrainte, mais de zones microscopiques où les mécanismes de déformation plastique hétérogène sont confinés. Les *craquelures*, et les *bandes de cisaillement localisées* sont de ce type, et sont fréquemment rencontrées dans les polymères. La réponse globale de la structure à ce type de mécanisme est de deux natures:

- Soit, le matériau ou l'état de contrainte est tel que ce mécanisme reste confiné autour de son site d'initiation. Un tel cas donne lieu à une rupture fragile de la structure, et l'énergie dissipée est faible.
- Soit au contraire le matériau ou l'état de contrainte est tel que ce mécanisme peut se développer simultanément autour d'un grand nombre de sites d'initiation (défauts ponctuels, inclusions). Les mécanismes ainsi initiés diffusent dans la totalité du volume où l'état de contrainte requis est présent. Généralement, la dissipation totale d'énergie avant la rupture est relativement importante, en raison du grand nombre de sites dissipatifs (même si individuellement ces sites sont peu dissipatifs).

1.4.1.a) Bandes de déformation en cisaillement

Les bandes de déformation en cisaillement sont caractéristiques d'une déformation plastique résultant d'un écoulement moléculaire dans le plan de cisaillement qui implique un déplacement relatif des macromolécules par glissement. L'orientation des chaînes qui en résulte modifie l'indice de réfraction en rendant le matériau biréfringent. Cela rend facilement observable les bandes de cisaillement des polymères amorphes en lumière polarisée. L'observation montre une inclinaison des bandes de l'ordre de 45° par rapport à la direction de contrainte uniaxiale.

Les bandes de cisaillement sont dites localisées lorsque la déformation est confinée dans un domaine bien délimité (Figure 1-1). Le taux d'extension est constant sur l'ensemble de l'instabilité locale.

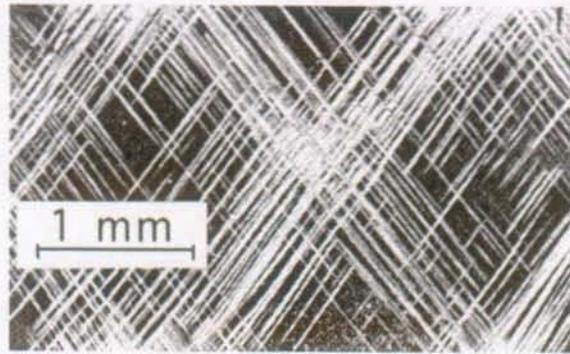


Figure 1-1: Bandes de cisaillement localisées obtenues en compression plane sur du polystyrène observées entre polariseurs croisés [7]

Lorsque le cisaillement est du type généralisé, il présente une variation graduelle du taux d'extension des chaînes qui donne lieu à une déformation macroscopique d'abord homogène du solide. En traction, l'initiation de déformation en cisaillement au seuil de plasticité, σ_y , peut conduire à la formation d'une instabilité plastique: la striction, comme le montre la Figure 1-2. L'instabilité est initiée généralement dans le plan de section le plus petit, ou autour du défaut le plus important. Une fois initié, le mécanisme de striction est entretenu par un écoulement massif de matière de la zone non déformée vers la zone déformée. La contrainte nominale nécessaire à la propagation de la striction par un écoulement macroscopique du matériau est constante. L'angle que forme la discontinuité de section à l'endroit où le mécanisme se produit est d'environ 45° par rapport à la direction de traction. En première approximation, on peut admettre que la déformation a lieu à volume constant.

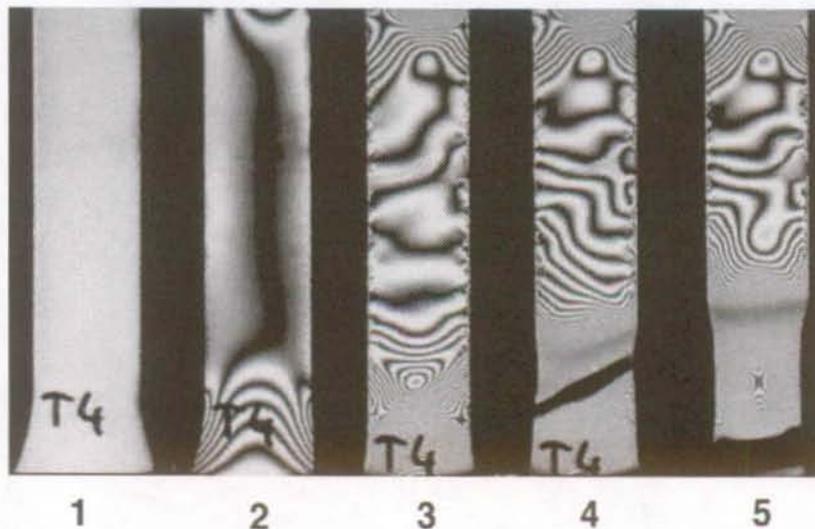


Figure 1-2: Observation en polarisation circulaire de l'apparition d'une instabilité plastique de cisaillement lors d'un essai de traction dans un polycarbonate. 1) portion du fût avant déformation, 2) état de contrainte dans le domaine linéaire du diagramme de contrainte-déformation, 3) état de contrainte au seuil de plasticité, 4) formation, et 5) propagation de l'instabilité plastique

Même si, comme nous le verrons ultérieurement, la déformation en plasticité généralisée est observable tant dans les polymères amorphes que dans les semi-cristallins, elle ne résulte pas des mêmes mécanismes de déformation.

1.4.1.b) Seuil de plasticité

Polymères amorphes.

La première explication donnée à l'écoulement en cisaillement des polymères amorphes était attribuée à l'élévation locale de la température en dessus de T_g pendant le processus de déformation. Il faut pourtant admettre que si l'existence d'une telle élévation de température est évidente aux grandes vitesses de déformation, en raison de la nature adiabatique de l'essai, un tel concept ne s'applique pas aux très basses vitesses de déformation où des bandes de cisaillement sont également observées.

En assimilant la mesure d'un seuil de contrainte plastique à vitesse constante à la mesure de la vitesse de fluage à contrainte constante, un concept plus récent a été développé à partir de la théorie d'Eyring [8-11]. Il explique l'existence du seuil plastique et de l'écoulement des polymères vitreux par la combinaison de la contrainte appliquée et des fluctuations thermiques. Autrement dit, il considère les mouvements intermoléculaires (par exemple les glissement de chaînes) et intramoléculaires (par exemple les changements de conformation) comme responsables de la plasticité.

Cette approche décrit l'influence de la vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ comme:

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_0 \exp\left[-\frac{\Delta H}{RT}\right] \sinh\left[\frac{v\sigma}{RT}\right] \quad (1-1)$$

avec, R , la constante des gaz, et ΔH , l'énergie d'activation du processus considéré.

Bien que l'interprétation physique du volume d'activation, v , (d'un ordre de grandeur de 10 nm^3) soit difficile et qu'il doit être mesuré expérimentalement, le modèle décrit bien l'influence de la température, T , et de la vitesse de déformation, $\dot{\epsilon}$.

Pour de grandes valeurs de σ , $\sinh\left[\frac{v\sigma}{RT}\right] \approx \frac{1}{2} \exp\left[\frac{v\sigma}{RT}\right]$, on peut exprimer l'évolution de la contrainte au seuil plastique, σ_y , comme [10]:

$$\frac{\sigma_y}{T} = \left[\frac{\Delta H}{vT}\right] + \frac{R}{v} \ln \frac{2\dot{\epsilon}}{\dot{\epsilon}_0} = \frac{R}{v} \left[\frac{\Delta H}{RT} + \ln \frac{2\dot{\epsilon}}{\dot{\epsilon}_0}\right] \quad (1-2)$$

Ainsi, cette approche prévoit une dépendance en vitesse de σ_y , du type:

$$\sigma_y = b_\epsilon + m_\epsilon \log \dot{\epsilon}, \text{ avec } b_\epsilon = \frac{\Delta H}{v} - \frac{2.3kT}{v} \log \frac{2}{\dot{\epsilon}_0}, \text{ et } m_\epsilon = \frac{2.3kT}{v} \quad (1-3)$$

avec k , la constante de Boltzman;

et une dépendance en température, T du type:

$$\sigma_y = b_T + m_T T, \text{ avec, et } b_T = \frac{\Delta H}{v}, \text{ et } m_T = \frac{2.3k}{v} \log \frac{2\dot{\epsilon}}{\dot{\epsilon}_0} \quad (1-4)$$

Dans une étude approfondie de certains polymères amorphes, Roetling [12] et Bauwens [13] ont montré qu'aux basses températures et aux vitesses de déformation élevées, le seuil de plasticité s'accroît plus rapidement en élevant $\dot{\epsilon}$ et en diminuant T , qu'aux températures élevées et aux basses vitesses. Ils expliquent cette observation par l'existence de deux processus activés simultanément dont les effets s'additionnent. Le formalisme des équations (1-1) et (1-2) est conservé, avec des indices respectifs relatifs aux processus activés, et donne:

$$\frac{\sigma_Y}{T} = \frac{R}{v_1} \left[\frac{\Delta H_1}{RT} + \ln \frac{2\dot{\epsilon}}{\dot{\epsilon}_{o1}} \right] + \frac{R}{v_2} \sinh^{-1} \left[\frac{2\dot{\epsilon}}{\dot{\epsilon}_{o2}} \exp \frac{\Delta H_2}{RT} \right] \quad (1-5)$$

Ce modèle décrit remarquablement bien l'influence de la vitesse et de la température sur le seuil de plasticité du PMMA, ainsi que comme le montre la Figure 1-3, du PVC et du PC.

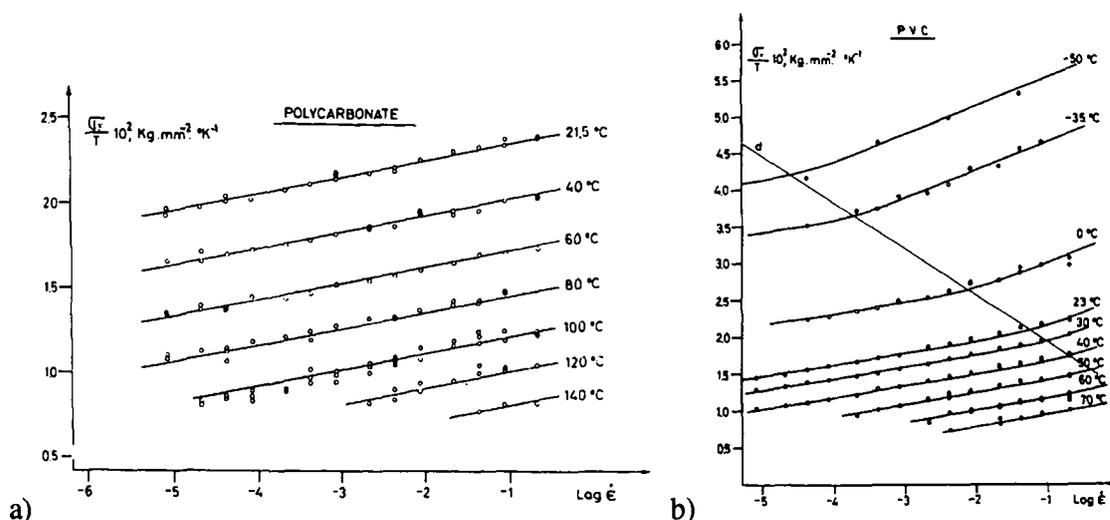


Figure 1-3: Mesure de $\frac{\sigma_Y}{T}$ en fonction de $\log \dot{\epsilon}$, et comparaison avec le modèle de Bauwens

a) Polycarbonate, b) PVC - la ligne d représente la position de la transition β [13].

Polymères semi-cristallins

Dans le domaine $T < T_g$, les mécanismes de déformation peuvent être décrit avec les modèles des polymères vitreux. En élevant la température, dans la région juste en dessus de T_g , σ_Y décroît rapidement. Cette région de transition abrupte, où les domaines amorphes deviennent rapidement caoutchoutiques, n'a pas été étudiée en détail. Il est toutefois probable que la plupart des mécanismes de déformation résultent de la facilité avec laquelle les domaines amorphes peuvent être déformés en cisaillement [14].

En raison de la complexité de leur structure, à $T_g < T < T_m$, les mécanismes fondamentaux qui régissent l'apparition du seuil de plasticité dans les polymères cristallins ne sont pas identifiés précisément. Dans ce domaine de température, le seuil plastique augmente avec le degré de cristallinité. De même, σ_Y augmente généralement avec $\dot{\epsilon}$.

Dans ce domaine de T , les mécanismes responsables de la plasticité sont attribués à des phénomènes différents par les chercheurs.

La première école [15, 16] regroupe ceux qui attribuent les mécanismes de plasticité à la fusion locale ou partielle des lamelles les plus instables bordant les parties cristallines, en raison d'une concentration de contrainte locale. Les molécules ainsi étirées à l'état fondu seraient par la suite recristallisées dans une conformation orientée. De tels mécanismes expliqueraient qualitativement l'augmentation de σ_y avec le degré de cristallinité et sa diminution avec l'augmentation de T . En revanche, bien que certaines observations expérimentales s'accordent à cette théorie, elle n'explique pas l'augmentation du seuil plastique avec l'accroissement de la vitesse de sollicitation. Au contraire, une élévation locale de la température accrue à grande vitesse devrait tendre à diminuer σ_y .

L'autre hypothèse [17-19] est basée sur une approche plus classique de la plasticité cristalline. Elle explique la contribution de la phase cristalline par les dislocations, le maclage et le glissement des plans cristallins, comme dans les métaux aux basses températures. La plupart des observations expérimentales effectuées sur le polyéthylène, à T proche de l'ambiante, montrent que le principal mécanisme responsable de la plasticité en cisaillement des régions cristallines est le glissement dans le plan cristallographique [001]. Après la séparation des lamelles en cisaillement par glissement, l'ordre régnant dans les fragments cristallins paraît être détruit par l'apparition d'un grand nombre de défauts internes qui croissent sous l'action de la contrainte appliquée.

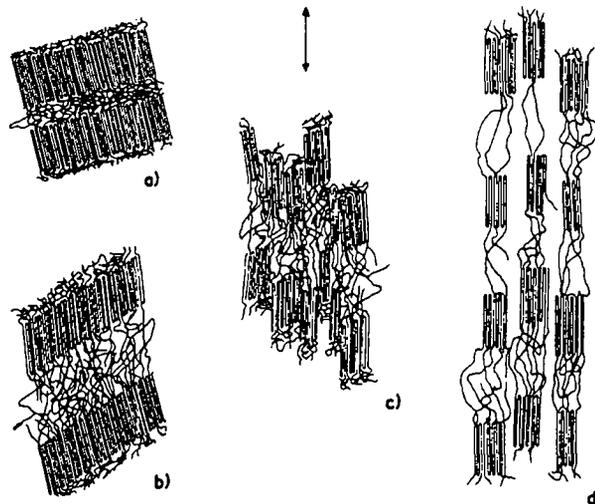


Figure 1-4: Représentation schématique des mécanismes de déformation dans les polymères cristallins. a) état non-déformé, b) extension des molécules de liaison et basculement des chaînes à l'intérieur des lamelles, c) fragmentation des lamelles, d) alignement selon la direction d'étirage [20].

1.4.1.c) Déformation après le seuil de plasticité

Il est souvent possible de déformer les polymères au delà de leur seuil de plasticité. Des modèles mécaniques peuvent décrire les lois de comportement qui servent à corréler les mesures de comportement effectuées sous différentes conditions expérimentales.

Modèles mécaniques.

A vitesse de déformation, $\dot{\epsilon}$, constante le modèle viscoélastique le plus simple qui rend compte de la contrainte de traction, σ , en fonction de la déformation, ϵ , est:

$$\sigma(\dot{\varepsilon}) = E_0 \dot{\varepsilon} \tau \left[1 - \exp\left(-\frac{\varepsilon}{\tau}\right) \right] \quad (1-6)$$

avec E_0 le module d'élasticité, τ le temps de relaxation.

On voit bien qu'un tel modèle ne décrit que la pente initiale, E_0 , l'allongement au seuil de plasticité, à $\varepsilon \approx \dot{\varepsilon} \tau$ et la contrainte d'écoulement Newtonien $E_0 \dot{\varepsilon} \tau$.

Le comportement est mieux décrit par le modèle viscoélastique non-linéaire de Matsuoka [21]:

$$\sigma(\dot{\varepsilon}) = E_0 \varepsilon \exp(-C\varepsilon) \exp\left(-\frac{\varepsilon}{\dot{\varepsilon} \tau}\right)^n \quad (1-7)$$

où le premier terme exponentiel, $C\varepsilon$, décrit le seuil plastique, et la présence d'un maximum de contrainte, σ , en fonction de ε . La dépendance de la contrainte plastique à $\dot{\varepsilon}$, découle du deuxième terme exponentiel. Le temps de relaxation unique de l'équation (1-6) est remplacé par une constante de temps moyenne, τ , de largeur de distribution n . Ce terme est mesuré directement par la variation du module d'élasticité lors d'essais de relaxation. Comme le montre la Figure 1-5, ce modèle prédit une dépendance de $\sigma_y \sim \dot{\varepsilon}$. Notons la stabilité du module de Young, E , avec la température, T , et la vitesse de déformation, $\dot{\varepsilon}$.

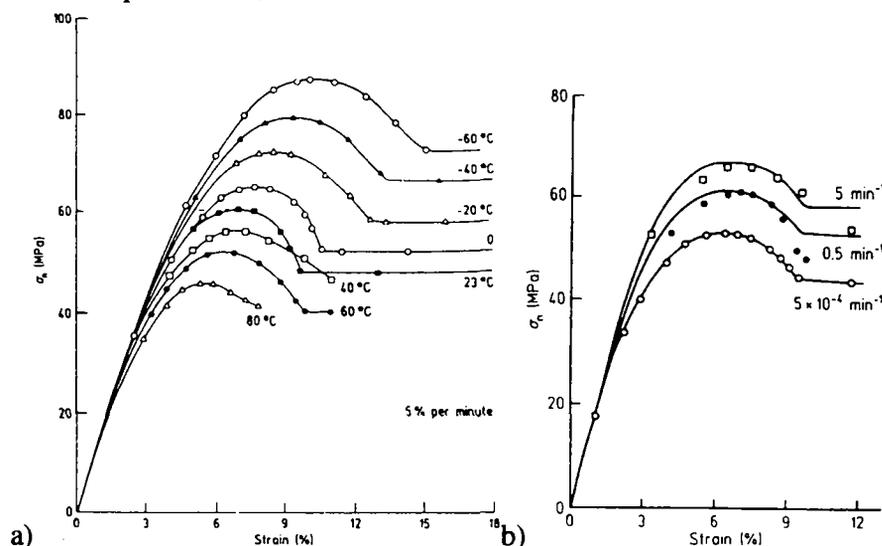


Figure 1-5: Courbes contrainte, σ_n , déformation en traction du polycarbonate [21]. Les points sont les valeurs expérimentales, et les lignes sont les valeurs calculées à l'aide du modèle de Matsuoka. a) à différentes températures, b) à différentes vitesses de déformation $\dot{\varepsilon}$.

Dans les modèles viscoélastique, l'effet de la température peut être traité par la superposition temps-température.

Modèles moléculaires

Bien que de nombreux modèles aient été proposés pour la description des mécanismes responsables de l'apparition du seuil de plasticité comme nous l'avons vu précédemment, relativement peu de modèles sont avancés pour expliquer les mécanismes survenant après l'instabilité plastique. Potentiellement, tous les polymères solides peuvent présenter des

caractéristiques de consolidation en traction, et même en compression ou en cisaillement pour les matériaux vitreux.

Pour les polymères amorphes, un modèle basé sur la résistance entropique à l'écoulement des segments de chaîne rigides décrit les phénomènes observés à l'aide de paramètres moléculaires raisonnables. Ce modèle prédit un taux de consolidation plus élevé en traction qu'en compression [22].

D'autres explications sont avancées pour les semi-cristallins à $T_g < T < T_m$. La consolidation prononcée en traction est issue de la formation d'une texture orientée dans l'axe de sollicitation par le glissement des plans cristallographiques [001] [23], comme le montre la Figure 1-4 d). En compression ou en cisaillement en revanche, on constate très peu de consolidation.

1.4.1.d) Les craquelures des polymères amorphes

Parmi les mécanismes de déformation localisés à l'échelle microscopique, celui qui est le plus souvent rencontré dans les polymères amorphes est certainement la formation de craquelures, en anglais *craze*. Elles résultent d'instabilités micromécaniques qui engendrent un écoulement local des macromolécules pour former un mélange de structure fibrillaire orientée, et de vides.

Les craquelures sont très fréquemment rencontrées dans les thermoplastes amorphes. La mobilité moléculaire requise pour leur formation n'étant pas suffisante dans les thermodurcis hautement réticulés, ceux-ci ne forment pas de craquelures.

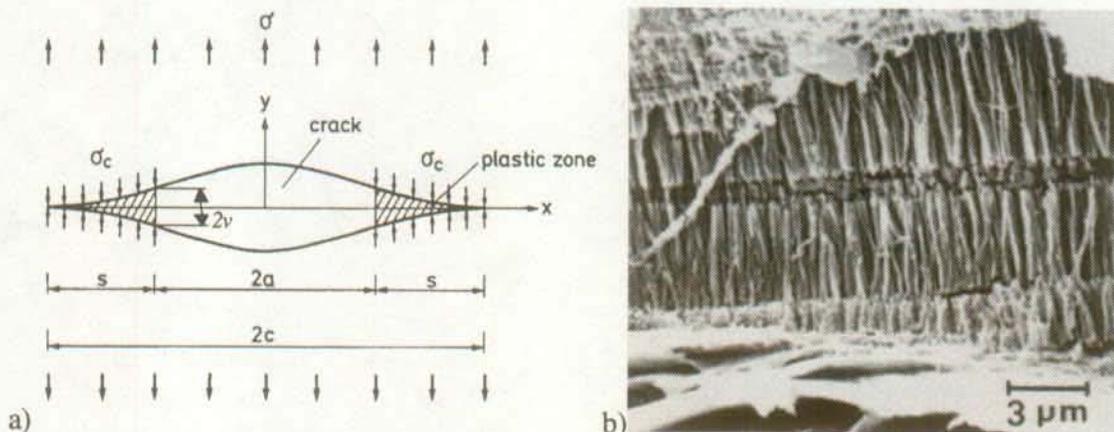


Figure 1-6: a) Représentation de Muskhelishvili du modèle de Dugdale-Barenblatt. b) Structure fibrillaire d'une craquelure dans le polycarbonate, observée en microscopie électronique à balayage [24].

Les craquelures apparaissent perpendiculairement à la direction de déformation. Elles sont constituées de deux plans de matériau pleins reliés entre eux par une structure fibrillaire orientée. La fraction volumique de fibrille peut atteindre 50%. En raison de leur nombre élevé et de leur grande orientation les fibrilles permettent aux craquelures de supporter des contraintes élevées. Cette propriété, et le type de structure qui la compose en font quasiment la représentation idéale de la zone cohésive plastique de Dugdale-Barenblatt (Figure 1-6).

Grâce aux propriétés de transparence des polymères amorphes, l'observation des craquelures est relativement aisée. Döll et Könczöl [25], ainsi que Schirrer [26] ont mesuré leurs principales

caractéristiques dimensionnelles par microscopie interférométrique dans des matériaux amorphes (principalement le polystyrène et le polyméthacrylate de méthyle) sous différentes conditions. Les dimensions typiques qui varient avec la température et la vitesse de formation sont:

- longueur des fibrilles étirées, $2v$, comprise typiquement entre 2 et 30 μm ,
- taux d'étirement des fibrilles, λ , 2 à 7
- diamètres des fibrilles, D , 5 à 50 nm,
- distances interfibrillaires, D_0 , 20 à 60 nm

Initiation et développement des craquelures.

Les craquelures naissent au voisinage de défauts ou de fluctuation de densité, qui concentrent les contraintes, créant ainsi une plasticité locale. Selon le modèle de Argon [27], la coalescence des vides par instabilité de ménisque est à l'origine de l'avance de la surface craquelée. La Figure 1-7 est une représentation schématique de ce mécanisme. Le front d'avance dans le plan de la craquelure est ondulé, et la croissance est plus rapide localement. Il ne reste que les îlots de matière laissés après le passage du plan sont étirés pour donner naissance aux fibrilles (Figure 1-7 b).

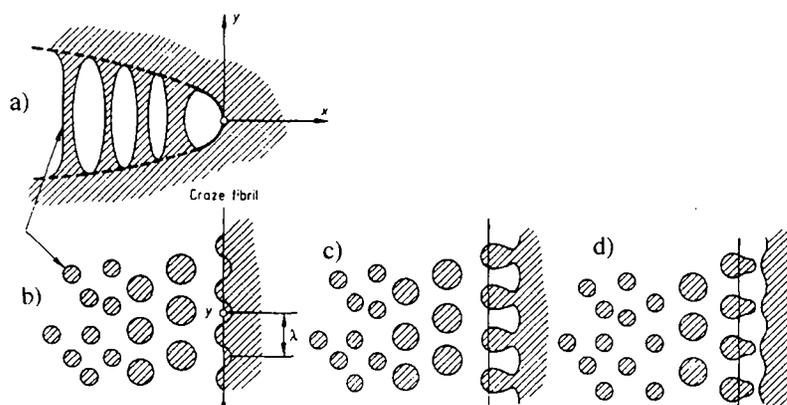


Figure 1-7: Représentation schématique de la croissance des craquelures par l'instabilité du ménisque. a) vue dans le plan normal, à la craquelure, b)-d) représentation dans le plan de la craquelure. La direction d'avance est x.

Kausch [28] propose un mécanisme d'initiation similaire à celui d'Argon, mais attribue l'origine des cavités initiales à une distribution spatiale de l'interaction par enchevêtrement des pelotes moléculaires. L'initiation des processus de déformation anélastiques serait centrée autour de zones où la densité de ces enchevêtrements est faible.

Dans une deuxième étape, les déformations se propagent aux pelotes adjacentes. Les expériences de diffraction des rayons X de très grande intensité aux petits angles réalisées sous traction par Rothwell *et coll.* [29] dans le PMMA, montrent l'initiation de cavités de petite taille (15 nm), et leur croissance ultérieure en fluage. Il pourrait s'agir de la manifestation du mécanisme de déformation issu des fluctuations d'interactions entre pelotes avancé par Kausch [30]. La présence locale d'une forte contrainte hydrostatique négative (dilatationnelle) est à l'origine de la cavitation pendant le mécanisme d'allongement des fibrilles. Lors de la croissance de la craquelure les plans qui la borde s'éloignent, et les fibrilles s'allongent alors par un double mécanisme:

- D'une part, par un mécanisme de fluage qui augmente le degré d'orientation moléculaire des fibrilles.
- D'autre part, par un écoulement localisé depuis les bords de la craquelure, à partir d'une région appelée la zone active, bien délimitée et de très faible épaisseur, h . Ce deuxième mécanisme est en générale dominant.

Les enchevêtrements jouent un grand rôle dans le mécanisme de développement des craquelures. Lorsqu'un enchevêtrement comme celui représenté au point a de la Figure 1-8 est impliqué dans un écoulement macromoléculaire, plusieurs possibilités se présentent selon la mobilité moléculaire:

- les deux macromolécules concernées s'écoulent (au moins partiellement) dans la même fibrille (l'enchevêtrement est alors conservé),
- les macromolécules peuvent être désenchevêtrées, l'une s'écoulant par rapport à l'autre, et être incluses dans des fibrilles séparées (formation de craquelure par désenchevêtrement),
- l'une d'elles se rompt (avant ou après son écoulement dans une fibrille), et le point d'enchevêtrement est libéré (formation de craquelure par scission) [31],
- les molécules s'écoulent vers des fibrilles différentes, elles ne peuvent ni se désenchevêtrer, ni se rompre. Dans un tel cas, l'existence de l'enchevêtrement crée une liaison entre les fibrilles [32]. Ce type de liaison, très fréquent, est appelé fibrilles transverses (*cross tie fibrils*). Bien évidemment, il s'agit dans la réalité d'un groupe d'enchevêtrements plutôt que d'un seul enchevêtrement comme schématisé ci dessous.

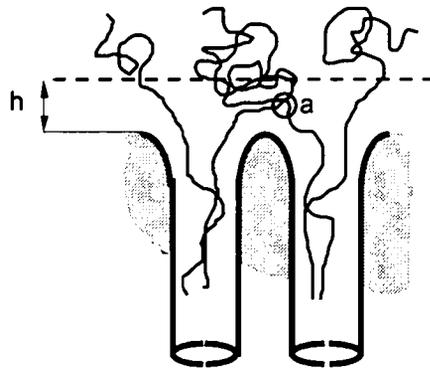


Figure 1-8: Mécanisme de croissance des fibrilles par écoulement de macromolécules de la zone active d'épaisseur h .

Dimensions et propriétés des craquelures

Les craquelures ont été abondamment étudiées, leurs propriétés sont relativement bien connues. Etant donné qu'elles sont facilement créées aux abords des concentrations de contraintes locales, elles sont largement étudiées par la biais de la mécanique de la rupture. Le corollaire est également applicable: comme elles constituent des singularités de contrainte et de déformation, elles contribuent largement aux propriétés de rupture.

La contrainte des fibrilles, σ_c , est quasi-constante le long de la craquelure, comme le montre la Figure 1-9 [25]. De plus, la forme de la craquelure, et la distribution des contraintes est invariable avec la longueur de la fissure, si le milieu peut être considéré comme infini.

Etant donné le caractère cinétique de la croissance des craquelures, leurs dimensions caractéristiques sont sensiblement dépendantes du temps comme le montre la Figure 1-10.

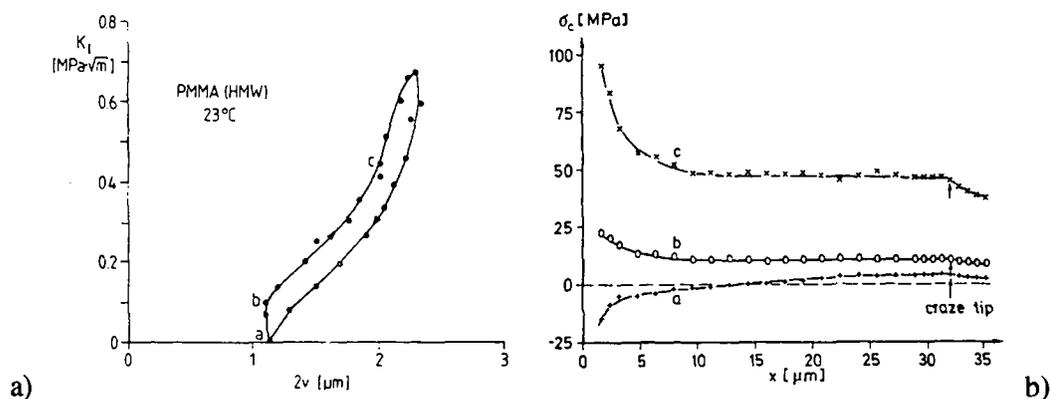


Figure 1-9: a) Epaisseur, $2v$, d'une craquelure dans le PMMA en fonction du facteur d'intensité des contraintes, K_I , pour un cycle de charge-décharge. b) Distribution de σ_c aux différentes étape du cycle, en fonction de la distance d'éloignement du front de la fissure stationnaire, s . [25]

Williams & Marshall [33] proposent une expression de la longueur de la craquelure fonction du facteur d'intensité des contraintes, K_I , et de la contrainte dans la craquelure, σ_c :

$$s = \frac{\pi}{8} \left(\frac{K_I^2}{\sigma_c^2} \right) \quad (1-8)$$

Ils admettent que σ_c peut être exprimé par une loi de puissance, du type:

$$\sigma_c = \varepsilon_y E_o t^n \quad (1-9)$$

avec, ε_y , la déformation au seuil plastique, E_o , le module de Young à l'unité de temps considérée, et l'échelle de temps, t . Le terme de puissance, n , est une constante du matériau, et vaut: $\frac{\partial \ln E}{\partial \ln t}$. Williams [34] propose même une relation de n avec le facteur de perte $\tan \delta$, telle

$$\text{que: } \tan \delta = \tan \frac{\pi n}{2}.$$

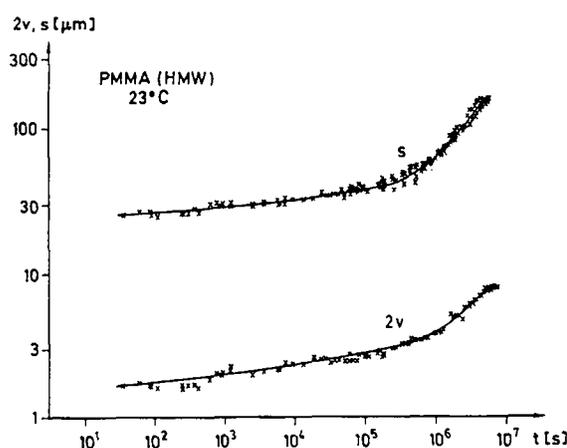


Figure 1-10: Evolution de la longueur, s , et de l'ouverture maximale des fibrilles, $2v$, en fonction du temps, t , en tête de fissure stationnaire, dans un PMMA de haut poids moléculaire [25].

Selon ce modèle, l'ouverture de la craquelure vaut: $2v = \frac{K_{IC}^2}{\sigma_c E_0 t^{-n}}$ (1-10)

La combinaison des équations (1-8) et (1-9) permet d'exprimer la longueur de la craquelure comme:

$$s = \frac{\pi}{8} \left(\frac{K_I^2}{(\varepsilon_y E_0)^2} \right) t^{2n} \quad (1-11)$$

Vitesse de propagation des craquelures

Comme le montre la Figure 1-11, plus la vitesse de croissance de la fissure, \dot{a} , est grande, plus σ_c est élevé, car les mécanismes moléculaires de relaxation des fibrilles n'ont pas le temps d'agir.

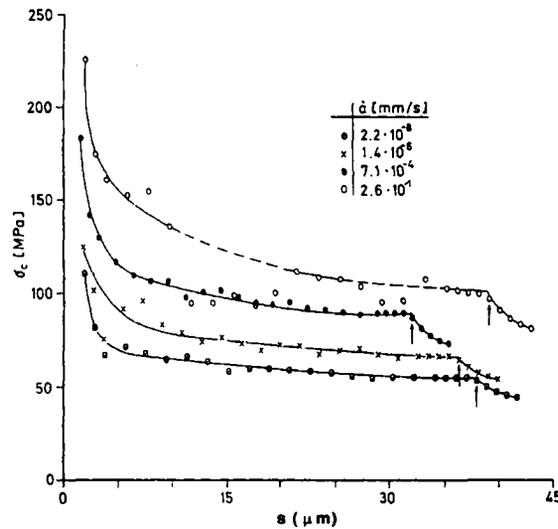


Figure 1-11: Distribution des contraintes, σ_c , dans les craquelures du PMMA, pour 4 vitesses d'avance de fissure, \dot{a} . Les flèches indiquent la tête de la craquelure [25].

L'augmentation de σ_c avec \dot{a} , a pour effet d'augmenter le facteur critique d'intensité des contraintes, K_{IC} , comme le montrent les mesures représentées à la Figure 1-12 [25].

Le comportement reporté par cette figure implique que le mécanisme de formation des craquelures ne change pas pour tous les \dot{a} reportés sur le diagramme. Si les mécanismes responsables de la cinétique de la formation des craquelures changent, comme par exemple par le changement des mécanismes activés, les paramètres caractéristiques des craquelures peuvent changer radicalement. Un tel changement conduit à des transitions ou des discontinuités de la courbe $K_{IC}-\dot{a}$.

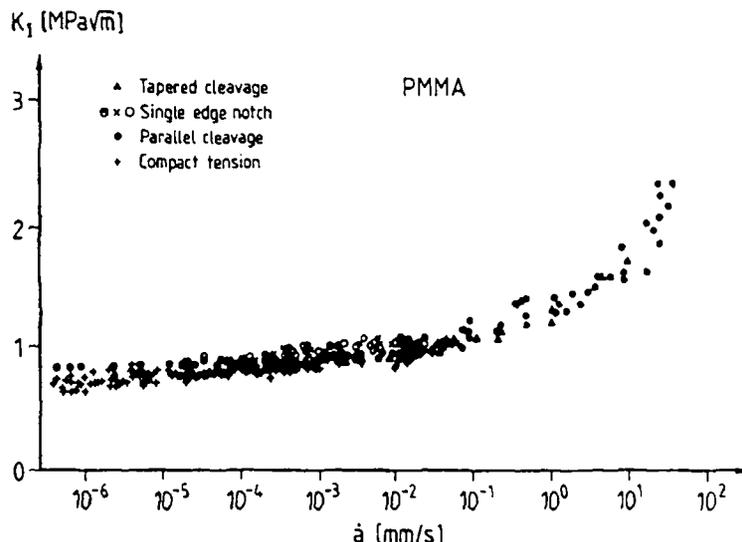


Figure 1-12: Facteur critique d'intensité des contraintes, K_{IC} , en fonction de la vitesse d'avance de la fissure, \dot{a} , dans le PMMA, à la température ambiante.

Schématiquement, l'influence du temps sur les dimensions des craquelures est représenté à la Figure 1-13, avec les mécanismes activés correspondant. Les données représentées à la Figure 1-10 résultent essentiellement d'une activation des mécanismes β . L'élévation de \dot{a} conduit à l'activation de mécanismes à temps courts de type γ . C'est donc ce type de mécanisme qui est impliqué en rupture rapide où \dot{a} est de l'ordre de grandeur de quelques centaines de mètres par seconde. Toutefois, il convient de ne pas perdre de vue que dans de tels cas l'échauffement adiabatique généré localement peut conduire à des mécanismes de transition adiabatique-isotherme. Une telle occurrence tend à ramener les mécanismes impliqués dans la fracture rapide vers des mécanismes de type β , voire α .

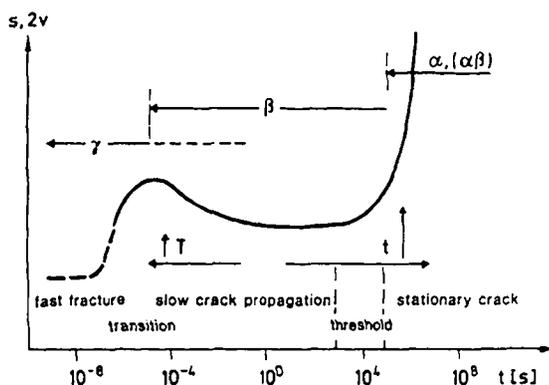


Figure 1-13: Représentation schématique des dimensions caractéristiques de la craquelure, en fonction du temps de chargement. Les mécanismes associés aux temps caractéristiques sont indiqués [25].

Dans le PMMA, Könczöl *et coll.* [35] ont montré que les dimensions des craquelures en fonction de la vitesse de la fissure changent avec le poids moléculaire (Figure 1-14). Bien que les températures de transition des mécanismes de relaxation (α , β , γ) ne soient que peu affectés

par le poids moléculaire [36], nous avons vu précédemment l'important rôle joué par les enchevêtrements dans le mécanisme de formation des craquelures.

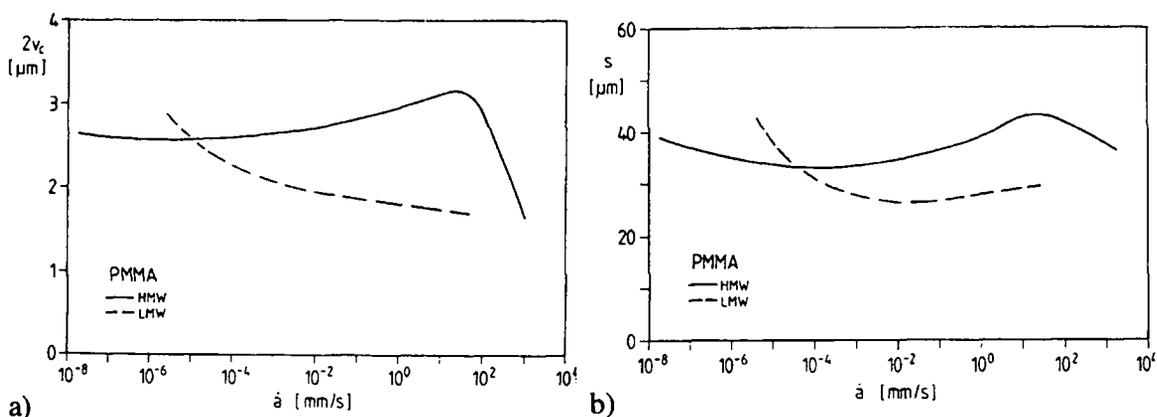


Figure 1-14: Variation des dimensions caractéristiques des craquelures en propagation dans le PMMA de poids moléculaire différents. a) largeur maximale de la craquelure $2v_c$, b) longueur de la craquelure, s .

Ainsi les résultats de la Figure 1-14 montrent une réduction dramatique des dimensions de la craquelure du PMMA de poids moléculaire le plus élevé vers les grandes vitesses de propagation, là où on attend l'effet de l'échauffement adiabatique. L'interprétation avancée à la réduction brusque de la taille des fibrilles est un blocage du processus de relaxation β , qui entrave le glissement des macromolécules vers la zone fibrillaire. Comme la vitesse de rupture des fibrilles n'est pas affectée par ce processus, on assiste à une soudaine diminution de leur longueur. Il en résulte une brusque augmentation de la contrainte dans les fibrilles, contribuant à l'accélération de leur rupture. Ce mécanisme auto-entretenu produit ainsi le saut de vitesse observable lors de l'instabilité de la rupture. Notons que précisément ce domaine de transition n'est pas observé par ces auteurs pour le PMMA de bas poids moléculaire. Soit parce qu'il n'existe pas, soit parce qu'il est décalé vers les vitesses plus élevées.

Pour clore ces remarques concernant l'influence de la vitesse sur la formation des craquelures, il convient de relever la compilation des résultats établie sur le PMMA par Kausch [30]. Elle est représentée en Figure 1-15, et montre la discontinuité de la relation $\dot{a}-K_{IC}$ lorsque la croissance de la fissure devient instable.

Selon ces résultats, K_{IC} augmente presque linéairement avec le log de \dot{a} tant que la propagation est stable. Ainsi, dans ce domaine:

$$K_{IC} \propto \dot{a}^n \quad (1-12)$$

Marshall *et coll.* [37] proposent un modèle théorique basé sur la durée de vie des fibrilles, t , qui vaut:

$$t = s / \dot{a}. \quad (1-13)$$

En combinant les équations (1-13), et (1-8 à 1-10) il vient:

$$K_{IC} = (2v\varepsilon_y)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{8\varepsilon_y}{\pi 2v} \right)^n E_0 \dot{a}^n \quad (1-14)$$

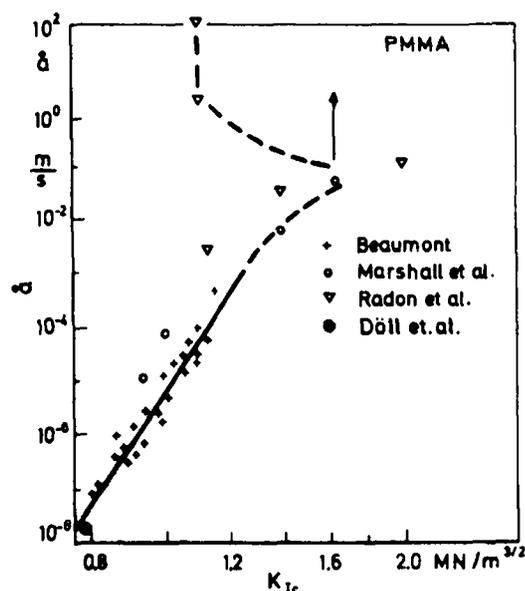


Figure 1-15: Relation $\dot{\alpha}$ - K_{Ic} dans le PMMA à la température ambiante.

La courbe de la Figure 1-15 est discontinue aux $\dot{\alpha}$ élevés, de l'ordre de plusieurs dizaines à plusieurs centaines de ms^{-1} . A ces vitesses, la rupture est instable et K_{Ic} diminue. Certains auteurs expliquent cette discontinuité par le blocage des mécanismes β . Les mesures de Marshall *et coll.* [37] tendent à démontrer qu'au contraire, le brusque passage à une rupture instable est contrôlé par un mécanisme d'échauffement adiabatique au front de fissure. L'élévation de température ainsi produit ramolli le matériau, modifiant ainsi les mécanismes de déformation. Ils ont montrés que pour le PMMA, une élévation de température de 10-30K est suffisante pour provoquer une instabilité de la rupture.

Modèle moléculaire de formation des craquelures

L'influence des paramètres moléculaires sur la formation et la rupture des craquelures a été largement étudiée par Brown et Kramer, qui ont développé un modèle décrivant la relation entre l'état des contraintes locales et les paramètres des craquelures. Ce modèle est présenté au Chapitre 6.

1.4.1.e) Les craquelures dans les polymères semi-cristallins.

Même si la terminologie utilisée pour la description des mécanismes de déformation fibrillaires localisés dans les polymères semi-cristallins n'est pas toujours la même que celle se référant aux craquelures des polymères amorphes, leur existence est connue de longue date. On utilise aujourd'hui largement le terme de craquelure pour désigner les mécanismes d'instabilité locale accompagnés simultanément de fibrillation et de cavitation.

En raison du caractère opaque des semi-cristallins, les craquelures sont plus difficile à étudier que dans les amorphes. De plus, comparativement à ces derniers, la complexité de la microstructure, la possible fragmentation des régions cristallines sous l'action de la déformation et la présence de la phase amorphe, pouvant être à la température de l'essai en dessous ou en dessus de sa T_g , introduisent de nombreux paramètres supplémentaires. Cette complexité

explique pourquoi les mécanismes de formation des craquelures dans les semi-cristallins sont encore mal connus.

Comme nous l'avons vu précédemment, à $T > T_g$, les mécanismes de déformation naissent dans les régions amorphes et peuvent s'étendre aux régions cristallines. Dans de telles conditions, l'établissement d'une structure hétérogène fibrillaire ressemblant fortement aux craquelures des polymères amorphes est fréquente. Elle s'accompagne généralement d'un accroissement de la diffusion de la lumière qui se traduit par un blanchiment des régions déformées.

En raison des hétérogénéités de structure à l'échelle de la craquelure, la taille et la régularité de la structure fibrillaire formée dans les semi-cristallins diffèrent sensiblement de celles rencontrées dans les amorphes. Les interactions craquelures-structure cristalline sont élevées. Une fois initiées, l'extension des craquelures peut être bloquée ou déviée par une zone de structure localement plus dense, comme les sphérolites ou leurs lamelles. La répartition complexe des contraintes qui en découle tend à multiplier le nombre des craquelures dans le matériau. La densification des sites déformés contribue grandement à la dissipation de l'énergie dans le matériau. Pour cette raison, lors des essais de rupture, les déformations plastiques en tête de fissure des semi-cristallins testés à $T > T_g$ sont généralement plus étendues que celles des amorphes à $T < T_g$. Elles consistent en un réseau dense de craquelures, qui peut être intersphérolitique (confiné aux régions amorphes entre les sphérolitiques), ou intra-sphérolitique (participation des régions amorphes interlamellaires).

1.4.2. Défauts et plasticité

Dans les polymères, les inhomogénéité intrinsèques (fluctuations de densité, phases différentes) ou extrinsèques (défauts, fissures, inclusions) sont des sites de concentrations locales de contrainte. Autour de ces concentrations de contraintes croissent des mécanismes de déformation diffus ou localisés dont la taille et la nature dépendent du polymère considéré, de la température et de la vitesse de sollicitation. La transition d'un type de mécanisme à un autre, dans le temps ou dans l'espace, est possible en fonction de l'évolution locale de la contrainte et de la mobilité moléculaire.

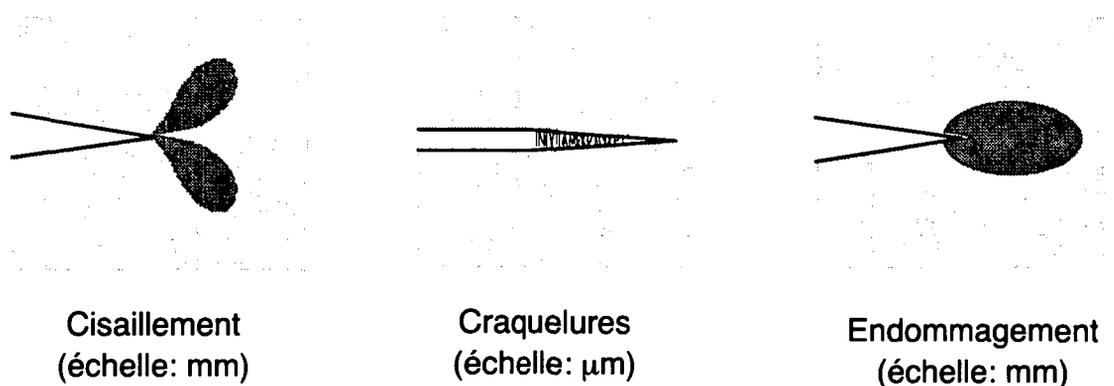


Figure 1-16: Les différents mécanismes d'endommagement dans les polymères [38]

Les principaux mécanismes d'endommagement rencontrés au voisinage des inhomogénéités sont schématisés à la Figure 1-16. Dans certains cas, le cisaillement et les craquelures peuvent

se combiner pour donner lieu à des zones d'endommagement localisées, dont la nature microscopique est difficile à observer et qu'il est par conséquent difficile de modéliser.

Le seul moyen d'appréhender les mécanismes de déformation est la définition de critères de plasticité, car ils permettent de comprendre quels sont les paramètres locaux qui favorisent l'apparition d'un mécanisme au détriment d'un autre.

1.5. CRITERES DE PLASTICITE S'APPLIQUANT AUX POLYMERES

Un état de contrainte est décrit par le tenseur des contraintes, σ_{ij} . Il s'agit d'un tenseur d'ordre deux, à trois dimensions. Dans les matériaux isotropes, les tenseurs sont toujours diagonisables. On peut ainsi toujours ramener l'état de contrainte à trois contraintes principales, $\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3$, orthogonales entre elles.

Les *critères de plasticité* postulent que le domaine élastique est borné en contrainte (ou en déformation) par une représentation tridimensionnelle dans l'espace selon les trois axes des contraintes principales. Les plus simples n'établissent aucune différence entre les limites élastiques en traction et en compression. De plus, ils ne prennent pas en compte l'influence de la pression hydrostatique.

Le *critère de von Mises* est un critère de cisaillement qui postule une valeur limite pour la densité d'énergie de distorsion, c'est à dire à l'énergie de déformation diminuée de l'énergie de changement de volume. Il s'agit ainsi d'un critère de cisaillement moyen maximal:

$$(\sigma_1 - \sigma_2)^2 + (\sigma_2 - \sigma_3)^2 + (\sigma_3 - \sigma_1)^2 = 6\tau_y^2 = \text{constante} \quad (1-15)$$

Il émet l'hypothèse que la plasticité intervient lorsque les composantes de cisaillement, obtenues en retranchant la composantes hydrostatique du tenseur total des contraintes, dépasse une valeur critique:

$$(\sigma_1 - p)^2 + (\sigma_2 - p)^2 + (\sigma_3 - p)^2 = \text{constante} \quad (1-16)$$

avec la pression hydrostatique: $p = \frac{1}{3}(\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3)$

Le critère de von Mises, souvent décrit comme le critère de contrainte de cisaillement octaédrique est également fréquemment exprimé par:

$$\tau_{oct} = \frac{1}{3} \left\{ (\sigma_1 - \sigma_2)^2 + (\sigma_2 - \sigma_3)^2 + (\sigma_3 - \sigma_1)^2 \right\}^{\frac{1}{2}} = 6\tau_y^2 = \text{constante} \quad (1-17)$$

Ainsi, la contrainte hydrostatique peut être infinie.

La représentation géométrique spatiale du critère de von Mises est celle d'un cylindre de base circulaire, centré sur la première trisectrice du système défini par les axes des contraintes principales. La Figure 1-18 a) montre une coupe des bornes de ce critère dans le plan $\sigma_1 - \sigma_2$.

Le critère de von Mises n'est pas totalement satisfaisant pour décrire la plasticité des polymères. En effet, non seulement le seuil de plasticité est fortement influencé par la contrainte hydrostatique (voir la Figure 1-17), comme le montrent les travaux de Rabinowitz *et coll.* [39], mais de plus les seuils de plasticité ne sont pas identiques en traction et en compression.

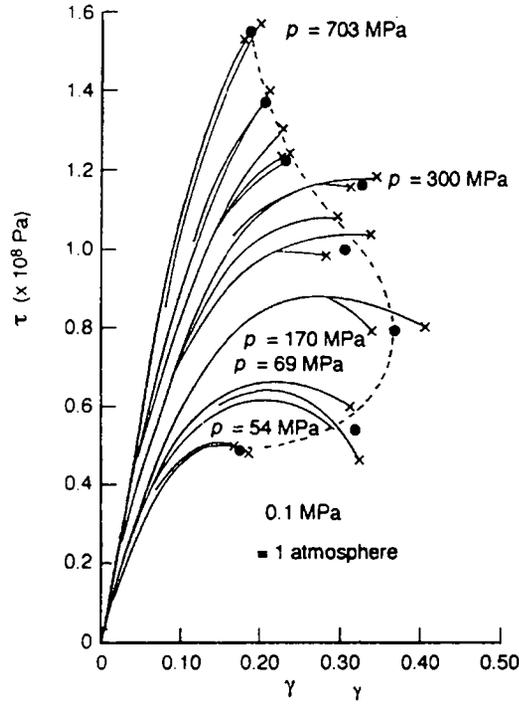


Figure 1-17: Courbes contrainte-déformation en cisaillement du PMMA à différentes pressions hydrostatiques. La courbe enveloppe représente la rupture [39].

La modification du critère de von Mises proposée par Sternstein [40] s'adapte bien au comportement de la plupart des polymères solides. Le critère de von Mises prend la forme de:

$$\tau_{oct} = \frac{1}{3} \left\{ (\sigma_1 - \sigma_2)^2 + (\sigma_2 - \sigma_3)^2 + (\sigma_3 - \sigma_1)^2 \right\}^{1/2} = \tau_0 - \alpha \frac{\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3}{3} \quad (1-18)$$

où τ_0 est une caractéristique intrinsèque du matériau, représentant la contrainte octaédrale critique à la limite élastique, observée en cisaillement pur, et $(\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3)/3$ la pression hydrostatique subie par le matériau.

La représentation tridimensionnelle de ce critère de plasticité est de géométrie conique, décentrée par rapport à la trisectrice du système d'axes des contraintes principales.

Sternstein & Ongchin [41] proposent également un critère de formation des craquelures, σ_c , de la forme:

$$\sigma_c = |\sigma_1 - \sigma_2| = A_1 + \frac{B_1}{I_1} \quad (1-19)$$

I_1 , est le premier invariant du tenseur des contraintes: $I_1 = \sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3$ et représente la composante dilatationnelle. A_1 et B_1 sont des paramètres du matériau, et dépendent du temps et de la température. Ce critère est bien en accord avec les observations de formation des craquelures perpendiculairement à la plus grande contrainte principale. Ainsi, il ne prévoit pas de formation de craquelures en cisaillement pur. L'interprétation physique de cette relation empirique, qui décrit bien les résultats expérimentaux des auteurs, est difficile. En particulier, l'évaluation de σ_c dans un état de contrainte triaxial pose problème.

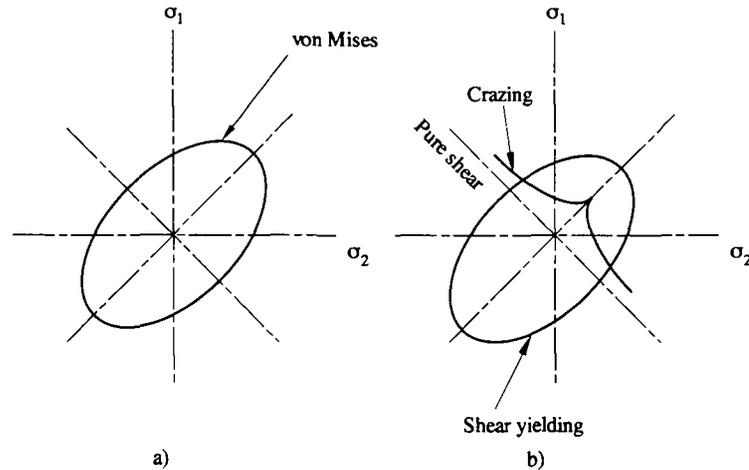


Figure 1-18: Représentation des critères de plasticité dans le plan σ_1 - σ_2 . a) von Mises, b) von Mises modifié, et critère de formation des craquelures selon [40].

Pour résoudre ce problème, Bowden et Oxborough [42] ont modifié ce critère. Ils postulent que les craquelures naissent lorsque la déformation dans n'importe quelle direction atteint une valeur critique, et que cette dernière dépend de la composante hydrostatique du tenseur des contraintes. Ils expriment leur critère ainsi:

$$\varepsilon_c = Y_1 + \frac{X_1}{I_1} \quad (1-20)$$

Y_1 et X_1 sont des paramètres du matériau, qui dépendent de la vitesse et de la température. En introduisant la relation contrainte-déformation:

$$\varepsilon_c = \frac{1}{E} (\sigma_1 - \nu\sigma_2 - \nu\sigma_3) \quad (1-21)$$

on peut réécrire le critère en terme de contraintes:

$$\sigma_1 - \nu\sigma_2 - \nu\sigma_3 = Y + \frac{X}{\sigma_1 + \sigma_2 + \sigma_3} \quad (1-22)$$

Ainsi le critère de Bowden & Oxborough est très similaire à celui de Sternstein & Ongchin en contrainte plane, mais il est applicable aux états de contrainte triaxiales.

La représentation dans le plan σ_1 - σ_2 du critère de formation des craquelures dans le PMMA est reportée schématiquement à la Figure 1-18 b). Dans le premier quadrant, les limites de formation des craquelures en contraintes biaxiales (état plan de contraintes) se situent toujours à l'intérieur de l'enveloppe de plasticité en cisaillement. Cela signifie que toutes les combinaisons de traction biaxiale engendrent des craquelures avant le cisaillement. La plasticité en cisaillement est cependant possible dans les autres quadrans, c'est-à-dire dans d'autres modes de sollicitation, comme le cisaillement pur ou la compression. Selon le matériau, la vitesse ou la température, la courbe enveloppe du critère est translatée sur la bissectrice des axes σ_1 - σ_2 . Ainsi, le type de déformation plastique qu'un matériau donné est amené à développer comme premier mode, dépend de la position de l'enveloppe du critère de formation des craquelures, selon qu'elle est à l'intérieur ou à l'extérieur du critère de déformation en cisaillement.

1.6. DISCUSSION

Comme nous l'avons vu dans ce chapitre, la nature des mécanismes de déformation est variée, et sensiblement influencée par la température et la vitesse de déformation. La quantité d'énergie dissipée lors de la déformation et de la rupture dépend de la nature de ces mécanismes. Les modèles thermomécaniques et les critères de plasticité peuvent rendre compte des lois de comportement, mais ne renseignent pas sur la nature des mécanismes à l'échelle macromoléculaire. Toutefois, certains chercheurs ont développé des modèles basés sur les théories moléculaires, mais leurs études portent souvent sur un type de matériaux précis et bien caractérisé. C'est probablement ce type d'approche qui a le plus de chances d'aboutir sur une théorie généralisée sur le comportement mécanique des polymères, car souvent on se rend compte que par extension, le modèle développé s'applique à une famille entière de polymères.

Toutefois, en dépit des importants progrès réalisés ces dernières années, il reste d'importantes zones d'ombres où les explications apportées par les groupes de recherche sont lacunaires, voire contradictoires.

Comme illustration, prenons pour exemple un phénomène particulièrement important pour l'application des matières plastiques aux grandes vitesses de déformation: la transition stable-instable de la rupture. C'est un point important, car il s'agit ici de la comparaison des mécanismes responsables de la rupture du comportement statique et dynamique. Comme nous l'avons vu ci-dessus, deux explications sont proposées:

- le blocage des mécanismes coopératifs de type β , par l'imposition de mécanismes de déformation de temps courts,
- l'échauffement adiabatique localisé en front de fissure qui provoquerait un abaissement local de la résistance du matériau.

Les conséquences de ces deux hypothèses sont opposées, car la première tend à rendre responsable des propriétés dynamiques les mécanismes coopératifs à temps court de type γ , et la deuxième tend à renvoyer la contribution locale vers les mécanismes de type α activés par l'élévation de température. Or jusqu'ici, on prenait pour acquis l'existence d'une relation unique $K-\dot{a}$. Selon des études récentes du groupe de Takahashi de l'Université de Kyushu [43], l'utilisation de la technique des ombres caustiques pour la mesure de l'état de contrainte en tête de fissure en régime de propagation dynamique transitoire montre que la relation ne serait pas unique. En faisant successivement accélérer, décélérer, puis ré-acceler la fissure dans un PMMA et une résine époxyde, ils ont mesuré des valeurs de K , différentes à l'accélération et à la décélération de la fissure. A ce jour, ils n'ont pas apporté d'interprétation physique à leurs observations, mais ils les ont vérifiées par une autre technique de mesure [44].

En réalité, et pour en revenir aux deux hypothèses ci-dessus, elles ont des conséquences radicalement opposées, mais aucune n'est à exclure. Il est parfaitement raisonnable d'imaginer que la contribution des mécanismes à temps de relaxation longs est impossible lorsque la température ne varie pas lors d'une sollicitation externe très brève, car la mobilité initiale n'est pas suffisante pour créer un échauffement significatif. En même temps, et si la mobilité moléculaire est suffisante à la vitesse considérée, l'important frottement interne local peut engendrer une élévation de température conséquente. L'effet de cette élévation est également inconnu, car selon les propriétés physico-chimique du matériau et son amplitude, elle peut accroître la mobilité locale ou au contraire provoquer la rupture de double liaisons (dégradation

thermique) [45]. Remarquons qu'un tel scénario est parfaitement compatible avec les observations expérimentales de certains chercheurs: on observe la formation et la rupture des craquelures par scission de chaînes (mobilité moléculaire faible), ou par désenchevêtrement (mobilité élevée) [46].

1.7. ENGLISH CAPTIONS

Figure 1-1: Microshear bands developed in plane strain compression in polystyrene observed between crossed polarisers [7].

Figure 1-2: Plastic instability in shear observed in circular polarised light in polycarbonate during a tensile test. 1) before test, 2) stress state before yielding, 3) stress state at yield, 4) formation, and 5) propagation of the plastic shear instability.

Figure 1-3: Measured ratio of yield stress, σ_y , to temperature, T , as a function of the logarithm of strain-rate, $\dot{\epsilon}$, and comparison with Bauwens's model a) Polycarbonate, b) PVC - line d shows the position of the β transition [13].

Figure 1-4: Schematic diagram showing the deformation mechanisms in semi-critalline polymers. a) Undeformed state, b) extension of the tie molecules, c) splitting of the lamellae, d) alignment along the strain direction [20].

Figure 1-5: Typical tensile stress-strain curves in polycarbonate [21]. The dots show the experimental values, and the lines are calculated from the Matsuoka model. a) At different temperatures, b) at different strain rates .

Figure 1-6: a) Muskhelishvili's representation of the Dugdale-Barenblatt zone. b) Fibrillar structure of a craze in polycarbonate observed by SEM [24].

Figure 1-7: Schematic diagram showing craze matter production by the mechanism of meniscus instability. a) Outline of a craze tip, b)-d) cross-section in the craze plane across craze matter tufts. The advance direction is x .

Figure 1-8: Growing mechanism of the fibrils by flow of chains throughout the active zone, h .

Figure 1-9: a) Thickness, $2v$, of a craze at the tip of a stationary crack in PMMA versus the stress intensity factor, K_I , in a unloading and reloading cycle. b) Stress distribution, σ_c , along the crack tip, s , at various stages of the loading cycle shown in a) [25].

Figure 1-10: Increase in length, s , and maximum width, $2v$, versus time, t , ahead of a stationary crack in a high molecular weight PMMA [25].

Figure 1-11: Distribution of the craze stress, σ_c , in PMMA, at four crack velocities, \dot{a} . The arrows indicates the position of the craze tip [25].

Figure 1-12: Critical stress intensity factors, K_{IC} , versus crack speed, \dot{a} , in PMMA at room temperature [25].

Figure 1-13: Change in craze with loading time: Regimes of the different molecular processes [25].

Figure 1-14: Crack speed dependence of the craze dimensions at the tips of propagating cracks in PMMA of different molecular weights. a) maximal craze width $2v_c$, b) craze length, s [25].

Figure 1-15: Relation $a - K_{IC}$ in PMMA at room temperature [30].

Figure 1-16: Different damage mechanisms in front of a crack tip in polymers [38].

Figure 1-17: Shear stress-strain curves for the PMMA at different hydrostatic pressure showing fracture envelope [39].

Figure 1-18: Cross-section of yield criterion in the plane of principal stress $\sigma_1 - \sigma_2$. a) Von Mises, b) modified von Mises, and craze formation criteria, according to [40].

1.8. REFERENCES

- 1 Barbezat M., *Influence de la vitesse de sollicitation sur le comportement des époxydes à matrice organique*, Thèse de doctorat, EPFL No 867, (1990)
- 2 Wolf C., *Approche thermodynamique et modélisation du comportement en absorption d'énergies de tubes composites*, Thèse de doctorat, Ecole des Mines de Paris, (1991)
- 3 Boogh L., *Mécanismes de déformation et de rupture des fibres de PE hautement orientées et de leur interface dans les composites*, Thèse de doctorat, EPFL No 1091, (1992)
- 4 Dijkstra K., *Deformation and fracture of Nylon 6- rubber blends*, Thèse de doctorat, Twente University, (1993)
- 5 Tézé L., *Relation entre les mouvements moléculaires, les micromécanismes de déformation et la fracture dans les copolymères statistiques à base de PMMA*, Thèse de doctorat de l'Université Pierre et Marie Curie (Paris VI), (1995)
- 6 Julien O., *Etude de la relation entre morphologie et propriétés mécaniques des PMMA renforcés au choc*, Thèse de doctorat de l'Université Pierre et Marie Curie (Paris VI), (1995)
- 7 Kinloch A.J., Young R.J., *Fracture Behaviour of Polymers*, (1983), Applied Science Publishers, Barking, England
- 8 Bowden, P.B., *The Physics of Glassy Polymers*, Haward, R.N. ed. (1973), Wiley, New York.
- 9 Argon, A.S., *Polymeric Materials*, Baer E, Radcliffe, V.S. eds, (1975) Metals Parks, OH: Amer. Soc. Met., pp 411-486.
- 10 Ward I.M., *Mechanical Properties of solid polymers*, 2e édition, (1983), Wiley New York.
- 11 Buckley, C., in *Materials Science and Technology*, Vol. 12, Ch 10, Thomas.E.L., ed, (1993), VCH, Weinheim.
- 12 Roetling, J.A., *Polymer* **6** (1965), p. 311.
- 13 Bauwens-Crowet, C, Bauwens, J.A., Homès,G., *J. Polymer Sci. A2*, **7**, (1969), p. 1745
- 14 Brown, N., *Failure of plastics*, Brostlow, W., Corneliussen, R.D., eds, (1986), Hanser, New York
- 15 Juska, T., Harrison, I.R., *Polym. Eng. Sci.* **22**, (1982), p. 766.
- 16 Popli, R., Mandelkern, L., *J. Polym. Sci. B, Polym. Phys.* **27**, (1987), p. 441.
- 17 Bowden, P.B., Young, R.J., *J. Mater. Sci* **9**, (1974), p 2034.
- 18 Young, R.J., *Developments in Polymer Fracture-1*, Andrew, E. H. ed. (1979), Applied Science, London
- 19 Saraf, R.F., Porter, R.S., *J. Polym. Sci. B, Polym. Phys.* **26**, (1988), p. 1049.
- 20 Haudin J.-M., Gsell C., *Introduction à la mécanique des polymères*, (1995), INPL, p.262
- 21 Matsuoka, S., *Failure of plastics*, Brostlow, W., Corneliussen, R.D., eds, (1986), Hanser, New York
- 22 Boyce, M.C., Arruda, E.M., *Pol. Sci. Eng.* **30**, (1990), p. 2034.
- 23 Parks, D.M., Ahzi, S., *J. Mech. Phys. Solids* **38**, (1990), p. 701.
- 24 Kausch H.H., Béguelin Ph., Dettenmaier M, Jud K, Moloney A, Nguyen T.Q, Stalder, B., *Swiss Plastics*, **2** (1980), 12, p. 15.
- 25 Döll W., Könczöl L., *Crazing in polymers*, 2, (1990), p. 137, Kausch. H.H. ed., Springer, Berlin
- 26 Schirrer R., *Crazing in polymers Vol. 2*, (1990), p. 215, Kausch. H.H. ed., Springer, Berlin
- 27 Argon A.S., Salama M.M., *Phil. Mag.* **36**, (1977), p.1217
- 28 Kausch.H.H, *Kunststoffe*, **66**,9, (1976), p. 538
- 29 Rothwell WS, Martinson RH, Gorman RL, *Applied Physics Letters*, **42**, (1983), 5,
- 30 Kausch. H.H. *Polymer Fracture*, 2nd ed. (1987), Springer, Berlin.

- 31 Kausch H.H., Plummer C.J.G., *Polymer* **35** (1994), 3848
- 32 Miller P., Buckley D.J., Kramer E.J., *J. Mat. Sci* **26** (1991), p. 4445
- 33 Williams J.G., Marshall G.P., *Proc. R. Soc.*, **A342**, (1975), p. 55
- 34 Williams J.G., *Adv. Polym. Sci.*, **27** (1978), p. 69
- 35 Könczöl L., Schinker M.G., Döll W., *6th Internat. Conf. on Deformation, Yield and Fracture of Polymers*, Cambridge, (1985). The Plastic and Rubber Institute. p.31.1
- 36 Jud K., Thèse de doctorat, No 413, EPFL (1981).
- 37 Marshall G.P., Coutt L.H., Williams J.G., *J. Mater. Sci.* **9**, (1974), p. 1409
- 38 Schirrer R., *Introduction à la mécanique des polymères*, (1995), Haudin J.-M., Gsell C. ed., INPL, p.395
- 39 Rabinowitz S., Ward I.M., Parry J.S.C., *J. Mater. Sci.* **5** (1970), 29
- 40 Sternstein S.S., *Yielding in glassy polymers*, in 'Polymeric Materials', ASM, Metals Park, Oh, (1975), p 369
- 41 Sternstein S.S, Ongchin L., *Polym. Pre-prints, Americ. Chem. Soc.*, **5**, (1964), p. 422
- 42 Bowden P.B., Oxborough R.J., *Phil. Mag.* **28**, (1973), p. 547
- 43 Arakawa K., Nagoh D., Takahashi K., *Submitted to Int. J. Fract.*, (1996).
- 44 Takahashi K., Arakawa K., *Experimental Mechanics*, **27**, (1987), 2, p.195
- 45 Fuller K.N.G., Fox P.G., *Field J.E.*, *Proc. R. Soc. Lond.*, **A 341**, (1975), p. 537
- 46 Plummer C.J.G, Donald A.M., *Macromolecules*, **23**, (1990), p. 3929

CHAPITRE 2

2.MECANIQUE DE LA RUPTURE

2.1.INTRODUCTION

L'étude du comportement des matériaux au voisinage des singularités de forme, qu'elles résultent d'un défaut, d'une fissure ou tout simplement d'une discontinuité de forme fonctionnelle, utilise la mécanique de la rupture.

Le concept de la mécanique de la rupture linéaire élastique ne s'applique à l'origine qu'aux matériaux qui obéissent à la loi de Hooke. Même si, comme nous le verrons plus tard, la rupture des matériaux, si fragiles soient-ils, implique le plus souvent des mécanismes localisés de déformation plastique, la stricte application de la mécanique linéaire élastique nécessite un comportement globalement élastique de la structure considérée.

Comme dans ce travail, nous n'avons pas présenté de données analysées selon la mécanique de la rupture élasto- plastique, nous ne l'aborderons pas ici.

2.2.MECANIQUE DE LA RUPTURE LINEAIRE ELASTIQUE

2.2.1.Défauts et concentrations des contraintes

Partant des forces de cohésion des atomes, on peut définir une énergie de surface, γ_s , spécifique nécessaire à rompre l'énergie d'équilibre atomique par la création d'une surface de rupture. En théorie, l'énergie minimale consommée par la rupture d'un matériau fragile équivaut à $2\gamma_s$ puisqu'une rupture crée toujours deux surfaces distinctes. La pratique expérimentale montre que l'énergie de rupture mesurée est au minimum de 3 à 4 fois $2\gamma_s$, et typiquement 100 à 1000 fois $2\gamma_s$ à la température ambiante.

La première mise en évidence quantitative d'une concentration de contrainte par Inglis, en 1913, porte sur l'analyse d'un trou elliptique dans une plaque chargée perpendiculairement au grand axe de l'ellipse. En émettant l'hypothèse d'une plaque infinie, c'est à dire dont la largeur et la hauteur sont beaucoup plus grandes que $2a$ et $2b$, respectivement le petit et le grand axe de l'ellipse.

La contrainte maximale située à la pointe du plus grand axe est:

$$\sigma_{\max} = \sigma \left(1 + \frac{2a}{b} \right), \text{ avec } \rho = \frac{b^2}{a}, \text{ il vient } \sigma_{\max} = \sigma \sqrt{1 + 2 \frac{a}{\rho}}$$

En assimilant une fissure à une ellipse où

$$a \gg b, \sigma_{\max} = 2\sigma \sqrt{\frac{a}{\rho}} \quad (2-1)$$

Finalement, si la fissure est infiniment aiguë, $\rho \rightarrow 0$, la contrainte maximale à la pointe de la fissure est infinie (champ asymptotique) même si la contrainte sur la structure est infinitésimale.

Aucun matériau n'est capable de résister à une contrainte infinie, aussi locale soit elle. Cette constatation est à l'origine de la théorie de Griffith qui trouve son fondement dans une approche énergétique plutôt que sur la contrainte locale.

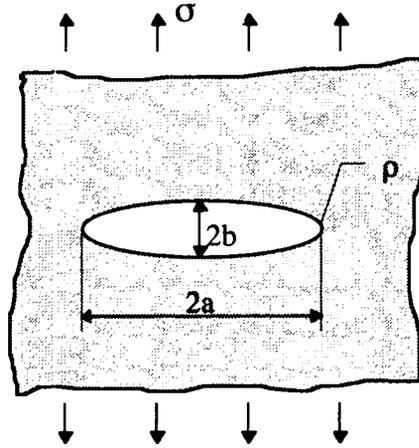


Figure 2-1 Trou elliptique dans une plaque

2.2.2. L'approche énergétique de Griffith

En 1920, Griffith [1] appliqua la première loi de la thermodynamique à la formation d'une fissure. Il postula que lorsque la fissure est créée, l'énergie élastique stockée dans la structure chute, et que cette énergie est consommée par la création de la nouvelle surface associée à la fissure. Le bilan d'énergie relatif à l'avance d'une fissure ou à l'accroissement de la surface d'un défaut dA est nul:

$$\frac{dU_t}{dA} = \frac{dU_{pot}}{dA} + \frac{dW_{rupture}}{dA} = 0 \quad (2-2) \quad \text{ainsi:} \quad -\frac{dU_{pot}}{dA} = \frac{dW_{rupture}}{dA} \quad (2-3)$$

Où U_t est l'énergie totale, U_{pot} l'énergie potentielle du système (forces extérieures ou contraintes internes), et $W_{rupture}$ le travail de rupture.

Dans le cas d'une plaque épaisse, d'épaisseur B contenant une fissure de longueur $2a$ et soumise à une contrainte globale σ , il montra que:

$$U_{pot} = U_0 - \frac{\pi\sigma^2 a^2 B}{E} \quad \text{où } U_0 \text{ est l'énergie potentielle d'une plaque non fissurée.}$$

Le travail de rupture $W_{rupture}$ est égal au produit des deux nouvelles surfaces créées par l'énergie de surface γ_s , soit $W_{rupture} = 4aB\gamma_s$ (2-4)

$$\text{Ainsi:} \quad -\frac{dU_{pot}}{dA} = \frac{\pi\sigma^2 a}{E} \quad (2-5) \quad \text{et} \quad \frac{dW_{rupture}}{dA} = 2\gamma_s \quad (2-6)$$

Partant des équations (2-5) et (2-6) on peut établir la contrainte à la rupture σ_f

$$\sigma_f = \sqrt{\frac{2E\gamma_s}{\pi a}} \quad (2-7)$$

On s'est rapidement rendu compte par l'expérimentation que même pour des solides au comportement presque idéalement élastique comme les verres, la contrainte de rupture est sensiblement plus élevée que calculée par l'équation (2-7). Irwin [2] et Orowan [3] ont proposés la modification de l'équation de Griffith pour y inclure l'expression de la déformation plastique:

$$\sigma_f = \sqrt{\frac{2E(\gamma_s + \gamma_p)}{\pi a}} \quad (2-8)$$

γ_p représente le travail plastique par unité de surface pour la nouvelle surface créée, et est sensiblement plus élevé que γ_s , qui ne prend en compte que le travail nécessaire à la rupture des liaisons atomiques, sans dissipation plastique quelconque.

Bien que basée sur la même approche que Griffith, celle d'Irwin est plus pratique du point de vue expérimental. Il introduit une grandeur G définie comme le taux de restitution d'énergie.

Pour une plaque épaisse, et de façon similaire à l'équation (2-5), le taux de restitution d'énergie pour une fissure de longueur $2a$ est: $G = \frac{\pi\sigma^2 a}{E}$ (2-9)

L'avance de la fissure a lieu à une valeur critique de G , appelée G_c qui est l'énergie de rupture du matériau, ou taux de restitution d'énergie critique:

$$G_c = \frac{dW_{rupture}}{dA} = R \quad (2-10)$$

Ainsi, G_c englobe l'énergie de surface γ_s et le travail plastique spécifique γ_p . Il s'agit de l'énergie nécessaire à la propagation de la rupture sur une surface dA , qu'on appelle également la résistance à la rupture R .

De même, par les équation (2-2) et (2-10), on peut écrire:

$$G_c = \frac{dU_t}{dA} - \frac{dU_{pot}}{dA} \quad (2-11)$$

2.2.3. Courbe R.

La résistance d'un matériau à la rupture peut-être représentée par sa courbe de résistance R en fonction de la longueur de la fissure a .

La figure 2-2 a montre l'exemple d'un matériau avec une courbe R plate. A la contrainte σ_1 , la fissure n'avance pas; par contre, à la contrainte σ_2 elle se propage de manière instable car la force motrice croît avec la longueur de la fissure si la charge (ou la contrainte globale) est constante.

La figure 2-2 b montre l'exemple d'un matériau avec une courbe R croissante. La contrainte σ_1 n'est pas assez élevée pour propager la fissure; la contrainte σ_2 la propage sur une petite longueur, puis elle s'arrête car la contrainte doit être supérieure pour la propager plus en avant. En revanche à σ_3 , la force motrice est tangente à la courbe de résistance, et la fissure croît de façon instable à partir de la longueur critique a_c .

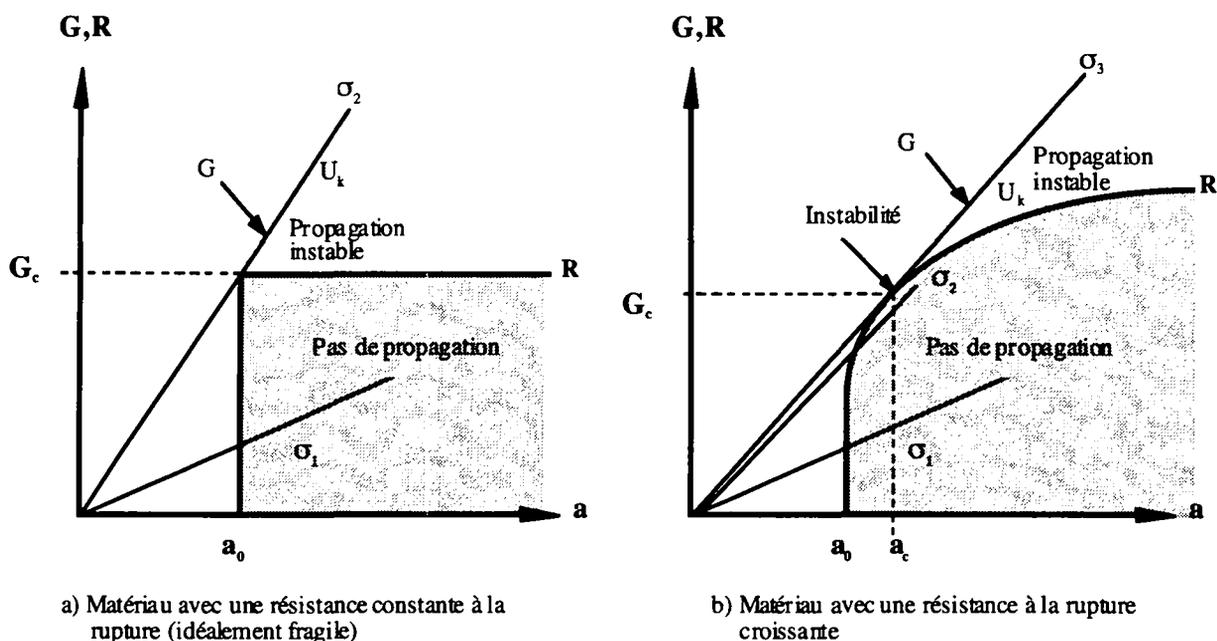


Figure 2-2: Représentation schématique de la courbe R de résistance à la rupture

La courbe R illustre les conditions de stabilité de la rupture. Lorsque $G=R$, la rupture est

stable, soit:
$$\frac{dG}{da} \leq \frac{dR}{da} \tag{2-12}$$

la rupture est instable si:
$$\frac{dG}{da} > \frac{dR}{da} \tag{2-13}$$

L'allure de la courbe R dépend du matériau et dans une moindre mesure de la configuration de la structure testée. Ainsi, les matériaux fragiles présentent une courbe R plate, tandis que ceux dont la résistance à la rupture est renforcée par des processus de durcissement plastique en tête de fissure ont une courbe de résistance qui croît avec la longueur de la fissure.

Si la courbe R est plate, G_c peut être déterminé sans ambiguïté, et cette valeur est un paramètre du matériau. Par contre, lorsque la courbe R croît, le matériau ne peut être défini par une valeur unique de G . Dans ce cas, l'idéal serait de définir G_c par la valeur à laquelle la fissure apparaît dans le matériau. Pratiquement, il est très difficile de repérer l'instant où la fissure commence à se propager. C'est la raison pour laquelle on définit une valeur G pour une longueur d'avance de fissure petite, par exemple 0.2 mm. Toutefois, la mesure de cette valeur ne donne pas d'indication sur la façon dont le matériau résiste à la rupture, soit la courbe R.

Par les équations (2-12) et (2-13), on comprend aisément l'influence du taux de changement de la force motrice de la fissure $\frac{dG}{da}$ sur la stabilité de la rupture. Les essais peuvent être

effectués en vitesse de déplacement contrôlée $\frac{du}{dt}$ ou en vitesse de chargement contrôlée $\frac{dF}{dt}$.

On admet généralement que le déplacement contrôlé conduit à une stabilité plus grande de la rupture. D'une façon similaire, certaines géométries tendent à promouvoir la stabilité de la rupture, c'est le cas des géométries de tension compacte (*compact tension*, CT), de la flexion 3 points entaillée (*single edge notched bent*, SENB), de la double torsion (*double torsion*, DT) et de la double poutre encastrée (*double cantilever beam*, DCB). D'autres géométries engendrent systématiquement une instabilité de rupture, comme la traction entaillée (*single edge notched*

tension, SEN, *double edge notched*, DEN), parce qu'elles accumulent une quantité importante de d'énergie potentielle U_{pot} par déformation élastique, et que cette dernière est soudainement restituée lorsque la rupture se met à croître. En rupture instable, la propagation de la fissure est auto-entretenu; il n'est plus nécessaire d'accroître les forces extérieures pour continuer à faire avancer la fissure, la déformation élastique accumulée par le spécimen est suffisante pour engendrer la force motrice nécessaire à étendre la rupture sur une grande distance. C'est la définition même de l'instabilité de rupture.

2.2.4. Analyse des contraintes autour des défauts.

Classiquement, la mécanique de la rupture traite des trois cas de chargement des fissures rencontrés dans la pratique (figure2-3):

Le *mode I* soit l'ouverture par clivage est le plus rencontré dans la pratique des essais de matériaux, car il correspond au mode de chargement qui crée le moins de plasticité dans les solides isotropes. Par conséquent, c'est le mode le moins dissipatif, et donc celui qui engendre la rupture des structures avec l'apport d'énergie extérieure le plus faible. Il est ainsi souvent le plus critique, en particulier pour les polymères homogènes.

Le *mode II* résulte du cisaillement dans le plan de la fissure, et est également dans certains cas un mode de sollicitation critique, en particulier pour les matériaux composites à matrice organique fortement anisotropes.

Le *mode III* consiste en un chargement hors plan de la structure du type déchirure, et est en généralement moins critique par la plasticité élevée qu'il induit.

Toutefois, il convient de garder en mémoire que dans les cas pratiques de sollicitation de structures, tous ces modes peuvent être combinés. Le mode le plus critique engendre la rupture de la structure en premier, et consécutivement la structure est déchargée. Pour un matériau donné, il importe de prendre en compte en premier le mode le plus faible.

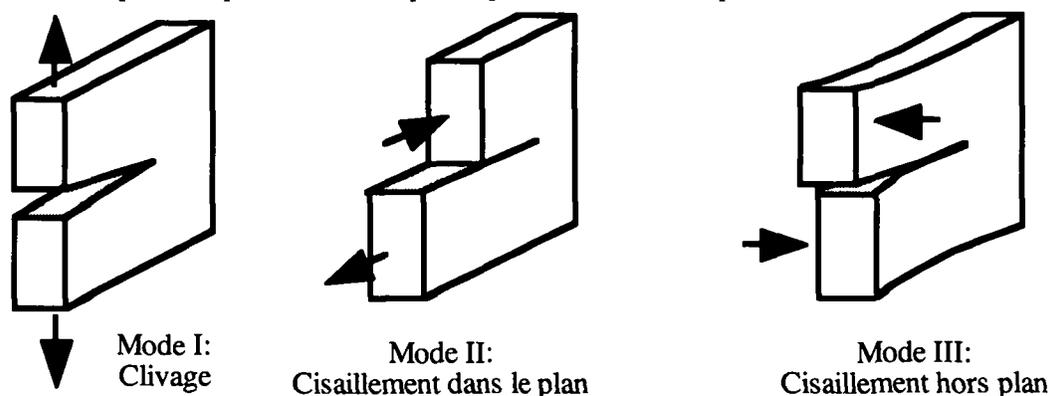


Figure 2-3: Représentation schématique des différents modes de sollicitation

On doit à Irwin [4] et à Williams [5] les premières solutions à l'analyse des contraintes en tête de fissure. Dans un système de coordonnées tel que représenté à la figure 2-4, ils ont montrés que le champ des contraintes en avant d'une fissure dans un corps élastique peut être

$$\sigma_{ij} = f_{ij}(\theta) \left(\frac{k}{r} \right) \quad (2-14)$$

avec k une constante, et r et θ les coordonnées polaires définies par la Figure 2-4.

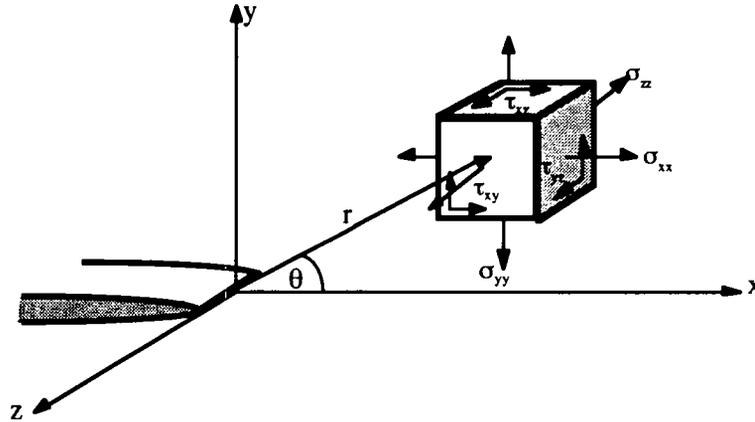


Figure 2-4: Système de coordonnées définissant les tenseurs des contraintes en tête d'une fissure

Tous les modes de sollicitations possèdent une singularité en $\frac{1}{\sqrt{r}}$ en tête de fissure, mais les constantes de proportionnalité k et f_{ij} dépendent du mode. On peut remplacer k par le *facteur d'intensité des contraintes* K , où $K = k\sqrt{2\pi}$. Le facteur d'intensité des contraintes est dénoté par un indice relatif au mode de sollicitation, tel que:

$$\begin{aligned} \lim_{r \rightarrow 0} \sigma_{ij}^{(I)} &= f_{ij}^{(I)}(\theta) \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}} \\ \lim_{r \rightarrow 0} \sigma_{ij}^{(II)} &= f_{ij}^{(II)}(\theta) \frac{K_{II}}{\sqrt{2\pi r}} \\ \lim_{r \rightarrow 0} \sigma_{ij}^{(III)} &= f_{ij}^{(III)}(\theta) \frac{K_{III}}{\sqrt{2\pi r}} \end{aligned} \tag{2-15}$$

Lorsque le mode de sollicitation est mixte, c'est-à-dire composé de plusieurs modes, les contributions individuelles des modes s'additionnent, soit:

$$\sigma_{ij}^{(total)} = \sigma_{ij}^{(I)} + \sigma_{ij}^{(II)} + \sigma_{ij}^{(III)}$$

La Tableau 2.1 [6] donne les expressions détaillées des f_{ij} pour les modes I et II.

Si l'on représente le champ des contraintes devant le front d'une fissure sollicitée en mode I, dans le plan de la fissure (soit $\theta=0$):

$$\sigma_{xx} = \sigma_{yy} = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}} \tag{2-16}$$

on voit bien son caractère asymptotique (figure 2-5). La singularité en $\frac{1}{\sqrt{r}}$ domine proche du front de fissure, tandis que la contrainte tend vers la valeur globale σ_∞ (à laquelle est soumise le reste de la structure) lorsqu'on s'en éloigne. Le facteur d'intensité des contraintes K décrit l'amplitude de la singularité en tête de fissure. Ainsi, K étant connu, il est possible de calculer toutes les composantes des contraintes, des déformations et des déplacements autour de la fissure (ou du défaut).

| Mode I | Mode II |
|---|---|
| $f'_{xx} = \cos\left(\frac{\theta}{2}\right) \left[1 - \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \sin\left(\frac{3\theta}{2}\right) \right]$ | $f''_{xx} = -\sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \left[2 + \cos\left(\frac{\theta}{2}\right) \cos\left(\frac{3\theta}{2}\right) \right]$ |
| $f'_{yy} = \cos\left(\frac{\theta}{2}\right) \left[1 + \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \sin\left(\frac{3\theta}{2}\right) \right]$ | $f''_{yy} = \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \cos\left(\frac{\theta}{2}\right) \cos\left(\frac{3\theta}{2}\right)$ |
| $f'_{xy} = \cos\left(\frac{\theta}{2}\right) \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \cos\left(\frac{3\theta}{2}\right)$ | $f''_{xy} = \cos\left(\frac{\theta}{2}\right) \left[1 - \sin\left(\frac{\theta}{2}\right) \sin\left(\frac{3\theta}{2}\right) \right]$ |
| $f'_{zz} = 0$ (Contrainte plane) | $f''_{zz} = 0$ (Contrainte plane) |
| $f'_{zz} = \nu(f'_{xx} + f'_{yy})$ (Déformation plane) | $f''_{zz} = \nu(f''_{xx} + f''_{yy})$ (Déformation plane) |
| $f'_{xz} = f'_{yz} = 0$ | $f''_{xz} = f''_{yz} = 0$ |

ν : coefficient de Poisson

Tableau 2.1: Facteur de proportionnalité, f_{ij} , entre la contrainte et le facteur d'intensité des contraintes en modes I et II à la tête de fissure d'un matériau linéaire élastique.

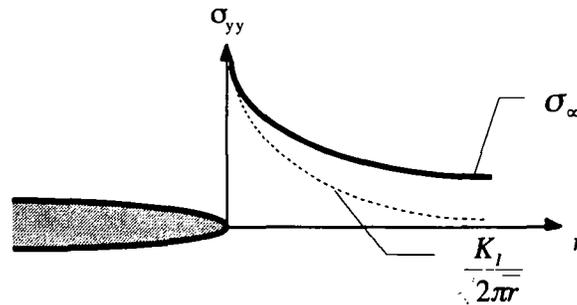


Figure 2-5: Contraintes normales au plan de rupture ($\theta=0$), en mode I dans un matériau élastique.

Inversement, on peut déterminer K simplement en connaissant les forces ou les déplacements extérieurs, et la géométrie. Ce paramètre apparaît donc comme l'un des plus importants de la mécanique de la rupture. La littérature reporte des solutions pour la plupart des géométries utilisées en pratique.

2.2.5. Etat plan de contrainte, état plan de déformation.

Comme la plupart des solutions de la mécanique de la rupture réduisent l'analyse à deux dimensions, elles émettent l'hypothèse qu'au moins une des contraintes ou des déformations principales est nulle. On parle alors d'un état plan de contrainte ou de déformation.

En général, les conditions qui prévalent en tête de fissure ne sont ni la contrainte plane, ni la déformation plane, mais sont tridimensionnelles. Il y a toutefois pas mal de cas où les hypothèses bidimensionnelles sont valables, et procurent au moins une bonne approximation.

En absence de fissure (ou défaut), une plaque d'épaisseur B soumise à un chargement dans son plan est dans un état plan de contrainte. Nous avons vu que si elle comporte une fissure, en tête de celle-ci le matériau est soumis à des contraintes plus élevées que dans le matériau qui l'entoure (Figure 2-5).

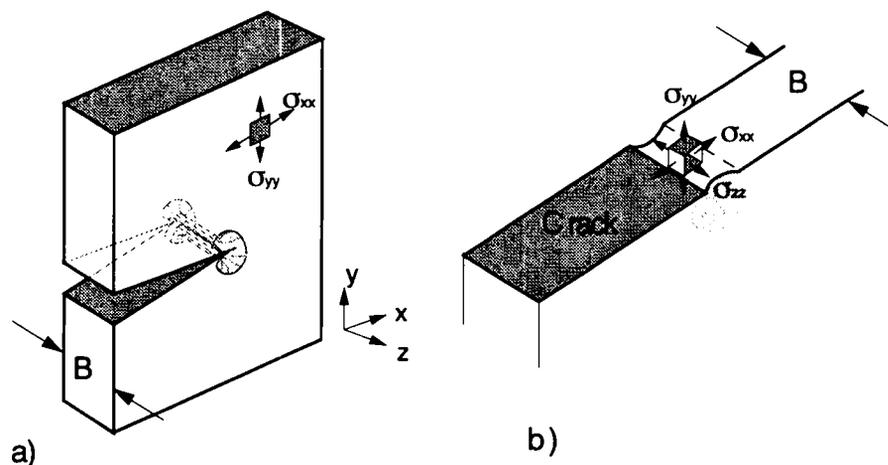


Figure 2-6: a) Déformations tridimensionnelles sur les surfaces externes du front de fissure (état plan de contrainte). b) Contraintes tridimensionnelles au front de fissure au centre du matériau (état plan de déformation)

A cause de la singularité de contrainte, la matière au front de fissure tend à se contracter dans les directions x et z , mais elle en est empêché par le matériau qui l'entoure. Cette restriction engendre localement un état de contrainte triaxial. Pour $r \ll B$, un état plan de déformation existe à l'intérieur de la plaque. Les plans externes, y compris en tête de fissure, sont soumis à un état plan de contrainte.

2.2.6. Relation entre G et K .

G définit un paramètre énergétique global qui rend compte du changement d'énergie potentielle qui accompagne la propagation d'une fissure dans une structure. K est un paramètre local, qui caractérise l'intensification des contraintes et des déformations dans la zone perturbée par la fissure ou le défaut. En mécanique linéaire élastique, la relation entre G et K est unique.

$$G = \frac{K^2}{E^*} \quad (2-17)$$

où E^* représente le module. En condition de contraintes planes, $E^* = E$; en condition de déformations planes: $E^* = \frac{E}{(1-\nu^2)}$.

2.2.7. Propagations instables et énergie cinétique.

En propagation de rupture instable, le surplus d'énergie entre l'énergie totale du système au moment de l'initiation et la résistance du matériau R , soit $G-R$ est converti en énergie cinétique (partie ombrée dénotée U_k sur la figure 2-2). Dans le cas d'une mise en charge statique suivie d'une propagation instable, l'énergie cinétique est associée aux déplacements rapides des deux parties de l'éprouvette situées de part et d'autre de la fissure se propageant à grande vitesse dans le matériau. Ce type de comportement est d'autant plus fréquemment rencontré lorsque les matériaux ont des propriétés qui dépendent de la vitesse: le seuil de plasticité augmente, et la résistance à la rupture diminue avec la vitesse de déformation. Ainsi, à la tête d'une fissure qui avance rapidement, la vitesse de déformation est très élevée, et les déformations plastiques

résultantes des propriétés viscoélastiques n'ont pas le temps de se développer. Le résultat est que le matériau peut présenter une résistance à la rupture R qui va en diminuant, une fois la fracture initiée.

En prenant en compte l'énergie cinétique U_k , on peut réécrire le bilan d'énergie de Griffith-Irwin de la façon suivante [7]:

$$G = R + \frac{dU_k}{dA} = \frac{dU_t}{dA} - \frac{dU_{pot}}{dA} - \frac{dU_k}{dA} \quad (2-18)$$

2.2.7.a) Evaluation de l'énergie cinétique.

L'estimation de l'énergie cinétique dans une plaque infinie, chargée en tension à une contrainte σ , et contenant une fissure de longueur $2a$ en fonction de la vitesse de propagation de la fissure, a , est due à Mott [8]:

$$U_k = \frac{1}{2} k \rho a^2 \left(\frac{\sigma}{E} \right)^2 \quad (2-19)$$

ρ est la densité du matériau, et k une constante .

A partir de la figure 2-2a, on peut également établir un bilan d'énergie de Griffith modifié pour le cas où R est constant. Le bilan pour G à contrainte σ_2 constante vaut:

$$U_k = \int_{a_0}^a (G - R) da = -R(a - a_0) + \int_{a_0}^a \frac{\pi \sigma^2 a}{E} da \quad (2-20)$$

$$\text{Au début de l'instabilité, } R = G_c = \frac{\pi \sigma^2 a_0}{E}, \text{ on a donc } U_k = \frac{\pi \sigma^2}{E} (a - a_0)^2 \quad (2-21)$$

On voit bien que dans le cas des propagations instables, où la rupture traverse la totalité du ligament sans s'arrêter, l'énergie de rupture mesurée par l'expérimentation, G_{mes} , (dont l'analyse est basée sur U_i) est plus grande que l'énergie de rupture réelle. La différence est due à l'énergie cinétique de l'éprouvette à l'instant où la surface du ligament est totalement rompue. Ainsi, dans le cas des propagation instable:

$$G_{mes} \geq G_c$$

2.2.7.b) Vitesse maximale des fissures.

$$\text{En égalant (2-19) et (2-21), il vient: } a = \sqrt{\frac{2\pi}{k}} \sqrt{\frac{E}{\rho}} \left(1 - \frac{a_0}{a} \right) \quad (2-22)$$

Remarquons que $\sqrt{\frac{E}{\rho}}$ est la vitesse des ondes longitudinales c_l (ou la vitesse du son dans le matériau). L'analyse de Roberts et Wells [9] montre que $\sqrt{\frac{2\pi}{k}} \approx 0.38$, et par là que la vitesse maximale d'une fissure, lorsque $a \gg a_0$ atteint une valeur limite de $0.38c_l$.

Toutefois il semble que la correspondance entre certaines valeurs mesurées et les prédictions de Roberts et Wells soient une coïncidence, car selon l'analyse plus récente de Freund [10], la vitesse de la fissure pourrait atteindre celle des ondes de Raleigh, soit $0.57c_r$.

2.2.8. Facteur de correction pour la zone plastique.

Aucun matériau ne pouvant supporter une contrainte infinie, l'hypothèse émise précédemment concernant le champ asymptotique n'est pas vraie dans la pratique. Dans les matériaux réels, la contrainte en avant de la fissure n'atteint pas une valeur infinie pour deux raisons:

- le rayon du front de la fissure n'est pas nul, mais d'une grandeur finie, et/ou:
- les contraintes élevées atteintes au front de fissure initient des mécanismes de déformation anélastiques localisés en avant de la fissure, tels que de la plasticité locale du matériau, et souvent la formation de craquelures dans les polymères.

Lorsque la zone plastique est petite et ne perturbe par de façon importante le comportement élastique globale de la géométrie testée, on parle de zone plastique confinée. Dans de tels cas, certains auteurs ont proposé une correction du facteur d'intensité des contraintes, en augmentant la longueur de la fissure d'une partie de la zone plastique.

2.2.8.a) Correction d'Irwin

En mode I dans le plan de fissure ($\theta=0$), lorsque la contrainte locale dépasse la valeur de la contrainte au seuil de plasticité, σ_y , du polymère, il se déforme plastiquement. En contrainte plane, le rayon de la zone plastique est estimée par Irwin à:

$$r_y = \frac{1}{2\pi} \left(\frac{K_I}{\sigma_y} \right)^2 \quad (2-23)$$

et en déformation plane:

$$r_y = \frac{1}{6\pi} \left(\frac{K_I}{\sigma_y} \right)^2 \quad (2-24)$$

Tenant compte d'une déformation plastique localisée en tête de fissure, on peut redéfinir la distribution des contraintes dans le plan de rupture du matériau, comme schématisé à la Figure 2-7.

L'intensité des contraintes est tronquée à la valeur de σ_y (le durcissement du matériau est négligé). Irwin propose l'utilisation d'un facteur d'intensité des contraintes, K_{eff} , basé sur la prise en compte de la longueur de la fissure, a , additionnée du rayon de la zone plastique, r_y .

La longueur de la fissure devient $a_{eff}=a+r_y$. Pratiquement, pour la détermination de K on le calcul d'abord avec a , sans correction de plasticité. Puis on estime la taille de la zone plastique par la relation (2-24), qui est additionnée à la longueur de la fissure pour appliquer une correction avec a_{eff} de premier ordre. Par le calcul récursif, on obtient une bonne convergence en trois ou quatre itérations.

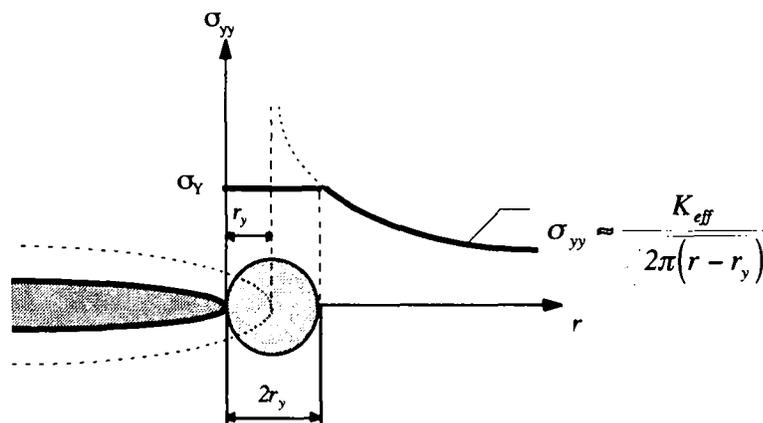


Figure 2-7: Redistribuion des contraintes par le développement d'une zone plastique en tête de fissure, selon Irwin.

2.2.8.b) Correction pour le modèle de la zone de cohésion

Le modèle de la zone de cohésion plastique, ou modèle de Dugdale-Barenblatt qui est schématisé à la figure 1-6 se prête bien à l'application des polymères formant des craquelures. Il approche la solution élastique-plastique par la superposition d'une contrainte élastique de fermeture du front de fissure à celle de l'ouverture exercée par la contrainte appliquée. En postulant l'équilibre de ces deux contributions, on peut calculer une longueur, s , de zone de cohésion qui tend à fermer la fissure par une contrainte σ_Y .

Cette approche aboutit à une longueur de la zone plastique, s , exprimée:

$$s = \frac{\pi}{8} \left(\frac{K_I}{\sigma_Y} \right)^2 \quad (2-25)$$

Les solutions d'Irwin et celle du modèle de la zone de cohésion donnent des tailles de zones plastique très proches, puisque la longueur de la zone plastique $2r_y$ calculée par l'équation (2-23) propose une constante de $1/\pi=0.318$, et que celle de l'équation (2-25) est de $\pi/8=0.392$.

En prenant en compte une longueur effective de la fissure de $a_{eff}=a+s$, le facteur d'intensité des contraintes corrigé devient:

$$K_{eff} = \sigma \sqrt{\pi a \sec\left(\frac{\pi a}{2\sigma_Y}\right)} \quad (2-26)$$

Ainsi, la prise en compte d'une petite zone plastique en tête de fissure donne des résultats identiques jusqu'à $\sigma=0.85\sigma_Y$, quel que soit le modèle utilisé [6]. Toutefois, on admet généralement que le modèle de la zone de cohésion plastique est celui qui s'applique le mieux aux polymères compte tenu de leurs mécanismes de déformation, bien qu'il ait été développé pour les films métalliques minces.

La longueur de la craquelure dans les polymères amorphes a déjà été discutée au Chapitre 1, et la prise en compte de la viscoélasticité du matériau dans l'équation (2-25) à été établie dans l'équation (1-11).

Lorsque la taille des régions déformées plastiquement devient trop importante, on parle de plasticité étendue. Il est alors nécessaire de prendre en compte les propriétés non-linéaires des matériaux.

2.3. VALIDITE DE LA MECANIQUE DE LA RUPTURE POUR LES POLYMERES

Les concepts de mécanique de la rupture linéaire élastique, linéaire non-élastique et élastique plastique sont communément appliqués aux polymères. Ils peuvent l'être sans restrictions pour les polymères purs à l'état vitreux qui possèdent le plus souvent un comportement globalement linéaire élastique. Pour les semi-cristallins en dessus de leur T_g , leurs propriétés viscoélastiques dépendent sensiblement du degré de cristallinité. En diminuant la température des essais ou la durée du chargement, ils peuvent passer d'un comportement viscoélastique plastique à un comportement quasi-élastique. En même temps, la plasticité généralisée diminue pour donner lieu à de la plasticité localisée autour de la fissure, puis confinée en tête de fissure. Si la mécanique de la rupture n'est généralement pas applicable à la croissance des fissures en fluage dans ces matériaux, elle l'est pratiquement toujours dans la gamme des temps de rupture que nous avons étudié dans le présent travail, soit des temps de sollicitation compris entre 30 secondes et 30 microsecondes. En effet, dans les matériaux visco-élastiques, les contraintes locales obéissent aux mêmes lois que les matériaux linéaires élastiques, et possèdent une singularité en $r^{-1/2}$ de la contrainte en tête de fissure.

Plus problématiques sont les polymères modifiés choc, car la modification par des particules vise à promouvoir une micro-plasticité localement élevée au front de fissure tout en conservant intactes les propriétés élastiques dans le reste de l'éprouvette. Pour ces raisons, ces matériaux sont souvent à la limite de l'utilisation de la LEFM, (paramètres K et G), ou de la mécanique de la rupture élastique-plastique (paramètres δ et J). Ce problème s'est posé avec d'autant plus d'acuité dans notre cas parce que nous utilisons la vitesse comme variable expérimentale. A grande vitesse le comportement de la plupart des polymères est élastique et fragile, et donne le plus souvent lieu à des propagations instable de la fissure.

Dans la pratique, la limite de validité de la L.E.F.M. est estimée par la taille de la zone plastique. Les normes sur la détermination de K_{IC} A.S.T.M. [11], de même que le protocole E.S.I.S. [12] définissent la condition pour l'applicabilité de la L.E.F.M.:

$$B, a \geq 2.5 \left(\frac{K_Q}{\sigma_Y} \right)^2 \quad (2-27)$$

Lorsque la mécanique linéaire de la rupture ne peut être appliquée parce que ce critère n'est pas respecté, c'est la mécanique de la rupture élastique-plastique qui est applicable. Une procédure de détermination de l'intégrale J aux faibles vitesses d'impact est en cours de développement et d'évaluation (*i.e* ESIS, Technical Committee 4).

2.3.1. Relation K - \dot{a} en propagation stable

En partant du modèle de la zone de cohésion de Dugdale-Barenblatt, on peut montrer que pour un matériau viscoélastique dont la croissance de la fissure stable est contrôlée par K [6, 13]:

$$K_{IC} \propto \dot{a}^n \quad (2-28)$$

avec, \dot{a} la vitesse de la fissure, et n l'exposant de la loi de puissance du module d'élasticité: $E(t) = E_0 t^n$.

Pour un comportement purement élastique, $n=0$, et la fissure est stationnaire en dessous de K_{IC} , et se propage de façon instable à cette valeur. n est typiquement plus petit que 0.1 pour les polymères en dessous de T_g . La Figure 2-8 montre l'effet de la variation de n sur la vitesse de la fissure lorsqu'on augmente K_I .

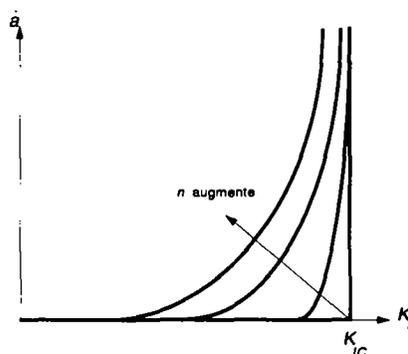


Figure 2-8: Représentation schématique de la relation entre la vitesse de propagation de la fissure, \dot{a} , et le facteur d'intensité des contraintes appliqué, K_I .

Si l'on soumet un matériau avec $n < 0.1$ à un test de K_I à court terme, avec une augmentation monotone de K jusqu'à la rupture, la croissance de la fissure dans la première partie des essais, dans la zone où K_I est petit est négligeable. Le spécimen se rompt brusquement dans le coude de la courbe, et K_{IC} est relativement insensible à la vitesse. Pour les temps courts, K_{IC} est donc une grandeur caractéristique du matériau.

2.4. DISCUSSION

Les principales hypothèses de la mécanique de la rupture discutées dans ce chapitre ont été développées par des mécaniciens pour comprendre la rupture des métaux. Par extension, ces théories sont appliquées aux polymères. Autant pour les métaux que pour les polymères, les micromécanismes de déformation localisés en tête de fissure sont souvent complexes, et difficiles à établir avec précision. Le développement de la science des matériaux contribue non seulement à une meilleure connaissance de ces mécanismes, mais permet le développement de nouveaux matériaux en anticipant sur les propriétés de rupture pour les améliorer par la promotion de mécanismes de déformation localisés adéquats. L'élaboration de matériaux composites, de matériaux à gradient de propriétés, ou simplement de matériaux modifiés au choc (qui sont discutés en détail au Chapitre 7) en sont l'exemple.

Pour de tels matériaux, l'application de la mécanique de la rupture selon des critères stricts n'est pas toujours aisée. Le comportement local en tête de fissure est souvent viscoélastique ou viscoplastique non-linéaire donc extrêmement complexe, alors qu'à faible distance du front de fissure déjà, ils sont viscoélastiques, voire élastiques. Il n'est souvent pas facile de choisir la théorie de la mécanique de la rupture appropriée au matériau considéré, qui plus est lorsque la vitesse de sollicitation est une variable, et qu'elle induit des transition de mécanisme de déformation.

C'est à notre avis la principale difficulté, et la limitation majeure à l'application de la mécanique de la rupture.

2.5. ENGLISH CAPTIONS

Figure 2-1: *Elliptical crack in a uniformly loaded infinite plate.*

Figure 2-2: *Schematic driving force/R-curve diagrams. a) Material with flat R curve (ideally brittle). b) Material with rising R curve.*

Figure 2-3: *The three modes of loading that can be applied to a crack.*

Figure 2-4: *Definition of the coordinate axis ahead of a crack tip.*

Figure 2-5: *Stress normal to the crack plane in mode I.*

Figure 2-6: *a) Tridimensional strain on the external surfaces of a crack (plane stress). b) Tridimensional stress state at a crack tip, at the center of the plate (plane strain).*

Figure 2-7: *Stress redistribution in front of the crack tip by a plastic zone, following Irwin. The increase in the effective stress intensity is taken into account by assuming the crack is longer by r_y .*

Figure 2-8: *Relation between the crack speed, a , and the stress intensity factor, K_{IC} , in steady state crack growth. n is the exponent of the power law.*

2.6. REFERENCES

- 1 Griffith A.A., *Philosophical transactions*, Serie A, **221**, (1920), p. 163.
- 2 Irwin G.R., *Fracture of Metals*, American Society for Metals, Cleveland, (1948), p. 147.
- 3 Orowan E., *Reports on Progress in Physics*, **XII**, (1948), p. 185.
- 4 Irwin G.R., *Journal of Applied Mechanics*, **24**, (1957), p. 361.
- 5 Williams M.L., *Journal of Applied Mechanics*, **24**, (1957), p. 109.
- 6 Anderson T.L., in *Fracture Mechanics -Fundamentals and Applications-*, (1991), CRC Press Inc.
- 7 Williams J.G., *Fracture Mechanics of Polymers*, (1987), Ellis Horwood, Chichester.
- 8 Mott N.F., *Engineering*, **165**, (1948), p. 16.
- 9 Roberts D.K., Wells A.A., *Engineering*, **178**, (1954), p. 820.
- 10 Freund L.B, in *The Mechanics of Fracture*, American Society of Mechanical Engineers, New York, (1976), p. 105.
- 11 D5045-91a *Standard Test Methods for Plane Strain Fracture Toughness and Strain Energy Release Rate of Plastics Materials.*, ASTM, Philadelphia, PA, (1991)
- 12 ESIS Technical Committee 4, *A Linear Elastic Fracture Mechanics (LEFM) Standard for Determining K_{IC} at G_C - Testing Protocol 1990-*
- 13 Marshall G.P., Coutts, L.H, Williams J.G., *J. Mat. Sci.*, **13**, (1974), p. 1409

CHAPITRE 3

3. TECHNIQUE EXPERIMENTALE DES ESSAIS DE TRACTION AUX GRANDES VITESSES

3.1. INTRODUCTION

Parmi les objectifs principaux de ce travail figure le développement et l'évaluation d'une technique expérimentale d'investigation des polymères aux grandes vitesses. Lorsque l'on considère la vitesse de déformation comme variable expérimentale, il est utile de classer les différentes méthodes expérimentales par les vitesses de déformation qu'elles sont capables de produire. En 1971, Lindholm [1] a proposé la classification du Tableau 3-1.

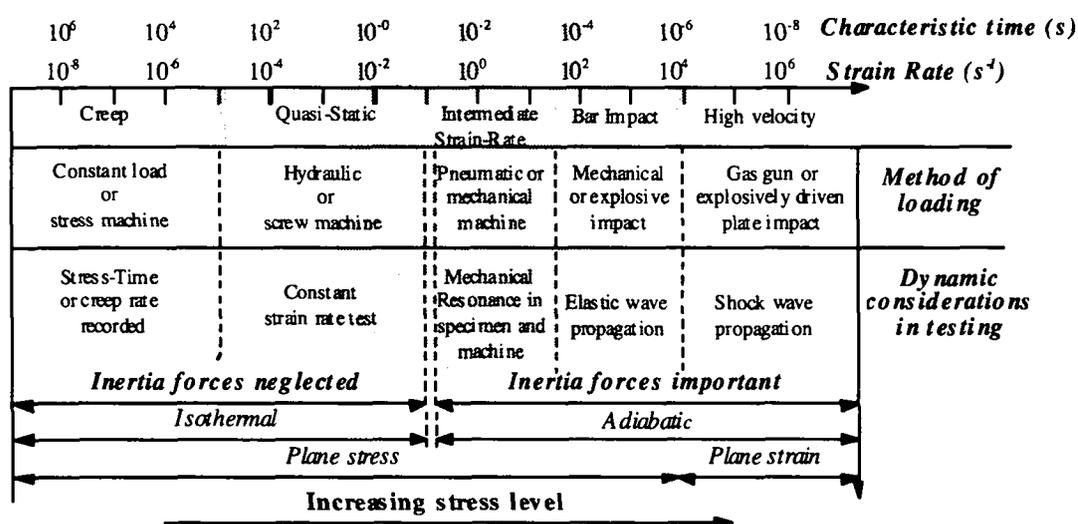


Tableau 3-1: Classification des techniques d'essais en fonction des aspects dynamiques.

Les moyens d'essais ont évolué depuis la classification de Lindholm, mais surtout en ce qui concerne les capteurs et le conditionnement électronique des signaux de commande et de mesure. Les principes mécaniques des essais n'ont pratiquement pas évolués.

En excluant le domaine balistique, considérons le domaine des grandes vitesses, soit le domaine qui correspond aux vitesses de déformation imposées à une structure mécanique pouvant contenir des êtres humains dont la survie doit être assurée en cas d'impact de la structure. Le domaine des vitesses de déformation est compris entre 10^{-1} et $10^3 s^{-1}$, et couvre le domaine où les forces d'inertie deviennent importantes, car il s'agit ici du domaine de transition entre les essais statiques et les essais dynamiques.

Cette plage de vitesse est couverte en recourant à plusieurs techniques expérimentales. Sa partie inférieure est couverte par les machines à vis et servo-hydrauliques traditionnelles, qui peuvent monter en vitesse jusqu'à $1 ms^{-1}$. Pour les vitesses comprises entre 1 et $5 ms^{-1}$, on utilise généralement des pendules de choc, ou des machines à poids tombant par gravité. Au delà on propulse les masses tombantes pour élever la vitesse.

Pour les vitesses de déformations supérieures à 10^3 s^{-1} , on utilise des machines tournantes à inertie, mais surtout les barres de Hopkinson. Leur principe est basé sur l'énergie cinétique emmagasinée dans une longue barre percutée à une extrémité, et dont l'autre supporte l'éprouvette à tester. La grande longueur de la barre d'entrée, et l'utilisation d'une barre de sortie conduisent à une mesure propre du signal de force, exempte d'effets dynamiques dans la mesure où l'éprouvette est sollicitée par un train d'ondes longitudinales voyageant dans la barre d'entrée. Cette technique permet un bilan précis de l'énergie dissipée dans l'éprouvette. Si l'énergie délivrée peut être ajustée par la taille des barres, le déplacement produit en revanche est très réduit, limitant la technique aux faibles déplacements [2, 3]. Des modifications apportées au système original qui ne permettait que la sollicitation en compression autorisent l'utilisation des barres en traction, et à certaines géométries de mécanique de la rupture [1].

Toutes les autres techniques, telles que les pendules, les poids tombants nécessitent une accélération à vide du système de chargement pour ne pas solliciter l'éprouvette pendant la phase d'accélération. C'est le cas en particulier des machines d'essai servo-hydrauliques telles que celle que nous avons utilisé pour ce travail.

L'instrumentation et la méthode utilisées pour la caractérisation en traction qui fait l'objet du présent chapitre couvre le domaine des vitesses de déformations compris entre 5×10^{-3} et 10^3 s^{-1} (domaine en grisé sur le Tableau 3-1). C'est probablement le domaine de vitesse le moins étudié en traction, car il existe très peu de bancs d'essai et de procédures expérimentales développées pour couvrir cette gamme.

Notre démarche a visé à l'élaboration d'un banc d'essai conduisant à une procédure expérimentale la plus simple possible, sans recourir à l'instrumentation du spécimen testé. Il s'agit d'une méthode de semi-routine que nous avons appliquée dans le cadre de plusieurs mandats de recherche industriels. Dans le cadre de ces mandats, nous avons étudiés aussi bien le comportement aux grandes vitesses des films d'emballage, que celui des adhésifs de pare-brise ou encore les matériaux composant le tableau de bord des automobiles.

3.2. DESCRIPTION DE L'EQUIPEMENT UTILISE

Nous avons utilisé une machine d'essai servo-hydraulique de marque Schenck Hydropuls POZ 1152. Les caractéristiques de l'équipement sont résumées dans le Tableau 3-2:

| | | | |
|---------------------------|--------------------------------|-------------------|-----------------------------|
| Force maximale développée | statique | 16 kN | |
| | dynamique | 13 kN | |
| servovalve à 2 étages | débit: 19 lmin^{-1} | vitesse du vérin: | $10^{-4}-1 \text{ ms}^{-1}$ |
| servovalve à 3 étages | débit: 250 lmin^{-1} | vitesse du vérin: | $1-10 \text{ ms}^{-1}$ |
| pression de service | 290 bars | | |
| capteur de force statique | à pont de jauge | capacité: | 16 kN |

Tableau 3-2: Caractéristiques de la machine d'essais servo-hydraulique Schenck Hydropuls

Les systèmes de mesure et d'acquisition associés à cette machine sont les suivants:

- Cellules de force et capteurs pour essais dynamiques transitoires
- Système optique de mesure des déplacements à grande vitesse
- Mémoire numérique à transitoires WW, 4 canaux à 8 bits, 64 koctets, fréquence d'acquisition maximale: 2MHz, bande passante: 100 kHz.
- Ordinateur HP 360 (récemment remplacé par un DEC Celebris).

Le schéma de principe du banc d'essai est représenté à la Figure 3-1.

Une grande partie des accessoires du banc d'essai ont été conçu, assemblés ou programmés par nous-même. Il s'agit de:

- la liaison entre l'électronique d'acquisition et l'ordinateur, les programmes d'acquisition et de traitement du signal,
- les systèmes capteurs de force-fixations,
- le détecteur optique de déplacement.

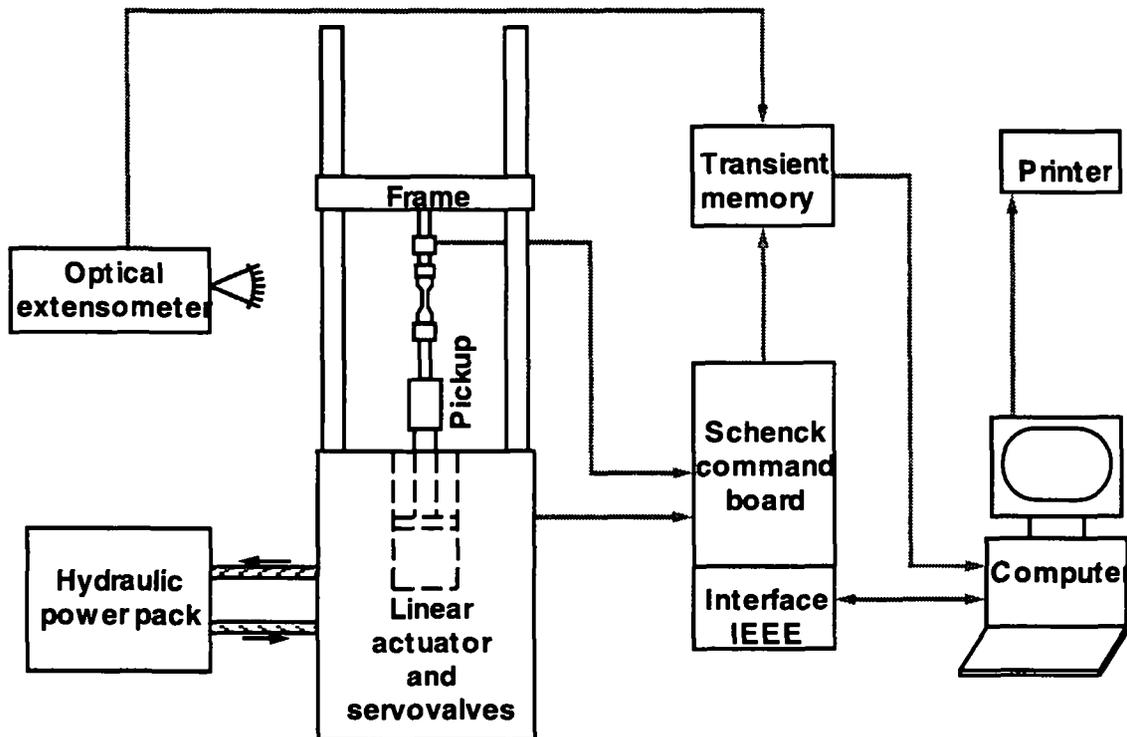


Figure 3-1: Schéma d'ensemble du banc d'essai servo-hydraulique

3.2.1. Dispositif de transmission du mouvement

Etant donné la masse élevée du piston (plusieurs dizaines de kilos), il ne peut être accéléré instantanément à grande vitesse. C'est pourquoi, aux vitesses supérieures à $\sim 0.1 \text{ ms}^{-1}$, il est nécessaire d'accélérer le piston jusqu'à sa vitesse nominale sans transmettre de déformation à l'éprouvette. A cet effet, un dispositif mécanique permet l'accélération à vide, et le mouvement n'est transmis à l'éprouvette qu'une fois que la vitesse désirée est atteinte. Ce dispositif est appelé le dispositif de transmission du mouvement (en anglais: *pickup*, ou *slammer assembly*). Il est représenté schématiquement à la Figure 3-2:

Comme nous le verrons dans la suite de ce chapitre, cet assemblage mécanique revêt la plus haute importance quant à la nature des tests mécaniques générés, en particulier concernant l'accélération et la vitesse des essais.

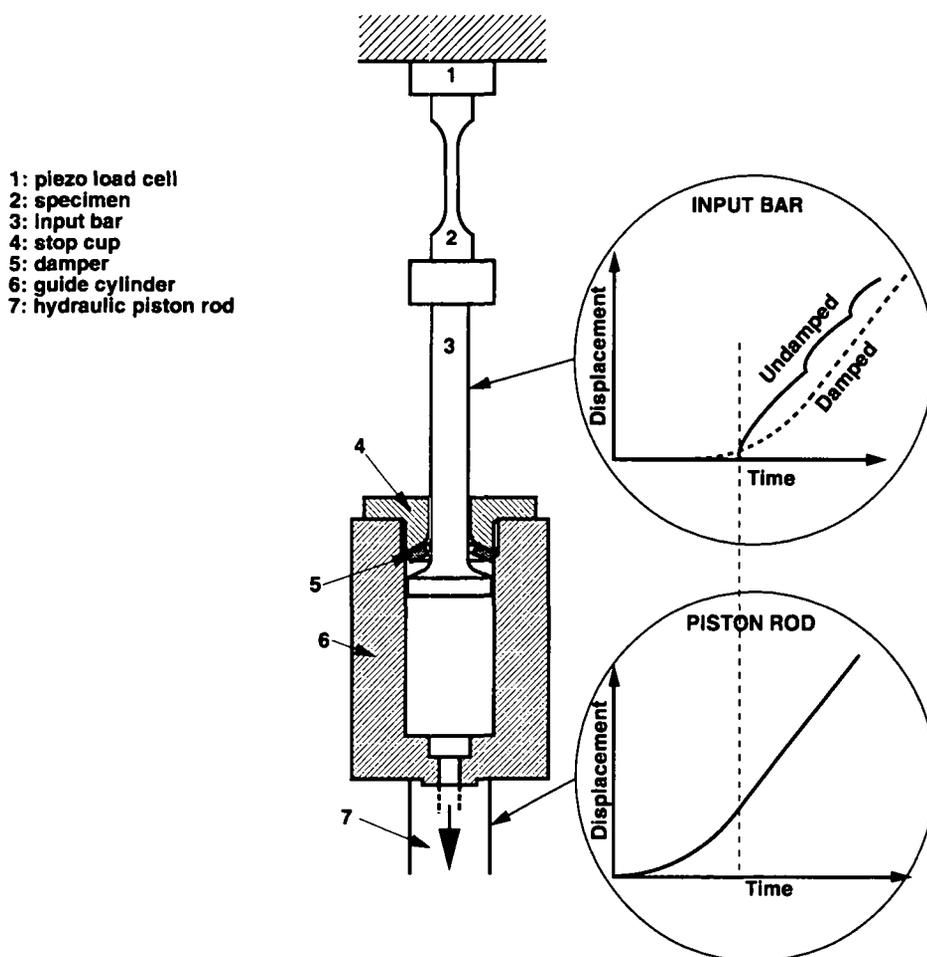


Figure 3-2: Représentation schématique du dispositif de transmission du mouvement. 1: cellule de force piézo, 2: éprouvette, 3: barre d'entrée, 4: flasque de retenue, 5: amortisseur, 6: cylindre de guidage, 7: piston du vérin hydraulique. Les déplacements en fonction du temps des éléments sont représentés dans les cercles de droite.

3.2.2. Mesure de la force en régime transitoire.

Pour les essais aux petites vitesses ($<0.1 \text{ ms}^{-1}$) la mesure de la force sur l'échantillon ne pose pas de problème pour les déformations en régime établi, et la technique des capteurs à pont de jauges est adéquate (capteur statique du Tableau 3-2). En régime transitoire, aux grandes vitesses de sollicitation, l'état d'équilibre de la chaîne de mesure doit être établi le plus rapidement possible. A cet effet, et selon le principe de l'oscillateur mécanique représenté à la Figure 3-3, les éléments placés entre l'éprouvette et le système de mesure de la force doivent être les plus légers, et les plus rigides possible.

Il est donc important d'utiliser un système de fixation et une cellule de masses minimum pour une rigidité maximum. C'est la règle qui a été adoptée pour le développement du mors supérieure de traction et pour le choix de la cellule de force.

Afin d'obtenir la fréquence de résonance la plus élevée possible des capteurs de forces, nous avons opté pour une technique d'assemblage à partir d'anneaux de charge piézo-électriques

Kistler. Les mors ont été usinés dans du titane et simplifiés au maximum. Les caractéristiques des deux ensembles cellule-mors développés figurent au Tableau 3-3.

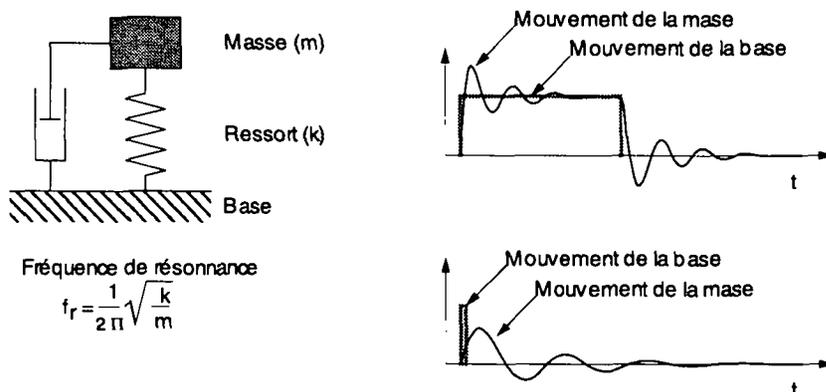


Figure 3-3: Réponse d'un oscillateur mécanique élémentaire à une impulsion transitoire de la base.

L'ensemble No 1 est utilisé pour les essais en traction des composites renforcés par des fibres, et l'ensemble No 2 convient pour les polymères non renforcés. Une représentation schématique de l'ensemble No 2 qui a été utilisé dans le cadre de ce travail pour la caractérisation en traction est montré à la Figure 3-4.

L'utilisation des anneaux de charge pour la sollicitation en traction requiert qu'ils soient précontraints à une valeur de force supérieure à la moitié de leur capacité nominale.

La charge délivrée par le capteur de force (qui est de l'ordre de $\sim 2 \text{ pCN}^{-1}$) est convertie en une tension de mesure 0-10 Volts par un amplificateur de charge de type Kistler 5053A. La calibration est effectuée statiquement par l'application d'une force connue pour une durée de quelques secondes. Nous avons vérifié expérimentalement l'adéquation de cette procédure pour la mesure des forces en régime dynamique transitoire.

| Type d'anneau de charge | Force maximale de traction | Masse de l'ensemble | Fréquence de résonance mesurée |
|-------------------------|----------------------------|---------------------|--------------------------------|
| (No 1) Kistler 9061 | 20 kN | 0.390 kg | 14 kHz |
| (No 2) Kistler 9011 | 7.5 kN | 0.035 kg | 35 kHz |

Tableau 3-3: Caractéristiques des ensembles mors-cellule de force utilisés pour les essais de traction

3.2.3. Mesure du déplacement

La position du piston servo-hydraulique est mesurée par un capteur à noyau inductif monté à l'intérieur du vérin. Ce capteur sert à l'asservissement en position. Il mesure donc la position de la partie inférieure du dispositif de transmission du mouvement (pièces 4-7 de la Figure 3-2). Lorsque, après l'accélération à vide du piston, la barre d'entrée (3) vient en contact avec la flasque (4), le système possède un demi degré de liberté. Dès lors, la mesure du déplacement du vérin ne correspond pas au déplacement du mors inférieur solidaire de la barre d'entrée (3). Il est néanmoins indispensable pour l'interprétation des essais d'avoir une connaissance parfaite du déplacement imposé à l'éprouvette.

Pour résoudre ce problème, ainsi que pour permettre la mesure de la déformation du fût de l'éprouvette pendant l'essai, nous avons développé un extensomètre optique. Ce développement a été rendu nécessaire par les accélérations élevées qui surviennent sur ces pièces (plus de 1000 g pour les grandes vitesses), et parce qu'il n'existait aucun système de mesure extensométrique disponible commercialement qui soit capable de supporter de telles accélérations.

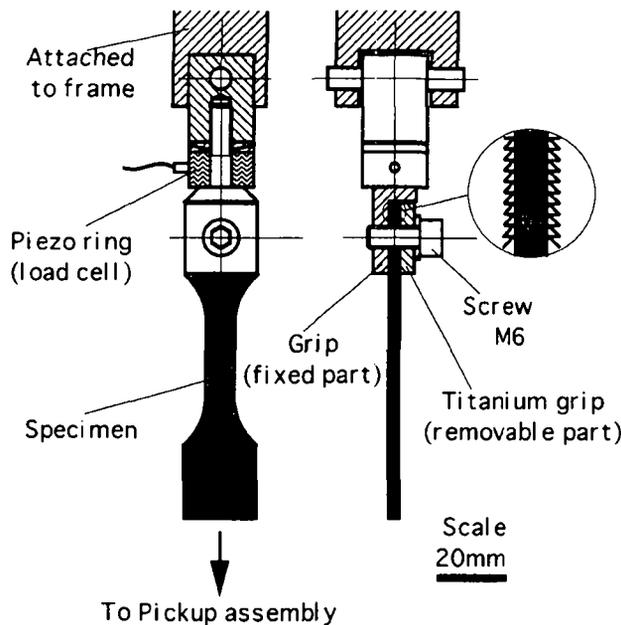


Figure 3-4: Schéma de l'ensemble mors de traction-anneau de charge No 2.

3.2.3.a) Principe de la mesure

Le schéma de principe du système développé est reporté à la Figure 3-5. Son fonctionnement est le suivant: un faisceau lumineux d'une longueur d'onde de 830 nm est généré par une diode laser de 40 mW (5). La lumière est injectée dans une fibre optique minérale de 250 μm de diamètre extérieur (4) via un connecteur pour fibre optique. L'extrémité libre de la fibre optique est attachée au point dont on désire mesurer le déplacement (3). En raison de leur faible masse (70 mgm^{-1}), les fibres optiques ne sont pas affectées par les grandes accélérations auxquelles les éprouvettes sont soumises. Un détecteur optique (1) du type photodétecteur de positionnement linéaire à semi-conducteur au silicium -PSD- est placé en face de la surface d'émission de la fibre optique et détecte la position du barycentre de l'émetteur de lumière [4]. L'électronique de mesure développée pour la circonstance par M.M. Poliak et Gramiger délivre une tension électrique ($\pm 10 \text{ V}$) proportionnelle à la position de l'émetteur de lumière (6). Le boîtier électronique affiche l'intensité de lumière reçue par le PSD, permettant le contrôle de l'alignement des éléments.

Pour la mesure extensométrique, qui est la mesure du mouvement relatif de deux points de référence du fût de l'éprouvette, le système décrit ci-dessus est doublé. L'électronique produit une tension différentielle qui est proportionnelle à l'éloignement des fibres optiques attachées sur la surface de l'éprouvette. Les fibres sont collées par une bande adhésive à double face, dont le substrat est un élastomère (Technicoll-Strip, BDF Beiersdorf, D).

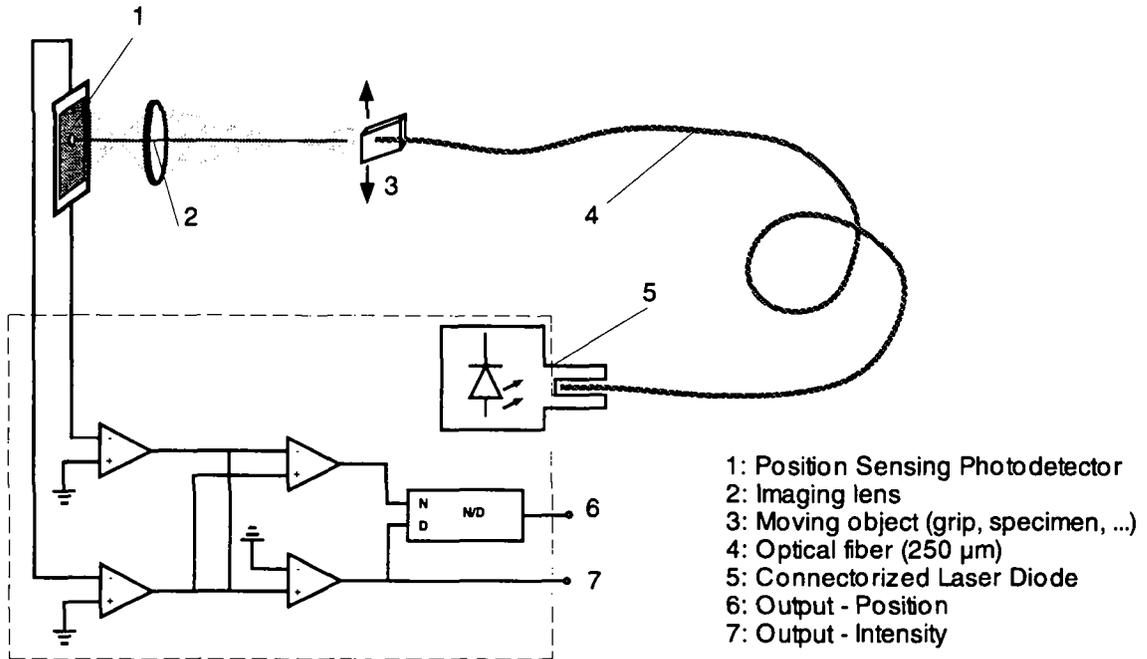


Figure 3-5: Schéma de principe du dispositif d'extensométrie optique développé.

3.2.3.b) Précision de la mesure

Le système peut être utilisé en pleine lumière ambiante, la précision n'est pas affectée par les changements d'intensité lumineuse.

Deux prototypes de l'électronique ont été réalisés par M.M. Poliak et Gramiger. De même, nous avons construit plusieurs versions du détecteur et du banc optique associé. La version la plus récente est représentée schématiquement à la

Figure 3-6. L'utilisation d'une lentille (2) permet de trouver le meilleur compromis précision-plage de mesure. Dans la version finale, nous utilisons des PSD d'une longueur utile de 5 mm. La précision nominale des détecteurs est de 0.1-0.2% sur 90% de la longueur utile.

L'ajustement de la plage de mesure et par conséquent de la précision de mesure est possible par le changement de tous les paramètres optiques. Pour autoriser des distances initiales, l_0 , les plus petites possibles, l'optique comprend des prismes de renvoi (1) qui tournent de 90° l'axe optique. Les lentilles placées derrière le prisme (2) servent à l'ajustement du gain optique. Nous utilisons des lentilles corrigées pour les aberrations optiques, d'une distance focale, f , comprise entre 20 et 80 mm. L'ajustement optique suit la relation:

$$\frac{1}{f} = \frac{1}{d} + \frac{1}{d'} \quad (3-1)$$

et le gain optique, m , vaut:

$$m = \frac{d'}{d} \quad (3-2)$$

L'utilisation d'une lentille rend le système très versatile, et la calibration s'étend typiquement entre 0.3 et 2.4 V/mm. Il est donc possible d'appliquer ce système aussi bien à la mesure des matériaux composites qu'à celle des élastomères.

La calibration et l'ajustement de l_0 sont assurés par les vis micrométriques (4). Le positionnement précis des PSD sur l'axe optique est réalisé par les vis (5).

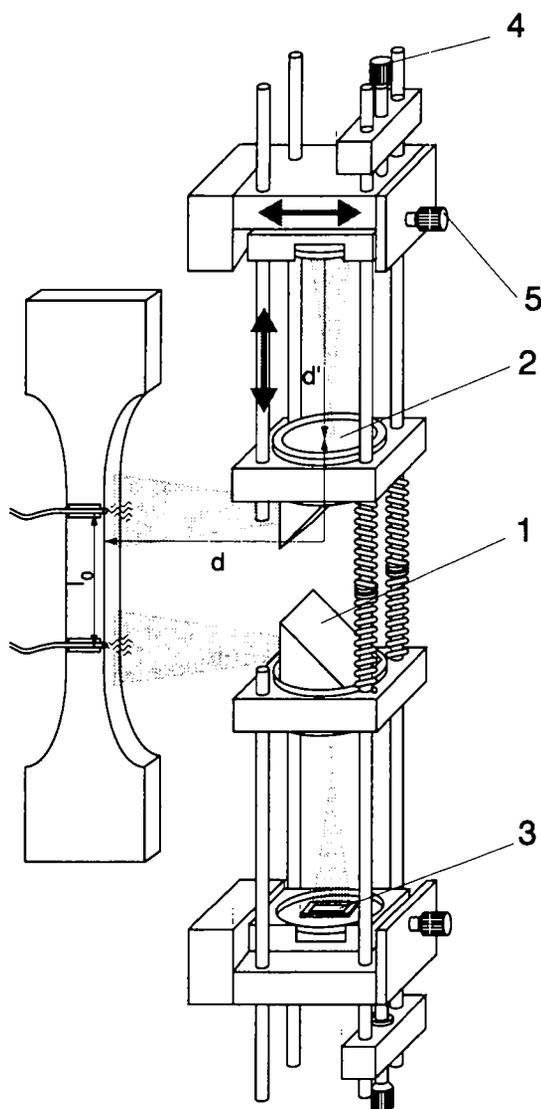


Figure 3-6: Schéma du banc optique extensométrique supportant les détecteurs PSD.

3.2.3.c) Vitesse maximale de la mesure du déplacement

Le temps de réponse typique des PSD est inférieur à la microseconde (10%-90% de la plage), et comme l'électronique de mesure est analogique à large bande passante, le système peut être utilisé sur toute la plage de vitesse de la machine servo-hydraulique. Les vitesses maximales auxquelles nous avons travaillé s'étendent jusqu'à $\sim 20 \text{ ms}^{-1}$, et nous n'avons jamais rencontré de facteur limitatif en vitesse.

La Figure 3-7 montre l'exemple d'une mesure effectuée dans le cadre d'essais de matériaux composites à matrice polyamide 6 (PA6), renforcés par des fibres de verres tissées à $0^\circ/90^\circ$.

L'essai représenté résulte d'un incident, car l'éprouvette a glissé dans le mors inférieur se déplaçant à 0.1 ms^{-1} provoquant un comportement dynamique transitoire du système. Il est illustratif de la mesure, en ce sens qu'il montre bien la corrélation établie entre la force, F , mesurée par l'assemblage mors-cellule No1 et l'élongation du fût, Δl , mesuré par l'extensomètre optique.

La Figure 3-7 illustre bien la corrélation force-élongation d'un système linéaire élastique. A cette vitesse le décalage temporel existant entre les mesures de force et de déplacement (qui résulte de la mesure de ces paramètres à des locations différentes du spécimen) n'est pas significatif. Aux vitesses les plus élevées de la machine d'essai en revanche, ce décalage peut être la source d'imprécisions importantes, en particulier pour le test des matrices fragiles [5].

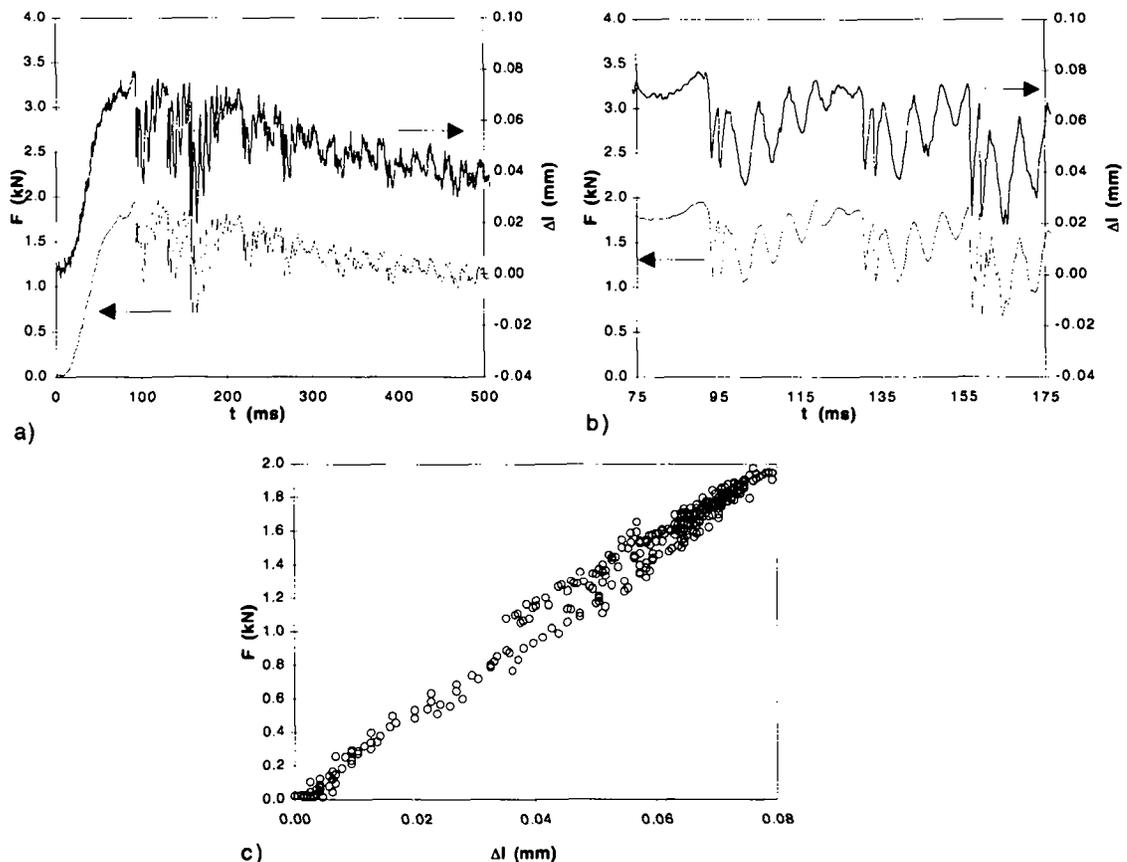


Figure 3-7: Comportement en traction d'un PA6 renforcé par des fibres de verre à $\pm 90^\circ$. L'éprouvette a glissé dans le mors inférieur. a) Mesures de la force, F , et du déplacement, Δl , en fonction du temps. b) agrandissement de a, c) Représentation F - Δl .

3.3. PROBLEMES DYNAMIQUES

Aux vitesses d'essais supérieures à $\sim 0.5 \text{ ms}^{-1}$, les problèmes dynamiques liés aux effets d'inertie des masses accélérées en cours d'essais sont perceptibles. La Figure 3-8 montre trois exemples d'essais de traction à 2.3 ms^{-1} sur un polycarbonate (PC) qui sont représentatifs des phénomènes dynamiques rencontrés. Les mesures des figures a) et b) montrent l'influence des

masses comprises entre l'éprouvette et la cellule de force pour un contact élastique dans le dispositif de transmission sur la contrainte mesurée, σ . La figure a) montre l'essai réalisé avec l'ensemble mors-cellule No 1 de 0.39 kg, d'une fréquence propre de 14 kHz; la figure b) le même essai avec l'ensemble mors-cellule No 2 possédant une masse de 0.035 kg et une fréquence de résonance de 35 kHz. Ces exemples montrent bien que le déplacement, D , du mors inférieur (noté G sur les diagrammes) ne coïncide pas avec celui du piston (noté P). On se rend bien compte ici de l'importance de la mesure du déplacement réel de l'éprouvette pendant les essais.

La Figure 3-8c montre un essai réalisé avec l'ensemble mors-cellule No 2 en amortissant le contact dans le dispositif de transmission par un matériau quasi-visqueux (5 sur la Figure 3-2).

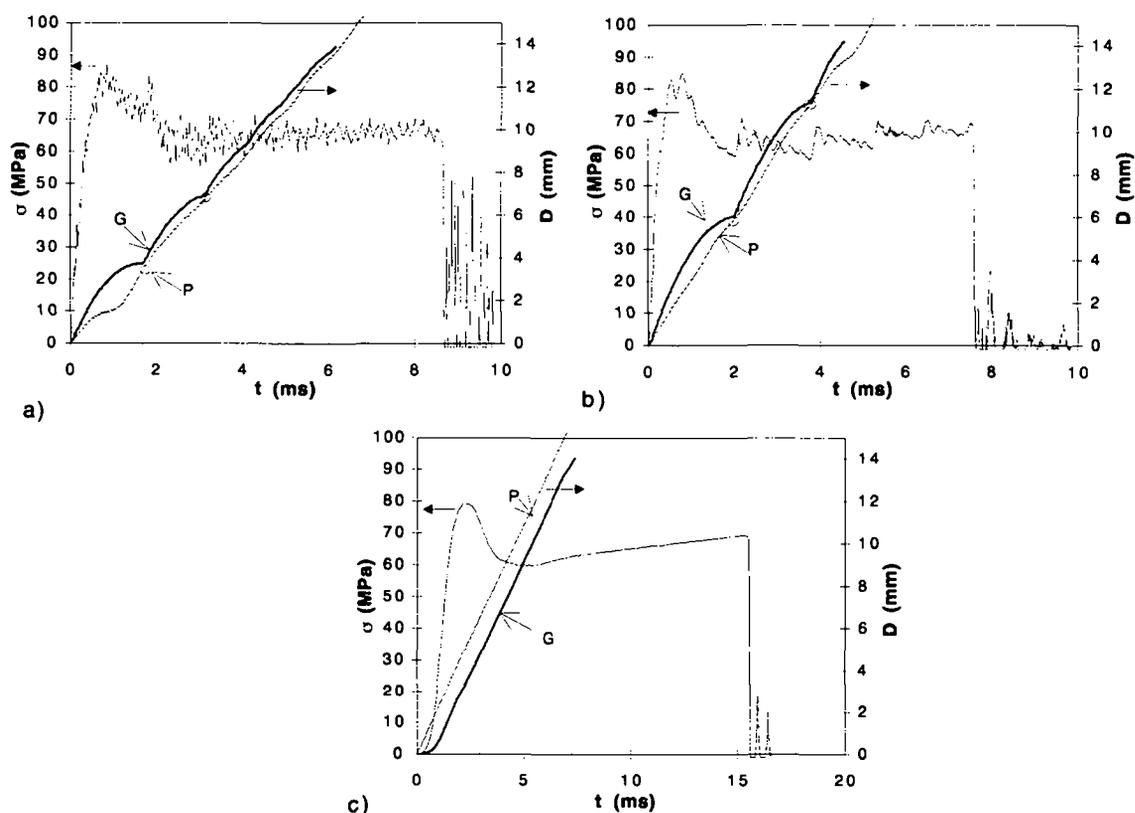


Figure 3-8: Mesure de la contrainte, σ , et du déplacement, D , lors d'un essai de traction sur un polycarbonate à 2.3 ms^{-1} . P indique le déplacement du piston, et G celui du mors inférieur. a) Fréquence de résonance du système: 14 kHz, b) 35 kHz, c) Contact amorti dans l'accouplement.

Ces exemples montrent que dans la pratique, les problèmes dynamiques résultent de deux phénomènes distincts:

i) La résonance de la chaîne de mesure à sa fréquence propre: La soudaine accélération des éléments de la chaîne de mesure par l'impulsion de force qui résulte de la prise de contact dans le dispositif de transmission du mouvement est capable d'exciter la chaîne de mesure à sa fréquence de résonance. Ce phénomène est un artefact de la mesure.

Pour des vitesses identiques, les exemples de la Figure 3-8 a) et b) mettent en évidence l'influence des perturbations introduites par la masse du mors.

ii) L'établissement d'un choc élastique dans le dispositif de transmission: L'élasticité du contact produit entre les matériaux de la barre d'entrée (titane) avec la flasque de retenue (acier) produit un contact de type hertzien. Comparons les déplacements du mors inférieur (G) dans les exemples a) et b) où le contact dans la transmission est élastique avec l'exemple c) où le contact est de nature visqueuse.

Lors d'un contact élastique la vitesse réelle du mors inférieur suit le comportement d'un oscillateur non conservatif. En conséquence, le contact est impulsif pour un certain nombre de périodes entre la barre d'entrée et la flasque de l'accouplement. Dans les exemples a) et b), les points de contact entre ces éléments sont entourés d'un cercle sur la mesure des déplacements. Au contraire de la source des oscillations dynamiques mentionnée précédemment, il s'agit d'un phénomène dynamique induit par le système de chargement qui fait partie intégrante de l'essai.

Lorsqu'un amortisseur est utilisé, une fois qu'il est comprimé, le déplacement du mors inférieur suit celui du vérin. Aucune perte de contact n'intervient.

3.3.1. Amortissement du contact dans l'unité de transmission.

Le matériau utilisé pour l'amortissement du contact dans la transmission est un élastomère polyuréthane faiblement réticulé (Viscolas™, produit par Chattanooga Corporation, USA). Il a été développé spécialement pour des applications biomédicales d'amortissement [6]. Il présente l'avantage d'avoir un comportement viscoélastique avec une grande constante de temps de recouvrement de la déformation. Aux temps courts, il a un comportement quasi-visqueux mais il peut être réutilisé pour de nombreux essais car il reprend sa forme initiale après quelques secondes. Il a été utilisé tout au long de ce travail pour l'amortissement du contact.

La Figure 3-9 illustre l'influence de la vitesse d'essai (vitesse du piston) sur l'essai de traction du PC. La partie a) montre les résultats obtenus sans le recours à l'amortisseur à des vitesses de vérin de 1, 2.3 et 9 ms⁻¹; et la partie b) ceux qui résultent des essais amortis.

Les résultats de a) rendent bien compte de l'influence néfaste de la perte de contact dans la transmission. A chaque établissement d'un nouveau contact, le dispositif d'essai est réexcité à sa fréquence propre d'oscillation conduisant le système à perdre ainsi la stabilité acquise par l'amortissement interne. Cette situation est particulièrement bien visible à 2.3 ms⁻¹. Dans ces conditions, augmenter encore la fréquence de résonance du système mors-cellule n'apporterait aucun avantage déterminant tant que la source des impulsions excitatrices subsiste.

3.3.2. Approche quasi-statique aux vitesses élevées

Les mesures représentées à la Figure 3-9 b) sont des essais identiques à ceux de a), mais résultent d'essais avec un contact amorti. L'utilisation de l'amortisseur circonviert la nature dynamique des essais en supprimant l'impulsion initiale. Les deux causes vibratoires mentionnées se trouvent ainsi supprimées. De dynamiques transitoires qu'ils étaient, les essais prennent un caractère quasi-statique. Pour autant qu'une mesure précise de l'élongation du spécimen soit possible, l'essai gagne beaucoup en précision car la mesure de la contrainte conventionnelle du spécimen est satisfaisante, par l'absence d'oscillations vibratoires sur le capteur de force. De plus, la vitesse de déformation imposée pendant la mesure, $\dot{\epsilon}$, est pratiquement constante contrairement au cas non amorti.

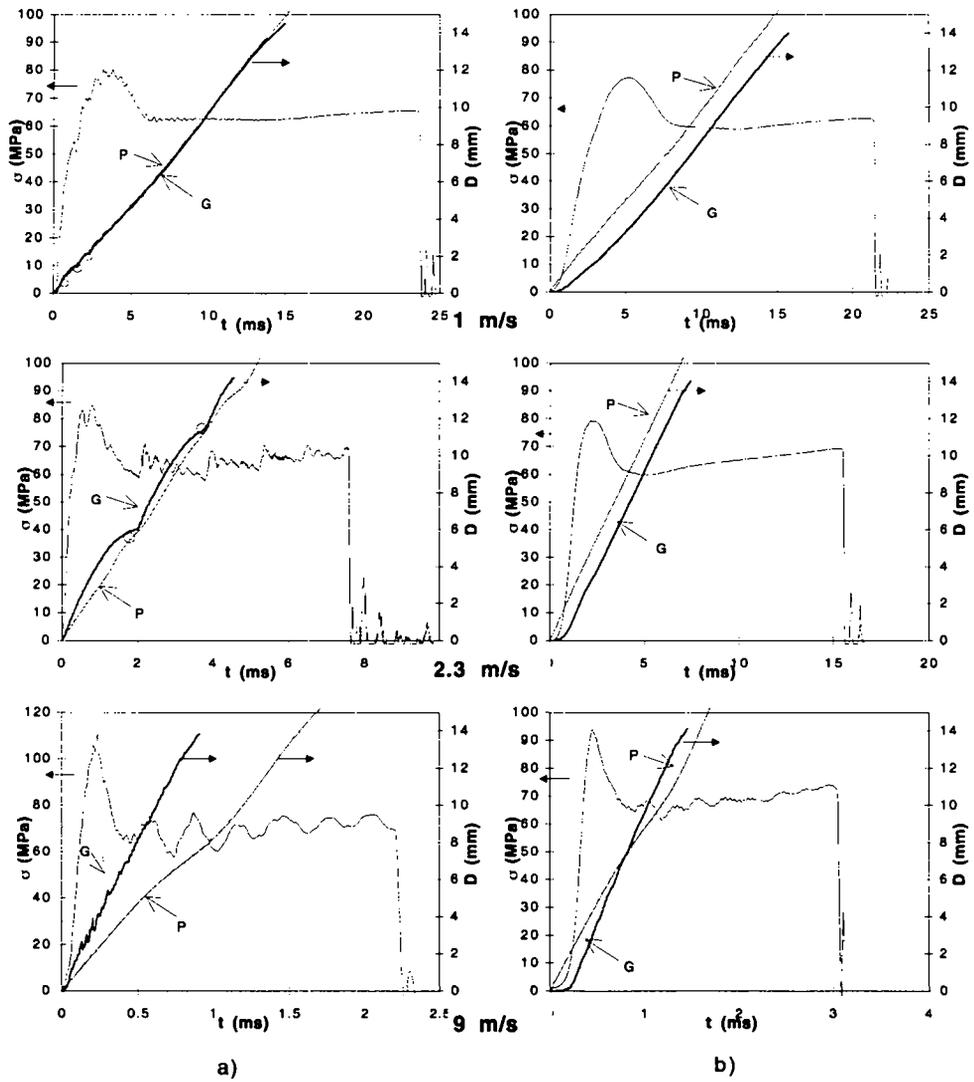


Figure 3-9: Influence de la nature du contact dans la transmission (matériau: PC)
 a) Contact non amorti. b) Contact amorti

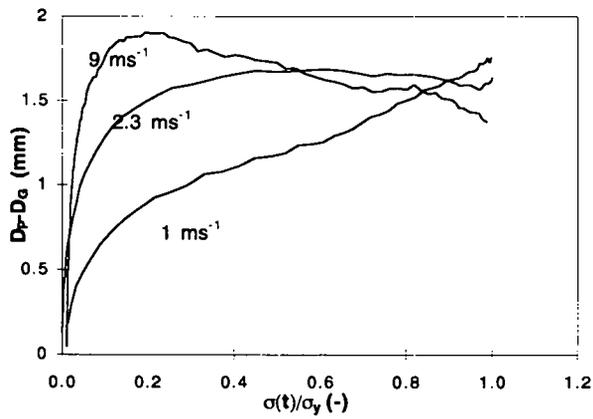


Figure 3-10: Déflexion de l'amortisseur, $D_p - D_g$, en fonction de la contrainte relative σ/σ_y pour les trois vitesses de la Figure 3-9.

L'amortisseur à la forme d'une rondelle annulaire d'un diamètre de 36x20 mm et d'une épaisseur de 3 mm. Il est sollicité en cisaillement-compression et son comportement dépend de la vitesse de sollicitation. La Figure 3-10 représente son comportement lors des trois essais de la Figure 3-9 b). La déformation de l'amortisseur $D_p - D_G$ (différence des déplacements du piston et du mors inférieur) est exprimée en fonction de la contrainte appliquée $\sigma(t)/\sigma_y$ (rapport de la contrainte instantanée à la contrainte au seuil de plasticité). Les comportements de la Figure 3-10 montrent que l'amortisseur est bien conçu, compte tenu que l'on souhaite utiliser le même amortisseur à toutes les vitesses entre 1 et 10 ms^{-1} . Dans le cas particulier, l'amortissement est légèrement surcritique à 1 ms^{-1} , sous-critique à 9 ms^{-1} , et idéal à 2.3 ms^{-1} .

3.3.3. Nature dynamique transitoire du mouvement: discussion

Le système mécanique compris entre la flasque du mécanisme de transmission et la traverse peut être modélisé schématiquement par le modèle mécanique de la Figure 3-11.

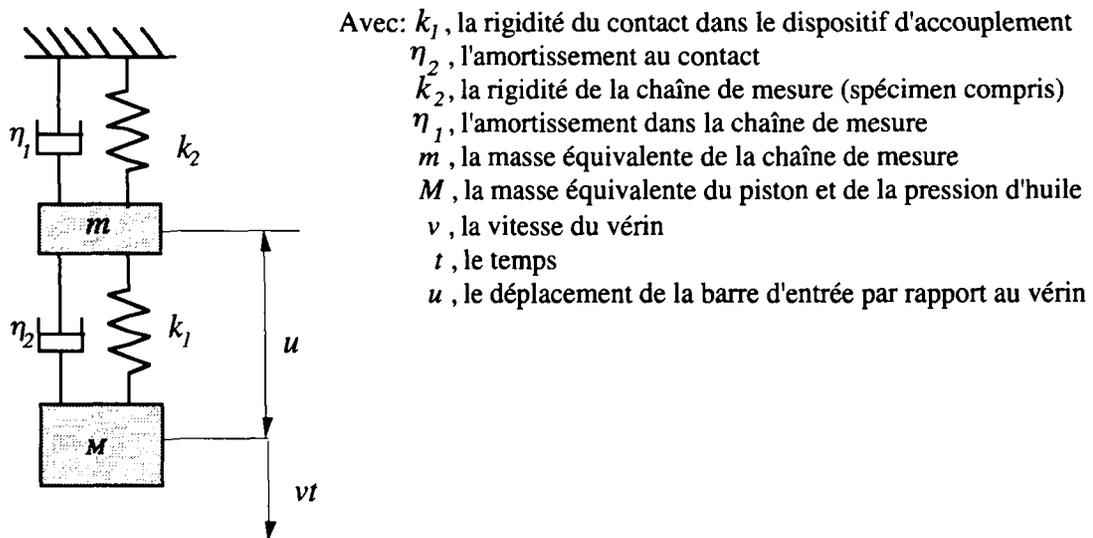


Figure 3-11: Modèle mécanique du système de transmission et de la chaîne de mesure

Le comportement dynamique transitoire d'un tel système est décrit par Williams [7]. L'équation de mouvement de la chaîne de mesure de la Figure 3-11 s'écrit:

$$m\ddot{u} + \left(1 + \frac{m}{M}\right) f_e(u, k_1, k_2) + \left(1 + \frac{m}{M}\right) f_d(\dot{u}, \eta_1, \eta_2) = 0 \quad (3-3)$$

avec $f_e(u, k_1, k_2)$ la fonction linéaire élastique du système, et $f_d(\dot{u}, \eta_1, \eta_2)$ qui exprime la partie dissipative.

La résolution de l'équation différentielle avec des conditions aux limites telles qu'à $t=0$, $\dot{u} = v$, $u=0$ conduit à l'expression de la vitesse relative de la barre d'entrée et du piston \dot{u} :

$$\dot{u} = \pm v \sqrt{1 - \left(1 + \frac{m}{M}\right) \int \frac{f_e(u, k_1, k_2) du}{\frac{1}{2} m v^2} - \left(1 + \frac{m}{M}\right) \int \frac{f_d(\dot{u}, \eta_1, \eta_2) \dot{u} dt}{\frac{1}{2} m v^2}} \quad (3-4)$$

Aux contacts suivants entre les pièces de la transmission, $u=0$, ainsi que $\int f_e(u, k_1, k_2) du$.

Toutefois, la partie dissipative $\int f_d(\dot{u}, \eta_1, \eta_2) \dot{u} dt$ prend une grandeur finie pour la durée du contact, t . Ainsi, la vitesse relative, v_1 , à la perte de contact devient:

$$v_1 = -v \sqrt{1 - \left(1 + \frac{m}{M}\right) \int_0^t \frac{f_d(\dot{u}, \eta_1, \eta_2) \dot{u} dt}{\frac{1}{2} m v^2}} \quad (3-5)$$

Williams définit ainsi le coefficient de restitution élastique, e , comme étant:

$$e = -\frac{v_1}{v} = \sqrt{1 - \left(1 + \frac{m}{M}\right) \int_0^t \frac{f_d(\dot{u}, \eta_1, \eta_2) \dot{u} dt}{\frac{1}{2} m v^2}} \quad (3-6)$$

Lors d'un choc parfaitement élastique (non dissipatif), e vaut 1, et la vitesse impulsionnelle absolue de la masse m au moment de la perte de contact vaut: $v_{imp} = v + v_1 = v(1+e) = 2v$.

Dans la pratique, l'impact n'est jamais conservatif, et le frottement de contact dissipe une partie de l'énergie. Nous verrons au Chapitre 4 que pour les essais de rupture, $e=0.8$. Par l'utilisation d'un amortisseur de contact, e est très petit et $v_{imp} = v(1+e) \approx v$.

On voit que l'approche de Williams développée pour la modélisation des essais d'impact est applicable au mouvement induit par l'unité de transmission de la machine servo-hydraulique.

Toutefois, contrairement aux systèmes d'essais basés sur l'énergie cinétique d'une masse au moment de l'impact, un bilan énergétique n'est pas possible pour les machines servo-hydrauliques, car la masse M de la Figure 3-11 n'est pas constante, mais varie tout au long de l'essai par l'apport d'énergie hydraulique.

3.4. EXEMPLES D'ESSAIS DE TRACTION AMORTIS AUX GRANDES VITESSES

Comme l'utilisation d'un amortisseur de contact permet d'assimiler les essais aux grandes vitesses à des essais quasi-statiques, la réduction des données des essais de traction aux grandes vitesses est la même qu'aux petites vitesses. Ainsi, les paramètres expérimentaux mesurés sont les mêmes et peuvent être comparés sur toute la gamme de vitesses de déformations, soit 5 décades de vitesses.

Lorsque le comportement des matériaux testés est ductile, l'augmentation du temps à la rupture résultant de l'introduction de l'amortisseur peut être négligé. Il convient toutefois de porter attention au fait que la vitesse est diminuée au début de l'essai. La détermination du module d'élasticité, E , si il est pris comme module tangent pourrait être mesuré à une vitesse de déformation inférieure à celle attendue par l'expérimentateur. Comme en général, l'augmentation de la vitesse de sollicitation a pour effet de retarder l'anélasticité du matériau par l'augmentation du domaine linéaire et du seuil de plasticité, il n'y a pas de problème dans la pratique pour déterminer un module tangent.

La Figure 3-12 montre des essais de tractions avec mesure extensométrique optique sur un PC, à trois vitesses de piston: 1, 2.8 et 9.3 ms^{-1} . Etant donné la vitesse constante du piston, les vitesses de déformations, $\dot{\epsilon}$ (qui figurent dans les diagrammes) changent, selon la région du comportement considéré. En effet, une fois passé le seuil de plasticité toute la déformation apportée par le déplacement du vérin est confinée dans la région d'écoulement plastique du matériau; la vitesse de déformation dans cette région est ainsi augmentée.

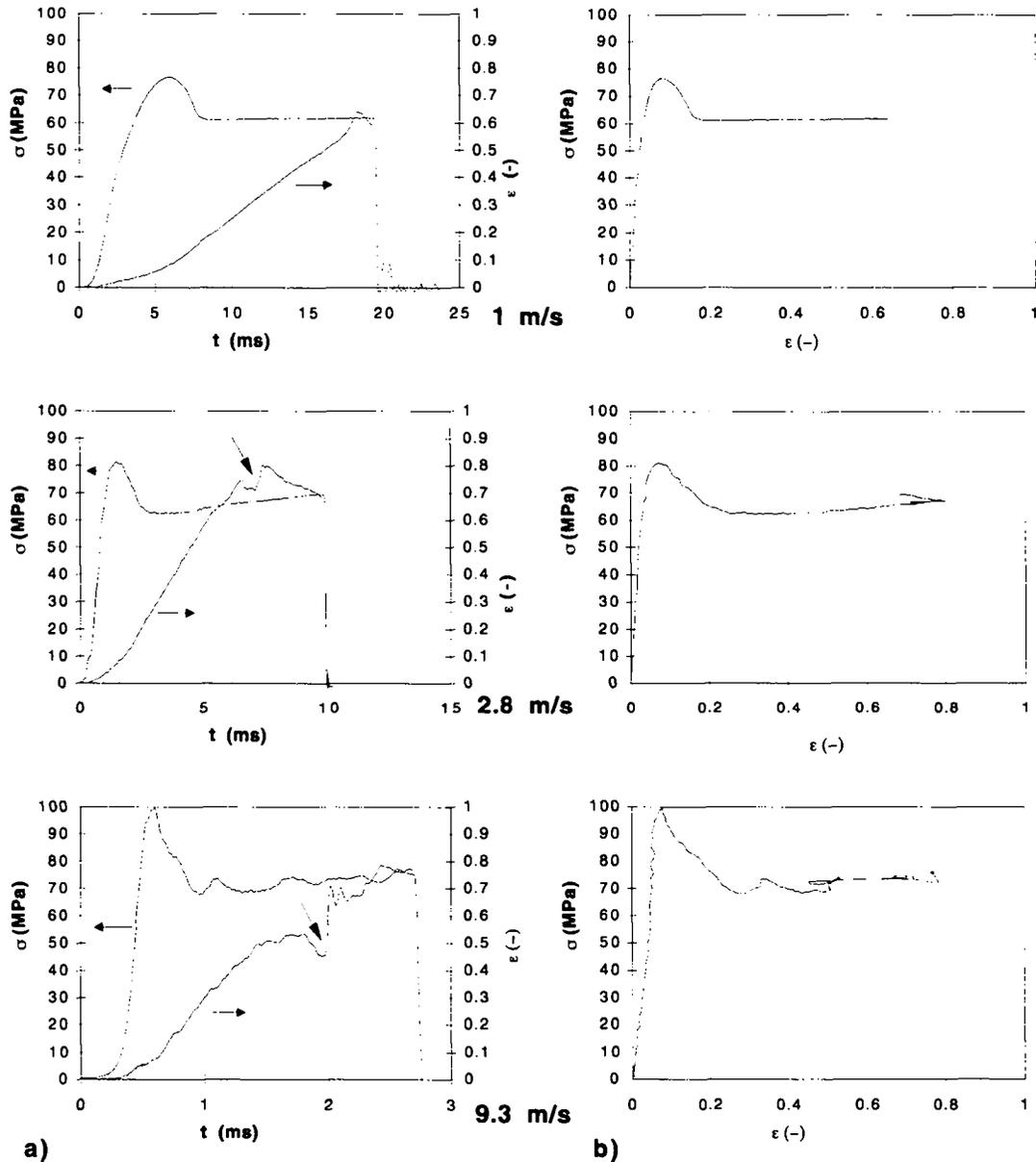


Figure 3-12: Exemple d'essais de traction avec mesure extensométrique optique sur le PC.
 a) Diagrammes contrainte, σ , déformation, ϵ , en fonction du temps, t .
 b) Diagrammes σ - ϵ .

Le passage du mécanisme de striction du fût peut perturber momentanément la mesure de la déformation extensométrique par l'inclinaison de la fibre lorsque l'écoulement passe à sa hauteur. Ce phénomène est visible à 2.8 et 9.3 ms^{-1} sur la Figure 3-12 a) (flèche).

$\dot{\epsilon}$ ne dépend pas seulement de la vitesse du piston, mais est également proportionnel à la longueur du fût des éprouvettes. En réduisant sa longueur, on peut augmenter la vitesse de déformation. Pour atteindre des $\dot{\epsilon}$ de $\sim 1000\text{s}^{-1}$, nous avons réduit sa longueur à 20 mm (exemple du POM au Chapitre 6).

A ces vitesses de déformation l'échauffement adiabatique de l'éprouvette peut être de nature à perturber les mécanismes de déformation. Lorsque les résultats mettent en évidence une transition de comportement post-seuil plastique, il convient d'en tenir compte.

3.5. CONCLUSIONS

La nature du contact établi dans le dispositif de transmission du mouvement de la machine servo-hydraulique conditionne la nature des essais de traction aux grandes vitesses. Pour avoir une connaissance précise des phénomènes engendrés lors des essais, il est nécessaire d'être à même de mesurer précisément les déplacements des pièces en mouvement. Le dispositif extensométrique optique développé ici remplit ce rôle.

Lorsque le contact n'est pas amorti, l'essai est de nature dynamique transitoire en raison de l'impact induit dans la transmission. La mesure de la force est perturbée par les oscillations de la chaîne de mesure. L'utilisation d'un amortisseur transforme cet impact en un choc mou qui supprime le contact impulsionnel en diminuant l'accélération initiale induite dans la barre d'entrée. Les essais de traction deviennent quasi-statiques et l'approche statique peut-être appliquée [5, 8].

3.6. ENGLISH CAPTIONS

Table 3-1: Classification of the testing techniques with respect to the dynamic considerations.

Table 3-2: Technical data of the high speed servohydraulic tester Schenck Hydropuls.

Figure 3-1: Schematic diagram of the high speed servohydraulic installation.

Figure 3-2: Schematic diagram of the pickup unit.

Figure 3-3: Mechanical response of a mass-spring system submitted to a transient motion of its base.

Figure 3-4: Grip and piezo load ring assembly No 2.

Figure 3-5: Optical extensometer: diagram of principle.

Figure 3-6: Optical bench supporting the position sensing detectors (PSD).

Figure 3-7: Tensile behaviour of a PA6 based GRP, reinforced with 0/90° glass fibres. Tensile speed : 0.1 ms^{-1} . The specimen had slip in the moving grip. a) Force measurement, F , and displacement, Δl , versus time, t . b) Enlargement of a). c) F versus Δl diagram.

Figure 3-8: Stress, σ , and displacement, D , versus time, t , in a tensile experiment on polycarbonate at 2.3 ms^{-1} . P indicates the displacement of the piston rod, and G the displacement of the grip. a) Eigen frequency of the system: 14 kHz. b) 35 kHz, c) Damped contact in the pickup.

Figure 3-9: Influence of the nature of the contact in the pickup (material: PC). a) Undamped contact. b) Damped contact.

Figure 3-10: Compression of the damper, $D_p - D_g$, versus the ratio of the stress on the yield stress, σ/σ_y . The three testing speed of figure 3-9 are represented.

Figure 3-11: Equivalent mechanical mass-spring model representing the pickup and the measuring chain.

- k_1 : contact stiffness in the pickup
- η_2 : contact damper
- k_2 : stiffness of the measuring chain (specimen included)
- η_1 : measuring chain damper
- m : equivalent mass of the measuring chain
- M : equivalent mass of the piston (included the hydraulic pressure)
- v : piston velocity
- t : time
- u : relative displacement between the input bar and the piston.

Figure 3-12: Example of optical extensometric measurements in tensile experiments in a PC specimen. a) Stress, σ , and strain, ϵ , versus time. b) σ - ϵ

3.7. REFERENCES

- 1 Lindholm U.S., *Techniques of Metals Research*, Volume V, Part 1, Bunshah R.F. ed., (1971), Interscience Publishers, New York.
- 2 Zukas J.A. , Nicholas T., Swift H.F., Greszczuk L.B., Curran D.R., *Impact Dynamics*, (1982), John Wiley, New York, p. 287
- 3 Walley S.M., Field J.E., *Dymat Journal*, **1**, (1994), 3, p.211.
- 4 Kelly B.O., Nemhauser R.I, *Techniques for Using the Position Sensivity of Silicon Photodetectors to Provide Remote Machine Control*, 21st Annual IEEE Machine Tool Conference, Hartford, Connecticut, (1973), October 29-31.
- 5 Barbezat M., *Influence de la vitesse de sollicitation sur le comportement des époxydes à matrice organique*, Thèse de doctorat, EPFL No 867, (1990).
- 6 Pratt D.J., Sanghera K.S., *The Biomechanics and Orthoic Management of the Foot*, Pratt D.J., Jonshon J.R. Eds., (1987), p. 35
- 7 Williams J.G., *Fracture Mechanics of Polymers*, (1987), Ellis Horwood
- 8 Béguelin Ph., *Impact Fracture of Polymers -Materials Science and Testing Techniques-*, K. Takahashi and A. F. Yee ed., (1992), Kyushu University Press

CHAPITRE 4

4. ESSAIS DE RUPTURE AUX GRANDES VITESSES

4.1. INTRODUCTION

Dans les chapitres précédents, nous avons vu successivement l'influence de la vitesse de déformation sur les mécanismes de déformation, celui des défauts sur l'état local des contraintes, et la problématique des essais de traction à grande vitesse de déformation. La sévérité des conditions expérimentales combinant à la fois la vitesse de déformation élevée et la concentration des contraintes par une entaille est évidente: c'est l'essai de choc.

La dénomination unique *d'essai de choc* regroupe une grande variété d'essais dont certains sont assez exotiques. En 1958, Westover [1] écrivait à propos des essais d'impact:

Des éprouvettes entaillées ou non, de formes et de tailles variables, ont été soumises à des essais d'impact en traction, compression, torsion et flexion. On a jeté ces matériaux, on les a laissé tombés, ils ont été percutés par des marteaux, des balles, des masses tombantes, des billes, des pendules et des projections de machines tournantes. Il y a autant de types de machines d'essais que de chercheurs. Il est également possible d'ajouter qu'il existe autant de points de vue que de chercheurs.

Bien que la situation n'ait pas beaucoup évolué jusqu'au milieu des années 70, l'introduction de l'instrumentation électronique dans les essais de choc ces 25 dernières années a permis de comprendre les problèmes qu'ils posent, à défaut de les résoudre.

Pratiquement, l'essai au pendule Charpy est toujours le plus utilisé dans les laboratoires pour la caractérisation de routine. Bien que largement utilisé en raison de sa simplicité de manipulation, il pose malheureusement de sérieux problèmes expérimentaux que nous évoquerons brièvement plus bas. En version normalisée, il possède également le désavantage de n'inclure qu'une vitesse d'essai (3 ms^{-1}).

D'autres types d'essais de choc ou à grande vitesse ont été développés pour les besoins de la recherche. Ils permettent de couvrir une large plage de vitesse d'essais comme le montre le Tableau 4-1. Les valeurs de vitesses de déformation des essais Charpy et Izod ont été calculées à partir d'une courbure circulaire des échantillons. Les vitesses de déformation en tête de fissure ne peuvent pas être estimées avec précision, et sont considérablement plus élevées que les valeurs mentionnées dans le Tableau 4-1 [2]. Malheureusement, une des grande faiblesse des essais de choc est que les résultats obtenus par les différentes méthodes ne sont pas directement comparables [3]. Le recours à une instrumentation différente, voire au changement de géométrie des échantillons entre les évaluations des propriétés à petite et à grande vitesse pose souvent de sérieux problèmes d'interprétation.

| <i>Méthode</i> | <i>Vitesse (ms⁻¹)</i> | <i>Ordre de grandeur des vitesses de déformation (s⁻¹)</i> | <i>Remarques</i> |
|---|------------------------------------|---|--|
| Charpy | 3 | (10) | Essai normalisé, vitesse fixée |
| Izod | 2.44 | (60) | Essai normalisé, vitesse fixée |
| Masse tombante | 1-4 | 10 ⁻¹ -10 | La vitesse dépend de la hauteur de chute; l'énergie disponible dépend de la masse et de la hauteur |
| Machine d'essais conventionnelle | 10 ⁻⁵ -10 ⁻² | 10 ⁻³ -10 ⁻¹ | Limité au domaine statique |
| Machine servo-hydrauliques à grande vitesse | 10 ⁻⁴ -10 | 10 ⁻³ -500 | La vitesse dépend du débit d'huile; l'énergie disponible dépend de la pression et du débit d'huile |
| Canon à gaz | 20-250 | 10 ² -10 ⁴ | la vitesse dépend de la pression de gaz; l'énergie de la vitesse et de la masse du projectile. Souvent utilisé comme impacteur dans les barres de Hopkinson |

Tableau 4-1: Ordre de grandeur des vitesses de déformations atteintes par les essais de choc.

4.1.1.L'essai Charpy.

L'essai Charpy porte le nom de son inventeur, il a été développé pour les essais de choc des métaux. Le principe a été repris pour le test des polymères, en réduisant la vitesse d'impact originale de 5 ms⁻¹ à 3 ms⁻¹. Il s'agit d'un essai de flexion 3 points d'une éprouvette entaillée ou non. La machine d'essai consiste en un pendule lesté d'une masse, *m*, tombant d'une hauteur, *h*. Le marteau centré sur la masse percute à une vitesse, *v*, l'éprouvette stationnaire portée par deux appuis latéraux. Après la rupture de l'éprouvette (condition nécessaire) le pendule remonte jusqu'à une hauteur, *h'*. L'énergie dissipée pour la rupture, *U_D*, est ainsi:

$$U_D = mg(h - h') \tag{4-1}$$

La seule instrumentation ainsi nécessaire est la mesure de *h'*, *h* étant fixé puisqu'il détermine la vitesse de l'essai. Les pendules sont donc pourvus d'une échelle graduée en énergie pour chaque masse utilisée, qui permet la lecture directe de *U_D*.

Les différentes versions normalisées de l'essai Charpy (plus ou moins chaque pays possède sa propre normalisation) utilisent la réduction des données la plus simple, soit l'énergie de rupture, *G*:

$$G = \frac{U_D}{BW(1 - a/W)} \tag{4-2}$$

B, *W*, et *a* sont les dimensions de l'éprouvette (voir la Figure 4-1b).

Une telle approche est critiquable à double titre:

- 1) L'équation (4-2) considère que l'énergie dissipée est distribuée uniformément sur toute la surface rompue. Elle ne tient pas compte du fait que l'éprouvette soit entaillée ou non. La sensibilité à l'entaille, le fondement même de la mécanique de la rupture est tout simplement ignoré.
- 2) En réalité, les sources de dissipation de l'énergie dans un tel essai sont nombreuses. Ireland [4] dresse l'inventaire de l'énergie dissipée:

$$U_D = U_{rupt.} + U_{acc.} + U_{ind.} + U_{vibr.} + U_{el.} \quad (4-3)$$

avec: $U_{rupt.}$ l'énergie dissipée dans l'échantillon pour la déformation et la rupture (initiation et propagation)

$U_{acc.}$ l'énergie nécessaire à l'accélération de l'éprouvette (son centre est amené à la vitesse du marteau)

$U_{ind.}$ l'énergie dissipée dans l'indentation du nez du marteau dans le matériau

$U_{vibr.}$ l'énergie vibratoire induite dans le pendule par l'impact du marteau

$U_{el.}$ l'énergie élastique stockée dans la machine d'essai

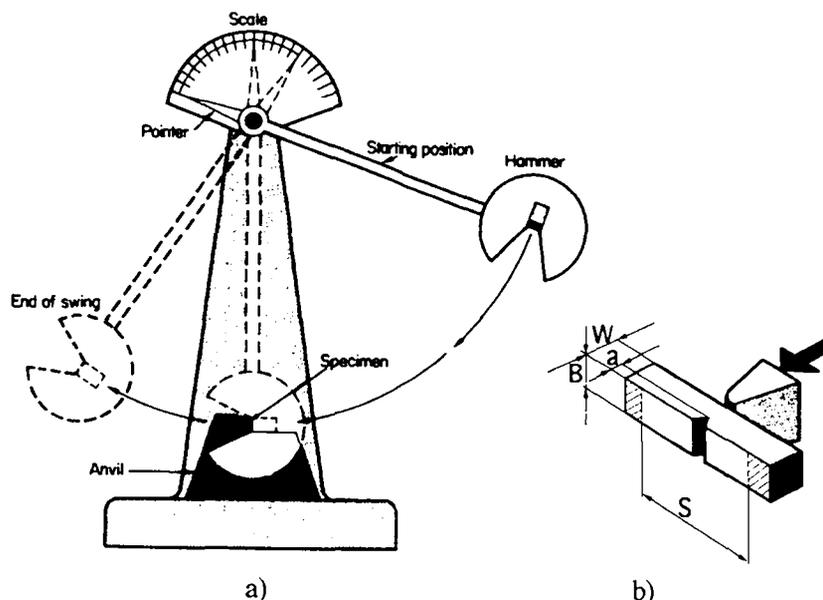


Figure 4-1: a) Représentation schématique du pendule de Charpy, b) géométrie de l'éprouvette de Charpy entaillée.

On voit donc aisément que l'approche normalisée de l'essai Charpy n'est pas satisfaisante. Pour être complet, mentionnons encore qu'aucune procédure ne décrit la méthode d'entaillage. La géométrie du fond d'entaille est à fond plat, ou en V. Si les tolérances dimensionnelles sont précisées, la méthode de confection de l'entaille dans les matières plastiques ne l'est pas. Les entailles font souvent partie de l'empreinte du moule de mise en oeuvre. Comme la structure des semi-cristallins varie entre la peau et le coeur, le fond d'entaille n'est pas représentatif du matériau plein. De plus, le rayon de fond d'entaille joue un grand rôle dans l'éventail important de la ténacité des polymères. Il importe donc d'adopter une méthode d'entaillage rigoureuse, qui conduit à déterminer la valeur inférieure de la ténacité.

Le Comité Technique 4 de l'E.S.I.S. (European Structural Integrity Society) travaille actuellement à un projet de protocole d'essai de choc des polymères à 1 ms^{-1} [5].

4.1.2. Approche des essais de choc par la mécanique de la rupture.

Pour donner suite aux réserves émises ci-dessus concernant les essais normalisés de Charpy, de nombreux chercheurs ont proposé une approche de l'essai de choc par la mécanique de la rupture. La plupart des approches en mécanique de la rupture nécessitent soit la mesure de la force exercée par le marteau, soit la mesure de la déflexion de l'éprouvette lorsque la rupture intervient. Comme nous l'avons vu, l'utilisation de l'énergie totale dissipée, U_D , conduit à passablement d'artefacts. Marshall *et coll.* [6] ont proposé une solution très intéressante pour la correction des termes énergétiques parasites par le seul biais de la mesure de l'énergie dissipée par le pendule. En considérant une éprouvette d'un matériau au comportement élastique sollicité en flexion 3 points, la courbe idéalisée force, F , déformation, x , a l'allure d'un triangle comme le montre la Figure 4-2.

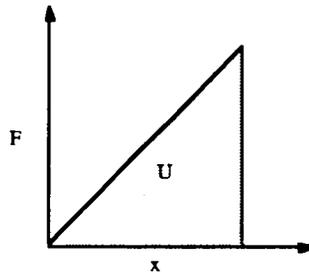


Figure 4-2: Représentation schématique du diagramme force, F , - déformation, x , d'une éprouvette à comportement élastique sollicitée en flexion 3 points.

L'énergie sous la courbe, U , vaut:

$$U = \frac{1}{2} Fx \quad (4-4)$$

La complaisance est définie comme $C=x/F$, et l'énergie devient:

$$U = \frac{1}{2} F^2 C \quad (4-5)$$

Pour un échantillon d'épaisseur, B , et de longueur d'entaille, a , le taux de restitution d'énergie, G , vaut (voir § 2.2.2):

$$G = \frac{1}{B} \frac{dU}{da} = \frac{1}{B} \frac{dU}{dC} \frac{dC}{da} \quad (4-6)$$

si la force de rupture est F , le taux de restitution d'énergie critique, G_c , est:

$$G_c = \frac{F^2}{2B} \frac{dC}{da}, \text{ ou en terme d'énergie absorbée: } U = G_c B \left(\frac{C}{da} \right) \quad (4-7)$$

en introduisant la hauteur de l'éprouvette, W :

$$G_c = \frac{F^2}{2BW} \frac{dC}{d\left(\frac{a}{W}\right)} = \frac{U}{BWC} \frac{dC}{d\left(\frac{a}{W}\right)} \quad (4-8)$$

En introduisant le facteur de calibration adimensionnel, ϕ , dont Williams [7, 8] propose une solution pour la plupart des géométries usuelles:

$$\phi = \frac{C}{dC/d\left(\frac{a}{W}\right)} \quad (4-9)$$

on a finalement la relation:

$$U = G_c BW \phi \quad (4-10)$$

Pour un matériau de comportement linéaire élastique, le diagramme représentant l'énergie sous la courbe en fonction du produit $BW\phi$ est une droite, de pente G_c . Expérimentalement, on fait varier la longueur de la fissure, a , pour varier $BW\phi$. La Figure 4-3 montre des résultats obtenus selon cette procédure sur un PMMA modifié (le 3L30 traité au Chapitre 7).

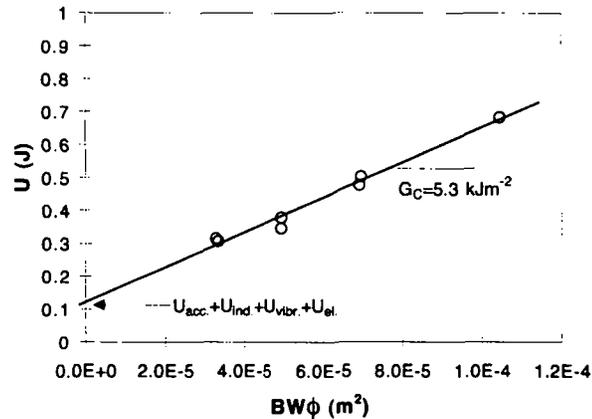


Figure 4-3: Détermination de l'énergie de rupture G_c , selon la méthode de la variation de complaisance (PMMA modifié choc -3L30, vitesse d'impact de 1 ms^{-1}).

L'intérêt de cette méthode réside dans le fait que le terme $U_{rupt.}$ peut être dissocié des autres termes de l'équation (4-3) par la mesure de la pente du diagramme. L'ordonnée à l'origine de la droite représente l'énergie mesurée expérimentalement par le dispositif d'essai pour la rupture d'une éprouvette avec une section complètement entaillée ($a/W=1$). L'énergie ainsi mesurée est $U_{acc.} + U_{ind.} + U_{vibr.} + U_{el.}$. G_c mesuré par la pente de $U \propto BW\phi$ représente donc l'énergie nette dissipée dans l'initiation et la propagation de la rupture.

Cette approche qui donne d'excellents résultats est largement appliquée à la caractérisation des polymères au choc par la mécanique de la rupture. Son seul inconvénient est qu'elle ne renseigne pas sur la façon dont l'énergie est dissipée en cours de rupture. En particulier, elle ne permet pas de séparer l'énergie dissipée pour l'initiation de celle nécessaire à la propagation de la rupture.

C'est la raison pour laquelle depuis passablement d'années, de nombreux chercheurs tentent d'utiliser la mesure des forces agissant sur l'impacteur pour une approche par la mécanique de la rupture.

4.1.3. Instrumentation des essais de choc.

Les premiers essais de choc instrumentés datent des années 20. C'est seulement dans les années 60, par l'utilisation des jauges de contrainte pour instrumenter les marteaux des pendules destinés aux essais des métaux, que l'instrumentation s'est développée [9].

4.1.3.a) Instrumentation du marteau pour la mesure de la force

On a rapidement constaté l'existence de phénomènes dynamiques transitoires sur le signal de force. Ils sont générés par le contact du marteau en mouvement avec l'éprouvette stationnaire [10, 11]. En particulier, l'existence du *pic d'inertie* sur le signal force-temps traduit l'importance de l'énergie dissipée pour l'accélération de la partie centrale de l'éprouvette à la vitesse de l'essai. Pour l'essai de la plupart des matériaux métalliques possédant une ductilité suffisante, l'existence du pic d'inertie et les oscillations dynamiques transitoires ne semble pas poser trop de problèmes quant à une exploitation quantitative de la force mesurée sur le marteau.

Pour les polymères qui présentent un comportement fragile en revanche, le signal de force est passablement perturbé par l'accélération élevée prodiguée par le marteau à l'éprouvette. Lors de nos premiers essais de choc à l'aide d'un pendule et d'éprouvettes instrumentés [12], nous avons remarqué que la rupture d'une éprouvette fragile (détectée par une jauge au graphite [13]), ne correspond à aucun point singulier sur la courbe de force. L'exemple de la Figure 4-4 a) est un cas extrême. La courbe de force ne comporte qu'un seul pic; il s'agit du pic d'inertie résultant du premier et unique contact entre le marteau et l'éprouvette. L'énergie contenue dans ce pic est celle qui est nécessaire à accélérer la partie centrale de l'éprouvette à la vitesse du marteau (voire même à une vitesse supérieure). Ici, il n'y a pas de second pic car l'énergie de rupture du matériau est inférieure à l'énergie contenue dans le pic d'inertie, et la jauge de fissuration montre en II la rupture instable du ligament à une vitesse constante de 180 ms^{-1} . Le matériau est tellement fragile qu'il est rompu avant d'être accéléré à la vitesse du marteau (ici 3 ms^{-1}). En d'autres termes, il ne s'agit plus ici de sollicitation en flexion 3 points, mais d'un mode de flexion différent (un point ?) pour lequel les appuis latéraux ne jouent aucun rôle. En effet, le moment résistant engendré par l'inertie de masse des parties situées de part et d'autre du marteau est suffisant pour engendrer le couple de rupture de l'éprouvette.

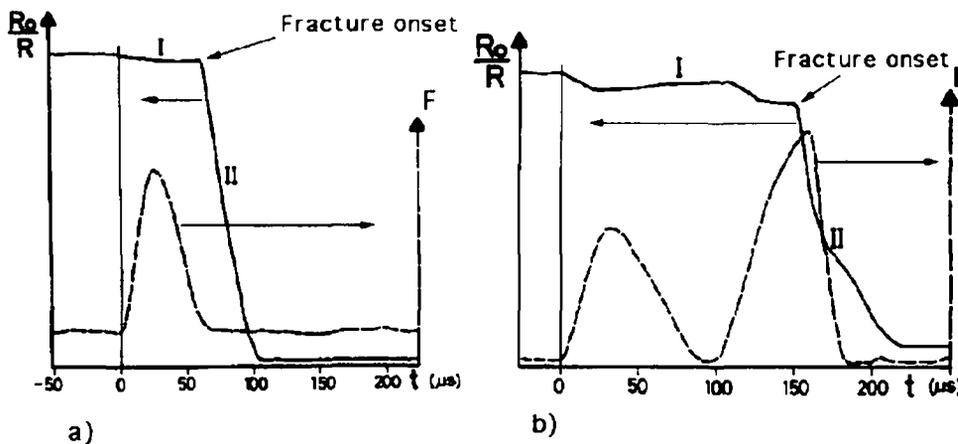


Figure 4-4: Mesure de la force, F , et de la propagation de la rupture dans le ligament, R_0/R par un essai Charpy à 3 ms^{-1} . a) Polyméthacrylate de méthyle, b) Polycarbonate [12].

Il s'agit d'une manifestation typique des phénomènes dynamiques rencontrés pour les temps à la rupture courts, résultants soit du comportement fragile du matériau, soit du comportement d'une éprouvette profondément pré-entaillée.

C'est précisément par notre confrontation à ces problèmes que nous avons souhaité contribuer au développement d'une méthode de caractérisation de la rupture aux grandes vitesses plus fiable.

En instrumentant le dispositif d'impact à poids tombant fabriqué par M. S. Fleury dans notre laboratoire, nous avons étudié les problèmes spécifiques liés aux essais d'impact. Nous n'entrerons pas dans les détails de l'instrumentation, mais relevons que cet appareil:

- permet une vitesse d'impacteur comprise entre ~ 0.5 et 5 ms^{-1} ,
- possède un dispositif de flexion 3 points dont la géométrie des appuis et du marteau est similaire à celle des essais de Charpy sur les polymères,
- possède une instrumentation du marteau en Titane par une cellule piézo-électrique de type Kistler 9001. La fréquence propre du système est de 35 kHz .
- le déplacement du marteau, ou la déflexion de l'éprouvette peuvent être mesurées par l'utilisation du dispositif optique décrit au Chapitre 3.

La Figure 4-5 montre l'effet de la profondeur de l'entaille, a/W , sur le signal de force. Il s'agit d'essais sur des Polyméthacrylates de méthyle (PMMA) non modifié (Figure 4-5a) et modifié choc (Figure 4-5b), sollicités en flexion 3 points (SENB-*single edge notched in bending*). Les mesures sont réalisées au poids tombant instrumenté, qui présente une problématique exactement identique à celle du pendule de Charpy. Le premier pic visible sur chaque mesure est le pic d'inertie. Il prodigue une violente accélération à l'éprouvette, et met en résonance le marteau et l'éprouvette. Le plus souvent, la mesure de la seule force ne permet pas d'identifier de point de rupture avec précision en raison de la vibration du système à sa fréquence de résonance. Les dimensions des éprouvettes et les densités des matériaux des figures a) et b) étant très similaires, la fréquence des oscillations est la même pour les PMMA modifié au choc ou non. Comme la ténacité du matériau modifié au choc est plus élevée, son temps à la rupture est plus grand que celui du PMMA non-modifié. Ainsi, pour une même complaisance, C_m , le PMMA choc présente des oscillations de même période vibratoire, mais en plus grand nombre que le PMMA non modifié.

Pour les éprouvettes dont la taille du ligament est inférieure à la moitié de la section, ($a/W > 0.5$), le pic d'inertie est dissocié du restant de la courbe de force. Comme nous le verrons plus bas, cette particularité résulte d'une perte de contact entre l'impacteur et le spécimen.

L'influence de la vitesse d'impact sur le pic d'inertie a été étudiée expérimentalement sur les métaux [11] comme sur les polymères [14]. L'amplitude du pic, F_i , est proportionnel à la vitesse de l'impacteur, v , telle que: $F_i = \alpha v$.

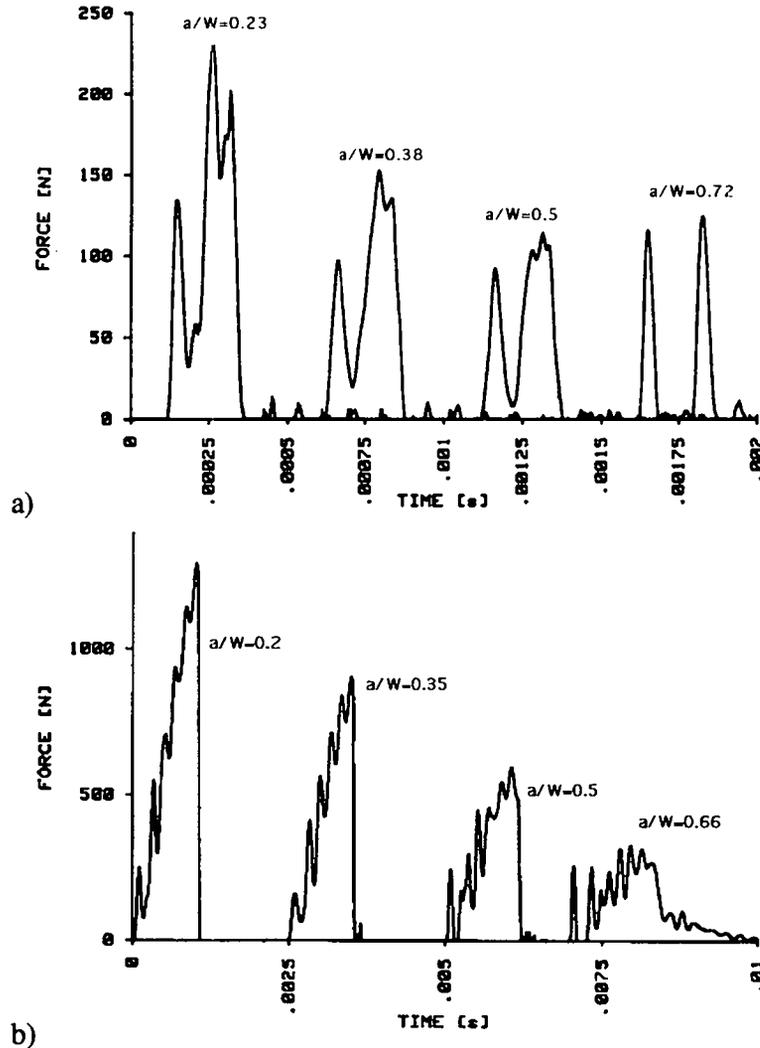


Figure 4-5: Effet de la profondeur de l'entaille, a/W , sur les courbes force-temps d'éprouvettes entaillées soumises à un essai de flexion trois points à 1ms^{-1} . a) PMMA non modifié, b) PMMA modifié choc.

4.1.3.b) La mesure du déplacement

La mesure du déplacement pendant les essais de choc n'est pas très répandue. Le plus souvent, c'est la mesure de la vitesse de l'impacteur peu avant le point d'impact qui est réalisée. Pour les pendules de type Charpy, on peut mesurer la rotation angulaire du pendule. La précision expérimentale est suffisante pour la mesure de la vitesse, mais pas assez pour la mesure de la position.

Certains systèmes d'essai disponibles sur le marché calculent la position du marteau pendant l'essai à partir du bilan d'énergie instantané: connaissant l'énergie potentielle du marteau, sa vitesse avant l'impact, et la force en tout temps, l'ordinateur recalcule la position du marteau pendant l'essai. Cette méthode de mesure est également peu précise.

À notre avis, compte tenu de la gamme des semi-conducteurs disponible de nos jours sur le marché, il n'y a aucun problème pour la réalisation de systèmes optiques de suivi de la position

de l'impacteur, en continu pendant l'essai. Il est étonnant que de tels systèmes ne soient pas plus répandus.

Dans ce contexte, l'utilisation de notre système à fibre optique de mesure du déplacement pour les essais SENB nous amène à formuler la question suivante:

- *Quel déplacement s'agit-il de mesurer pour caractériser les essais de choc en flexion?*

La Figure 4-6 est très explicite en ce qui concerne la légitimité de la question. Elle montre des essais SENB à 1 et 3 ms^{-1} sur un PMMA choc. La mesure du déplacement de l'impacteur montre bien évidemment une vitesse constante (Figure 4-6 a et c). Par contre lorsque l'on mesure le déplacement vrai de l'éprouvette, en collant la fibre du dispositif optique sur l'éprouvette elle même, on mesure une vitesse de déflexion qui n'est pas constante (Figure 4-6 b et d).

La mesure de la déflexion de l'éprouvette à 1 ms^{-1} (Figure 4-6b) montre bien que la vitesse réelle n'est pas celle de l'impacteur, mais que le profil de déplacement est oscillant amorti, avec des oscillations en opposition de phase par rapport à celle de la force mesurée sur le marteau. La vitesse moyenne est celle de l'impacteur. Les mesures du déplacement du spécimen montrent clairement une perte de contact entre l'impacteur et le spécimen, lorsque la force tombe à 0 après le pic d'inertie. Cette situation est particulièrement bien visible à 3 ms^{-1} , sur la Figure 4-6 d). La possibilité d'une perte de contact entre l'impacteur et le spécimen a souvent été mentionnée dans la littérature [4, 7], mais n'a été observée qu'en recourant à la photographie à haute vitesse [15].

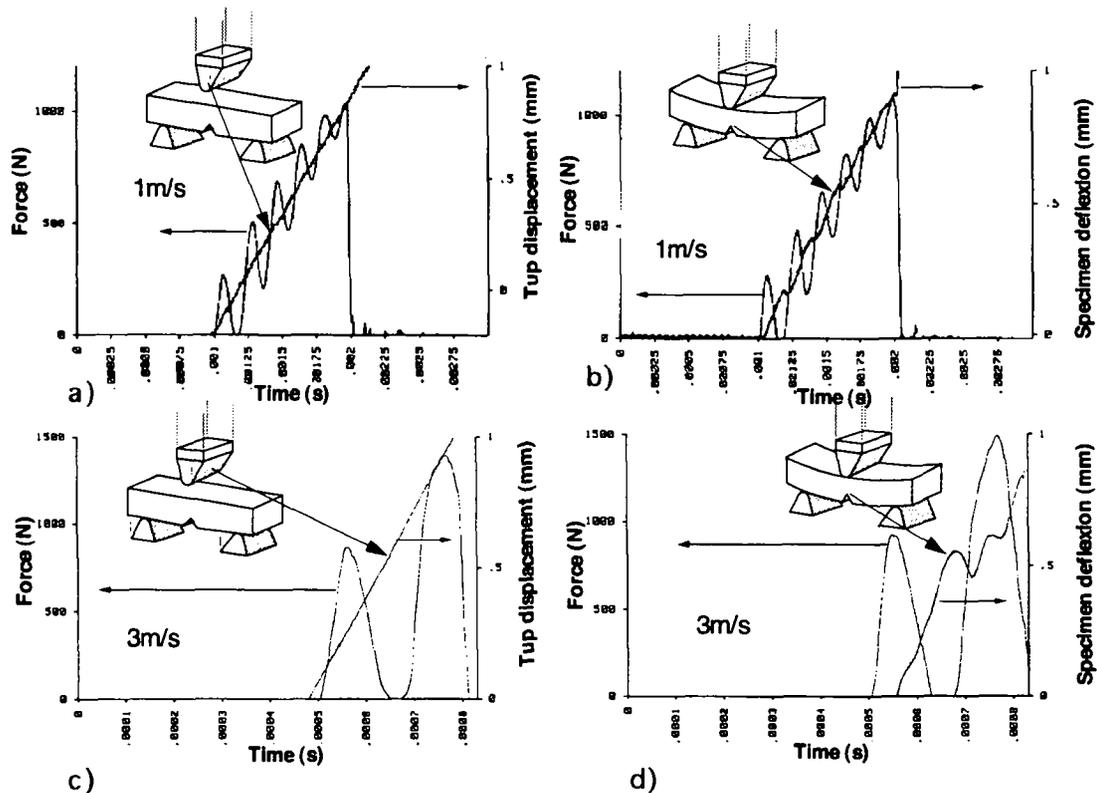


Figure 4-6: Mesure de la force sur le marteau et du déplacement en fonction du temps pour des essais d'impact SENB à 1 et 3 ms^{-1} , sur un PMMA modifié choc (3L30). a) et c) mesure du déplacement du marteau, b) et d) mesure de la déflexion du spécimen pendant l'essai.

Nos mesures montrent que:

- la vitesse de déflexion initiale de l'éprouvette est de l'ordre de 1.8 fois celle de l'impacteur,
- les oscillations de vitesse du spécimen s'amortissent, pour tendre vers la vitesse du marteau. Simultanément, les oscillations de la force sont amorties,
- si la masse et la rigidité de l'éprouvette sont telles qu'il y a perte de contact entre l'impacteur et le spécimen, la vitesse de déflexion peut osciller avec des valeurs positives et négatives. Dès lors, il est raisonnable d'admettre que la vitesse de déformation en tête de fissure, $\dot{\epsilon}$, peut également prendre des valeurs positives et négatives dans la phase oscillante de l'essai,
- si le temps à la rupture est court, comme c'est le cas pour les polymères fragiles, un régime stable de vitesse (et donc de vitesse de déformation) ne peut être atteint avant la rupture. Il s'agit ainsi d'une sollicitation dynamique transitoire, dont l'état de contrainte au front de fissure est oscillant amorti.

4.1.3.c) Nature dynamique des essais d'impact.

Ireland [4], par ses travaux de pionnier, avaient conclu à la nature dynamique de l'essai de Charpy pour une durée d'au moins 3τ , τ , correspondant à la période d'oscillation naturelle du système.

La nature dynamique des essais d'impact en flexion 3 points a fait l'objet d'une impressionnante approche expérimentale de Kalthoff et Böhme [16]. Ces travaux (dont de nombreuses publications sont issues) sont basés sur la mesure de l'accroissement du facteur d'intensité des contraintes (S.I.F.) pendant la déformation du spécimen par l'impacteur. La mesure est effectuée par la méthode des ombres caustiques qui sont photographiées par une camera de type Craz-Schardin. Ces travaux montrent que le S.I.F. n'est pas aussi oscillant que le laisse supposer la mesure de la force sur l'impacteur. Néanmoins ils ont observé que, le S.I.F. dynamique, qu'ils appellent K_I^{dyn} , est oscillant dans la phase initiale de l'essai. Böhme [17] a déterminé des courbes maîtresses associées aux temps de rupture courts, pour le calcul d'une correction dynamique. Connaissant les dimensions du spécimen et la vitesse des ondes longitudinales dans le matériau, C_l , il propose l'utilisation de ces courbes pour le calcul de K_{IC} , par la seule mesure du temps à la rupture, t_f . La méthode, qui fait actuellement l'objet d'une évaluation au Comité Technique 4 de l'E.S.I.S. semble prometteuse.

Dans une série d'articles, Williams [7, 18-20] propose une approche théorique détaillée de la nature dynamique de l'essai d'impact en flexion 3 points, à l'aide du modèle mécanique de la Figure 4-7. L'analyse de Williams est basée sur l'équation de mouvement du système:

$$mu + (k_1 + k_2)u = k_1vt \quad (4-11)$$

avec: $k_1 = 1/C_m$, et $k_2 = 1/C_s$, C_m et C_s étant les complaisances respectives du contact et du spécimen.

Avec comme conditions aux limites: $u = \dot{u} = 0$, à $t = 0$, le déplacement de l'éprouvette, u , devient:

$$u = \left(\frac{C_s}{C_s + C_m} \right) \left(\frac{1 - \sin \omega t}{\omega t} \right) vt \quad (4-12)$$

avec ω , la fréquence propre du système:

$$\omega^2 = \frac{2 \left(\frac{1}{C_s} + \frac{1}{C_m} \right)}{\rho B W S} \quad (4-13)$$

qui dépend des dimensions de l'éprouvette, B, W et S (voir la Figure 4-1) et de la densité, ρ , du matériau.

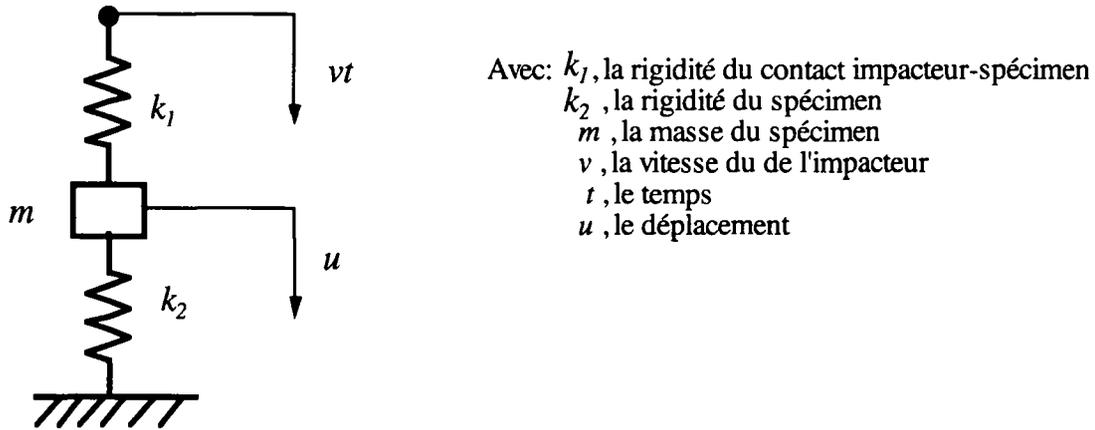


Figure 4-7: Modèle mécanique représentant le comportement du système impacteur-éprouvette lors d'un essai d'impact.

L'équation (4-12) décrit bien un déplacement oscillant de l'éprouvette, de la forme de celui que nous avons mesuré expérimentalement et reporté à la Figure 4-6.

Suivant l'approche de Böhme, Williams *et coll.* [21] proposent l'utilisation d'un facteur de correction dynamique pour les temps de rupture courts, tel que:

$$K_i^{dyn}(t) = K_i^{qs}(t) k^{dyn}(t) \quad (4-14)$$

avec $K_i^{dyn}(t)$: le facteur d'intensité des contrainte corrigé par l'approche dynamique,
 $K_i^{qs}(t)$: d'intensité des contrainte calculé par l'approche quasi-statique (équation 4-17)
 $k^{dyn}(t)$: le facteur de correction dynamique

La corrélation entre l'approche théorique de Williams, et celle expérimentale de Böhme est évidente, comme le montre la Figure 4-8. L'abscisse du diagramme représente le temps adimensionnel, Ct/W , C étant la vitesse de propagation des ondes longitudinales, t , le temps à la rupture, et W , la hauteur du spécimen. k_1^{dyn} correspond au facteur de correction calculé par l'expression polynomiale déterminée par Böhme à partir du déplacement pour une géométrie donnée ($a/W=0.3$, $S/W=4$), et les points correspondent à ses résultats expérimentaux. k_2^{dyn} correspond au facteur de correction proposé par Williams basé sur le déplacement du modèle masses-ressorts.

Mentionnons encore l'approche par le calcul numérique bi-dimensionnel de l'essai SENB par Nakamura *et coll.* [22]. Ils proposent également l'existence d'un temps de transition en deçà duquel ils suggèrent le recours à l'analyse dynamique des conditions de rupture. Ainsi, la nature dynamique transitoire de l'essai SENB à vitesse élevée est aujourd'hui reconnue. A ce jour, les approches présentées ci-dessus sont en cours d'évaluation expérimentale pour la détermination des propriétés des polymères fragiles.

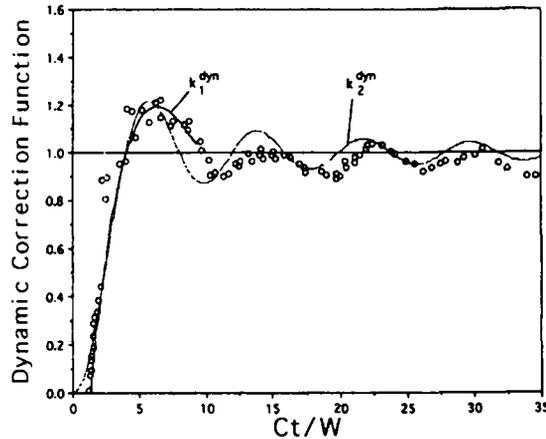


Figure 4-8: Comparaison des facteurs de correction proposés selon le modèle de Williams, et l'approche expérimentale de Böhme [21].

4.2. NOUVELLE APPROCHE DES ESSAIS DE RUPTURE AUX GRANDES VITESSES

Comme nous l'avons vu au paragraphe précédent, l'essai de choc le plus utilisé pour la caractérisation en laboratoire est l'essai Charpy. Il est très séduisant par sa simplicité d'utilisation, car il ne nécessite pas l'instrumentation de l'éprouvette. Malheureusement, la version normalisée de l'essai ne conduit pas à la mesure de grandeurs intrinsèques des matériaux, ni de grandeurs utilisables dans le dimensionnement des structures.

L'approche par la mécanique de la rupture est sensiblement plus rationnelle. Par contre, l'instrumentation par une approche classique de la force rencontre des problèmes insolubles liés à la nature dynamique de l'essai. La mesure de la déformation de l'éprouvette est parfaitement possible, mais ne permet pas la détection de la fracture sans instrumentation supplémentaire du spécimen.

Nous nous sommes fixé comme objectif la mise au point, et l'évaluation d'un test de rupture répondant aux critères suivants:

- applicable à la caractérisation en routine ou en semi-routine, sans instrumentation complexe et coûteuse de l'éprouvette,
- permettant la mesure de grandeurs intrinsèques, compatibles avec les paramètres mesurés à basse vitesse, et utiles au dimensionnement des structures,
- vitesse d'essai variable dans le domaine des hautes vitesses.

Considérant les problèmes liés aux essais de rupture en flexion 3 points nous avons tenté d'obtenir de meilleurs résultats en postulant les principes suivants:

- i) dans l'équation (4-11), les termes μ représentent les composantes dynamiques qui sont responsable des phénomènes d'inertie. Ils ont un double effet: premièrement le pic d'inertie rend indiscernable toute énergie de rupture plus petite que celle contenue dans le pic lui-même, et deuxièmement il excite le système à sa fréquence naturelle. Il convient donc de réduire au maximum ces deux termes. On cherchera donc à contenir l'accélération prodiguée à l'éprouvette, ainsi qu'à réduire sa taille dans le but de diminuer sa masse.

ii) si l'on renonce à instrumenter le spécimen lui-même, il convient de s'assurer qu'aucune perte de contact entre l'élément portant le capteur et le spécimen n'est possible. En effet, il est déraisonnable de tenter la mesure de la force en continu à l'aide d'un capteur de déformation si le contact entre le capteur et l'élément à mesurer peut-être discontinu comme le montre l'exemple des essais en flexion trois points de la Figure 4-6.

Après des essais préliminaires avec les géométries de traction entaillée (*Single Edge Notched -SEN-*) et de tension compacte (*Compact Tension -CT-*), nous avons opté pour cette dernière, en raison du caractère stable de la rupture qu'elle tend à engendrer.

4.2.1. Géométrie et mesure de la force.

La fixation des éprouvettes de géométrie CT est réalisée par des goupilles qui assurent le lien entre l'éprouvette et le cadre d'essai. Si les goupilles sont bien ajustées, le contact entre le spécimen et les parties adjacentes (traverse mobile, capteur de force) est assuré en tout temps. La géométrie est normalisée dans ses proportions, la grandeur caractéristique étant W (voir la Figure 4-9 b). Pour certains matériaux, W , qui est en général un multiple de 1'' peut-être de grande taille. Pour les polymères, on utilise généralement $W=2''$. Lors de ses travaux au Laboratoire de Polymères, Jud [23] avait vérifié qu'il obtenait des ténacités identiques lorsque W était diminué à 1''. Dans le but de réduire la masse des éprouvettes, nous avons opté pour une dimension caractéristique W de 25 mm, ce qui correspond à la dimension $1/2T$ de la norme A.S.T.M.

C'est également dans le but d'alléger le système placée entre l'éprouvette et l'emplacement de mesure de la force que nous avons modifié la géométrie par l'adjonction de l'usinage d'une fente verticale d'une épaisseur de 2.5 mm, pour y insérer une bielle de fixation centrale. Cette bielle, comme la goupille creuse de fixation du côté de la cellule de force, sont construites en titane. Ce système remplace la fourche habituellement utilisée pour la fixation de l'éprouvette (Figure 4-9 a) et permet ainsi un gain de poids important.

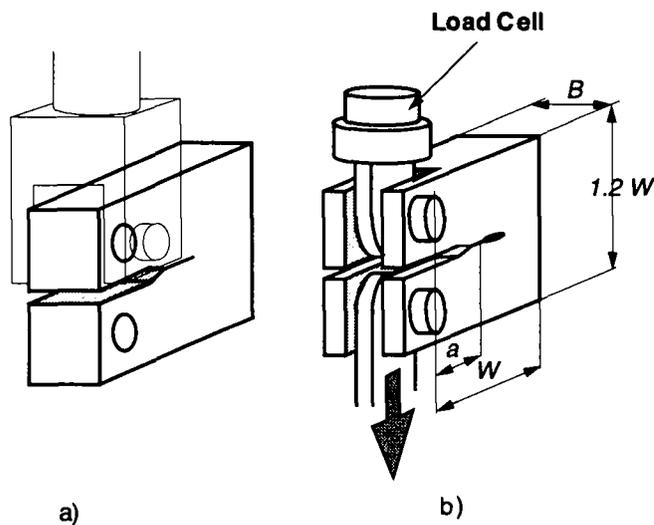


Figure 4-9: Eprouvette CT avec ses dimensions caractéristiques. a) géométrie et fixation conventionnelle, b) géométrie et fixation modifiée pour alléger le système de fixation.

La cellule de force est construite à partir d'un anneau de charge piézo-électrique de marque Kistler 9001. Le système est précontraint au montage à 2500 N, ce qui permet une utilisation en traction et en compression jusqu'à cette valeur. La conversion de la charge électrique délivrée par la cellule en une tension de mesure typique de 100 N/V est réalisée par un l'amplificateur de charge. La linéarité, la stabilité et la sensibilité du système sont excellentes et permettent d'effectuer des essais pouvant durer plusieurs minutes sans dérive significative du signal. La faible masse du système fixation-cellule, de 6.5 gr. (goupille de fixation comprise), et la grande rigidité de la cellule piézo-électrique conduisent à une fréquence de résonance élevée; 65 kHz. Lorsque une éprouvette CT en matière plastique d'une épaisseur, $B \sim 10$ mm est montée dans la configuration de la Figure 4-9 b), la fréquence propre de l'ensemble est de ~ 50 kHz. La bande passante du système est suffisamment élevée pour détecter des phénomènes transitoires, tels que propagation de fissure *stick-slip*, des départs ou des arrêts brusques de propagation (comme le montre la Figure 4-11). Dans certains cas, comme par exemple dans le test des composites renforcés par des fibres, le capteur de force se comporte également en détecteur d'émission acoustique, permettant ainsi d'enregistrer la rupture de certains faisceaux de fibres [24, 25]

4.2.2. Contrôle de l'accélération et mesure du déplacement.

Comme pour les essais de traction (Chapitre 3), l'utilisation de la machine d'essai hydraulique permet le choix de la nature de contact dans le système de transmission. Dans ce cas, la goupille supérieure assure la liaison entre le spécimen et la cellule de force solidaire du cadre d'essai. L'ouverture de l'éprouvette est assurée par la goupille inférieure. La fixation supérieure est stationnaire, et il est nécessaire de mesurer la position de l'attache inférieure pour enregistrer l'ouverture sur la ligne de chargement pendant l'essai. De même que pour les essais de traction, le déplacement de la goupille inférieure est différent de celui mesuré sur le vérin hydraulique par le capteur à noyau inductif (Figure 4-10).

La détermination de l'ouverture de la fissure (crack opening displacement -COD) ne nécessite pas la mesure de l'ouverture des deux lèvres de la pré-fissure usinée. Nous avons vérifié expérimentalement que la connaissance du déplacement de la goupille mobile par le dispositif à fibre optique donne des valeurs identiques à la mesure du COD sur la ligne de chargement. Nous pouvons donc conclure que la complaisance du dispositif d'essai, et la déformation résultant de l'indentation des goupilles déformation sont négligeables..

4.2.3. Influence du contact dans l'unité de transmission sur la nature de l'essai

Naturellement, les basses vitesses de vérin, comprises entre 10^{-4} et 10^{-1} ms^{-1} ne donnent lieu à aucune complication expérimentale. Aux grandes vitesses toutefois, à l'instar des observations faites sur les essais de traction, l'utilisation ou non d'un amortisseur dans l'unité de transmission exerce une grande influence sur le profil de déplacement imposé au spécimen. Ainsi, dans le domaine des grandes vitesses compris entre 10^{-1} et 10 ms^{-1} le type de l'essai dépend de la nature du contact.

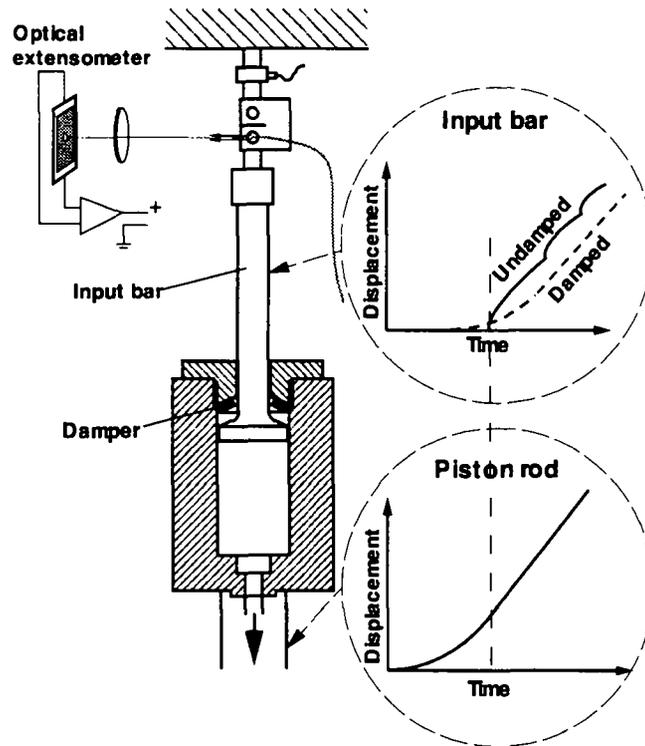


Figure 4-10: Schéma du montage utilisé pour la sollicitation des éprouvettes CT par le vérin hydraulique à grande vitesse Schenck.

4.2.3.a) Essais de rupture sans amortisseur

La Figure 4-11 montre les mesures de force et de déplacement enregistrées sur des éprouvettes de PMMA modifié au choc (le 3L30 décrit au Chapitre 7). Les vitesses de vérin sont: 0.3, 0.5, 1 et 10 ms^{-1} . Aucun amortisseur de contact n'a été utilisé dans le dispositif de transmission. La taille des éprouvettes CT est: $W=25\text{ mm}$, $B=10\text{ mm}$, $a/W\sim 0.5$.

Si l'on considère le profil de déplacement, on constate qu'à la vitesse de 0.3 ms^{-1} déjà, il se produit un contact discontinu dans le système de transmission (les points de contact sont représentés par des 'o' à la Figure 4-11). Au premier contact entre la flasque et la barre d'entrée, celle-ci est projetée à une vitesse supérieure à celle du vérin (0.48 ms^{-1}), et il y a perte de contact entre la barre et la flasque. Une fois l'énergie cinétique de la barre d'entrée dissipée dans la déformation du spécimen, le contact entre la flasque et la barre est repris, et un deuxième rebond est produit. A 0.3 ms^{-1} , 5 à 6 rebonds amortis sont produits avant que les pièces de l'accouplement ne restent définitivement en contact. Tous ces rebonds se produisent avant le maximum de force à partir duquel la rupture se propage. A cette vitesse, seul le chargement de l'éprouvette est concernée par les rebonds du système. La rupture n'est pas affectée.

A la vitesse de vérin de 0.5 ms^{-1} , la vitesse initiale de la barre d'entrée au premier rebond est de 0.9 ms^{-1} . Dans ce cas, l'éprouvette se rompt avant que le contact entre la barre et le vérin ne soit définitivement établi.

A la vitesse de vérin de 1 ms^{-1} , la quasi-totalité de l'essai est achevée à la fin du premier rebond possédant une vitesse initiale de 1.8 ms^{-1} . A 10 ms^{-1} , la vitesse réelle de la barre d'entrée (et donc la vitesse d'ouverture de l'éprouvette) est voisine de 18 ms^{-1} . Tout le domaine de l'essai est situé au début du premier rebond de la barre d'entrée.

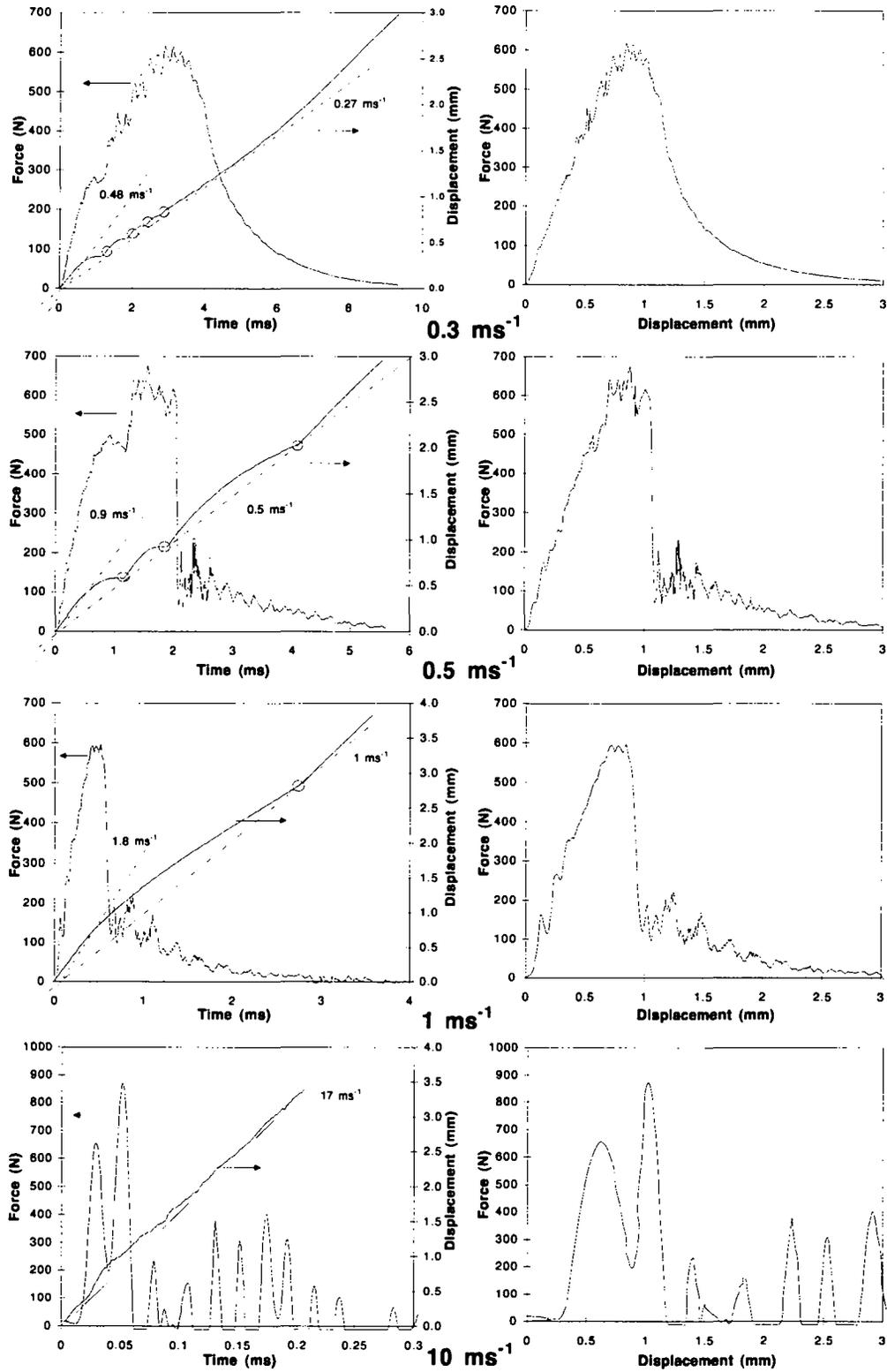


Figure 4-11: Essais non-amortis de spécimens CT en PMMA modifié choc (3L30). Vitesses de vérin de 0.3, 0.5, 1 et 10 ms⁻¹. A gauche: signaux force-temps et déplacement-temps. A droite: courbes force-déplacement.

Il convient de relever que le rapport entre la vitesse du vérin, v_p , et la vitesse impulsionnelle initiale de la barre d'entrée, v_{imp} , est de 1.8 à toutes les vitesses. Dans ce cas, le coefficient de restitution, e , défini par l'équation (3-6) vaut 0.8. La nature des matériaux en contact, et la complaisance des éprouvettes étant constantes à toutes les vitesses d'essai présentés à la Figure 4-11, e est le même pour toutes les vitesses.

L'utilisation de la géométrie CT dans cette configuration expérimentale permet un contact constant entre le spécimen et la cellule mesurant la force, ce qui constitue une amélioration par rapport aux essais au poids tombant de la Figure 4-6. En raison de l'élasticité du contact dans le dispositif d'accélération, la nature discontinue de la vitesse d'ouverture subsiste. De même, à 10 ms^{-1} , l'impulsion instantanée donne lieu à un important pic d'inertie, ainsi qu'à la mise en résonance du système. La mesure précise de la force est ainsi compromise.

4.2.3.b) Essais de rupture avec contact amorti.

Nous avons vu au Chapitre 3 que l'utilisation d'un amortisseur permet de circonvenir la nature impulsionnelle du mouvement prodigué à l'échantillon. L'adjonction d'un amortisseur de contact dans le système de transmission produit un choc mou. Cette configuration d'essai est illustrée par les mesures de la Figure 4-12, réalisées sur le même matériau et avec les mêmes vitesses de vérin qu'à la Figure 4-11.

La goupille mobile du spécimen est progressivement accélérée, à mesure que l'amortisseur se durcit par la compression entre la barre d'entrée et la flasque. La vitesse d'ouverture du spécimen est ainsi progressivement accrue par l'établissement d'un équilibre entre la compression de la rondelle amortissante et la force d'ouverture du spécimen. La vitesse imposée à l'éprouvette n'est identique à celle du vérin que lorsque l'amortisseur est complètement comprimé. En d'autres termes, la raideur de l'amortisseur augmentant avec sa déformation, sa complaisance doit être beaucoup plus petite que celle du spécimen pour que ce dernier soit sollicité à la vitesse du vérin. C'est la raison pour laquelle, les vitesses d'ouverture mesurées à 0.3 et 1 ms^{-1} sont plus petites que celles du vérin. A 10 ms^{-1} , la rupture a lieu lorsque la vitesse d'ouverture a atteint celle du vérin, mais une bonne partie de la déformation du spécimen intervient en cours d'accélération.

La Figure 4-12 montre l'incidence de l'amortisseur sur la mesure de la force. Dans ce cas, le système n'entre pas en résonance et le signal de force n'oscille pas. Dès lors, la mesure du maximum de la force atteint en cours d'essai est aisée. La représentation de la force en fonction du déplacement (ouverture de l'éprouvette sur la ligne de chargement) est facile d'interprétation. Par exemple selon la Figure 4-12, l'essai du PMMA modifié à 0.3 ms^{-1} engendre une propagation stable de la rupture. A 1 ms^{-1} , la rupture est d'abord stable, puis instable; toutefois la rupture instable s'arrête avant la fin du ligament, et un nouveau chargement est nécessaire pour propager la rupture dans la zone 'charnière'. A 10 ms^{-1} , la rupture est instable dans la quasi totalité du ligament. Toutefois en raison de la grande vitesse de sollicitation la décharge du système ne paraît pas être abrupte. Le temps nécessaire à la décharge complète du système constitué par la demi éprouvette, la fixation et la cellule est de $\sim 75 \mu\text{s}$. Pendant ce temps, la goupille inférieure parcourt $\sim 0.75 \text{ mm}$; c'est autant que l'ouverture nécessaire pour initier la rupture. Le pic de force apparaît donc symétrique sur le diagramme force-déplacement

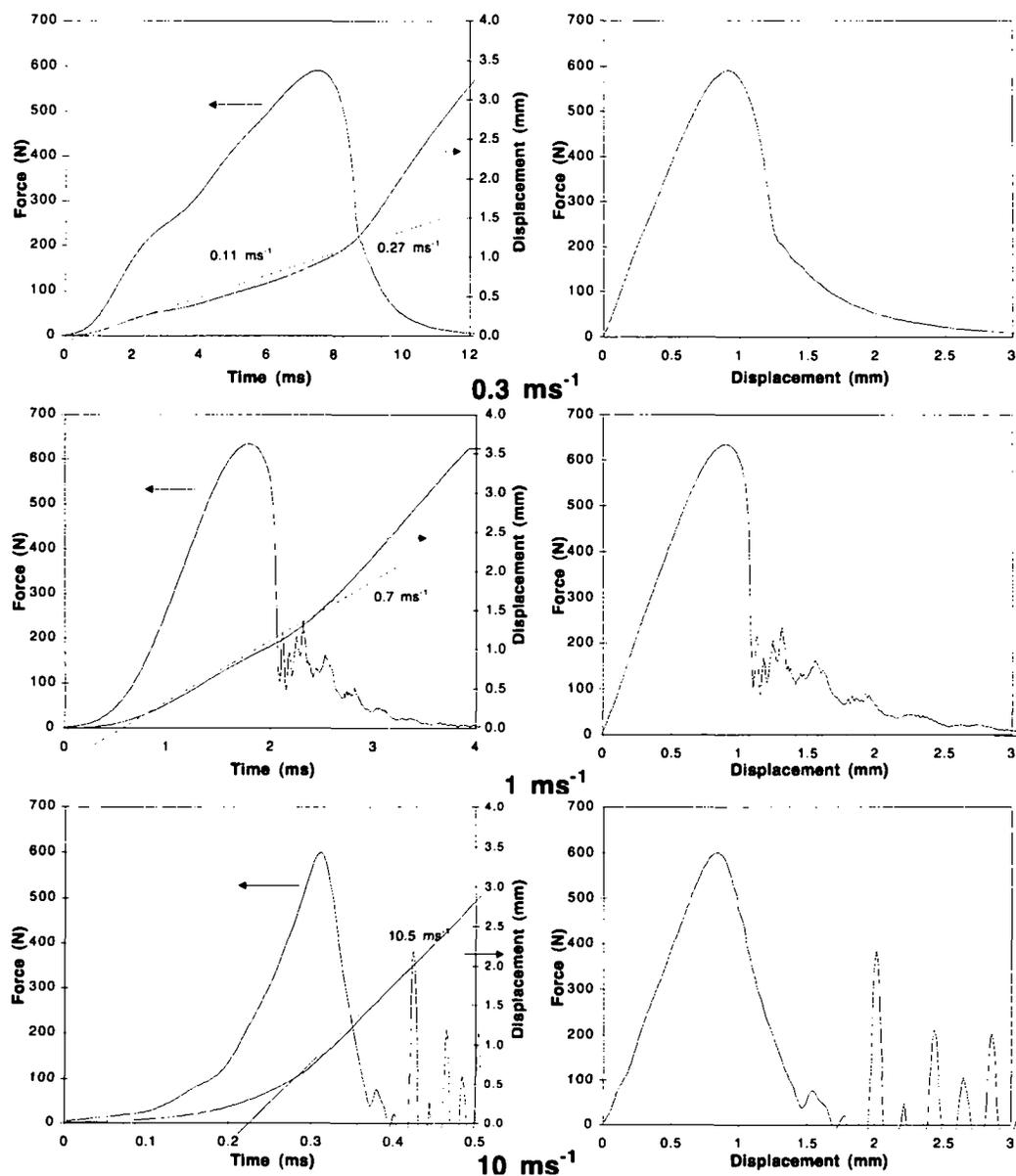


Figure 4-12: Essais amortis de spécimens CT en PMMA modifié choc (3L30). Vitesses de vérin de 0.3, 1 et 10 ms⁻¹. A gauche: signaux force-temps et déplacement-temps. A droite: courbes force-déplacement.

4.2.3.c) Discussion

La Figure 4-13 montre bien l'influence de l'utilisation d'un amortisseur pour les essais de rupture. Elle représente les mesures effectuées sur un polyacétal (POM étudié au Chapitre 6) avec et sans amortisseur de contact pour des essais à vitesses d'ouvertures équivalentes. La mesure de la rupture instable du matériau par des jauges au graphite est représentée. On remarque qu'elle se produit au maximum de la force mesurée par l'essai amorti (Figure 4-13 b). Lorsque l'essai n'est pas amorti, le signal de force ne donne pas de repère clair indiquant le point de rupture, si ce n'est la rapide décroissance de la force. Le décalage de 13 μs existant

entre l'enregistrement de l'instabilité de rupture par la jauge au graphite, et le maximum de la force résulte du temps nécessaire aux ondes pour parcourir la distance entre le front de fissure et le capteur de force.

La progression apparente de la fissure mesurée lors du chargement résulte de la fissuration de la jauge au graphite par l'ouverture élastique de la préfissure, car les jauges au graphites ont été appliquées après la préfissuration de l'éprouvette, la recouvrant partiellement.

Les exemples ci-dessus montrent que l'utilisation d'un amortisseur augmente la durée des essais. Les temps de chargement sont environ doublés, mais essentiellement dans un domaine où les forces exercées sur l'échantillon sont petites. On pense que l'extension du temps de sollicitation influence peu le développement des mécanismes de déformation: elle intervient principalement dans un domaine produisant peu de plasticité en tête de fissure car les contraintes sont faibles.

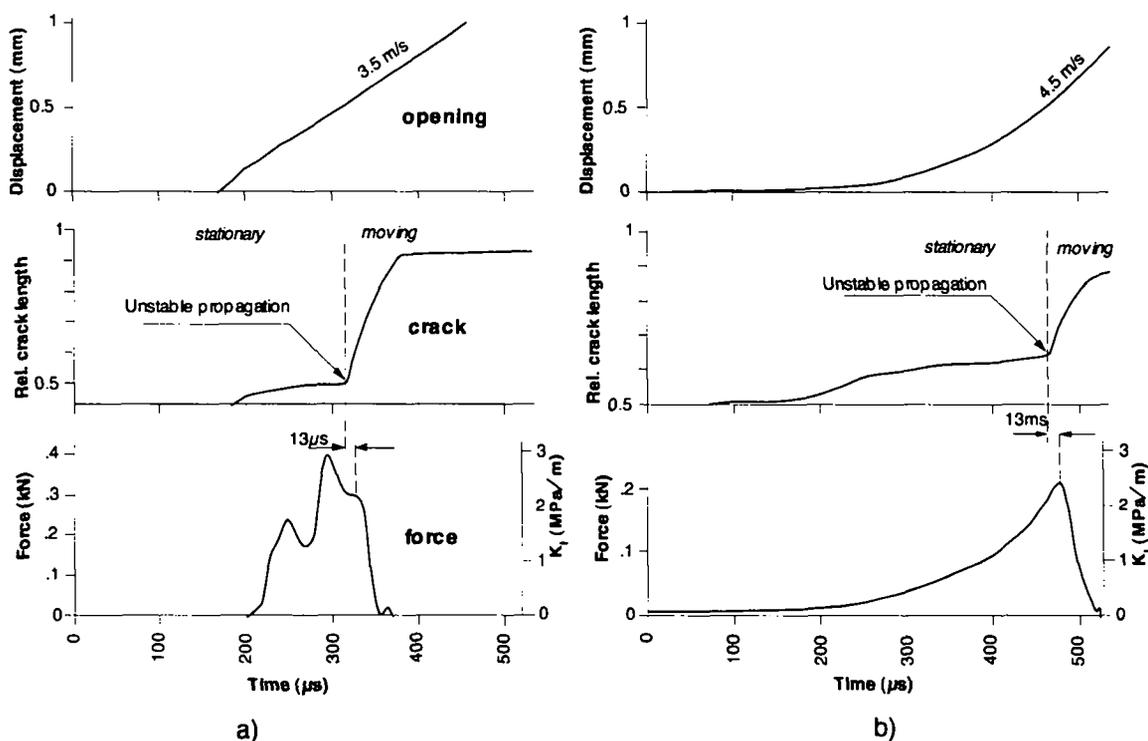


Figure 4-13: Influence de la nature du contact dans l'unité de transmission sur la vitesse d'ouverture et la force mesurée en cours d'essai. Matériau testé: polyacétal (POM). a) contact non-amorti, b) contact amorti.

Une constatation importante concernant la vitesse des essais non amortis s'impose. Avec la géométrie CT, à l'instar des observations réalisées en flexion trois points, la vitesse réelle d'ouverture de l'éprouvette varie en cours d'essai, bien que celle imposée par le vérin (ou l'impacteur) soit constante. Par l'existence de l'impulsion instantanée résultant du contact élastique, la vitesse constante de la source d'énergie est convertie en une vitesse oscillante amortie. Comme nous l'avons vu, la seule façon de circonvenir le problème est d'intervenir au niveau du coefficient de restitution du choc, en diminuant l'accélération de l'objet percuté par un amortisseur. Ainsi, du point de vue exclusif de la vitesse des essais, nous devons admettre que les lois de la physique ne nous permettent pas de produire une vitesse constante d'ouverture de l'éprouvette tout au long de l'essai. Il convient donc de choisir entre la procédure recourant à un

contact élastique, ou celle recourant à un contact amorti (choc mou). Cette dernière présentant l'inconvénient d'augmenter la durée de l'essai, et l'avantage d'imposer un profil de déplacement quasi-uniformément accéléré qui ne change pas de signe en cours d'essai.

L'utilisation d'un amortisseur de contact a également été proposé pour les essais Izod [26] et Charpy [27, 28]. Par ailleurs, l'utilisation d'un amortisseur est préconisée par le protocole de mesure de K_C et de G_C à 1 ms^{-1} en voie d'achèvement par le Comité Technique 4 de l'E.S.I.S. [29].

Comme le but de l'instrumentation des essais d'impact n'est pas seulement de procurer une mesure plus précise de K_C , mais également de G_C , il est utile d'examiner d'un peu plus près l'effet d'un amortisseur de contact sur les grandeurs mesurées. Pour la compréhension, nous recourons aux modèles mécaniques composés de ressorts et d'amortisseurs, qui sont utiles à la représentation des différentes parties intervenant dans les essais. En Figure 4-14, nous proposons des modèles comparatifs représentant les essais de flexion 3 points amortis et la configuration d'essai CT amortie discutée ici. Le recours à la simulation numérique est nécessaire pour la résolution des équations de ces modèles possédant un grand nombre de degré de liberté, car les solutions analytiques sont extrêmement complexes, voire impossibles. De tels calculs n'ont pas été entrepris ici, toutefois certains auteurs ont fait une approche plus détaillée de la modélisation d'un amortisseur en flexion 3 points, soit numériquement [26] ou analytiquement [20, 30]. A la Figure 4-14, le contact est modélisé par l'amortisseur, η_1 , et le ressort non-linéaire k'_1 . Le spécimen est caractérisé par sa masse, m , et le ressort, k_2 , et l'amortisseur, η_2 . La masse M représente la masse de l'impacteur des essais SENB, et celle du vérin pour les essais CT. Dans les deux cas, on peut admettre que $M \gg m$, ou $M \sim \infty$. Le couple m_m et k_m de la configuration CT représente la masse et la rigidité de la barre d'entrée du système de transmission.

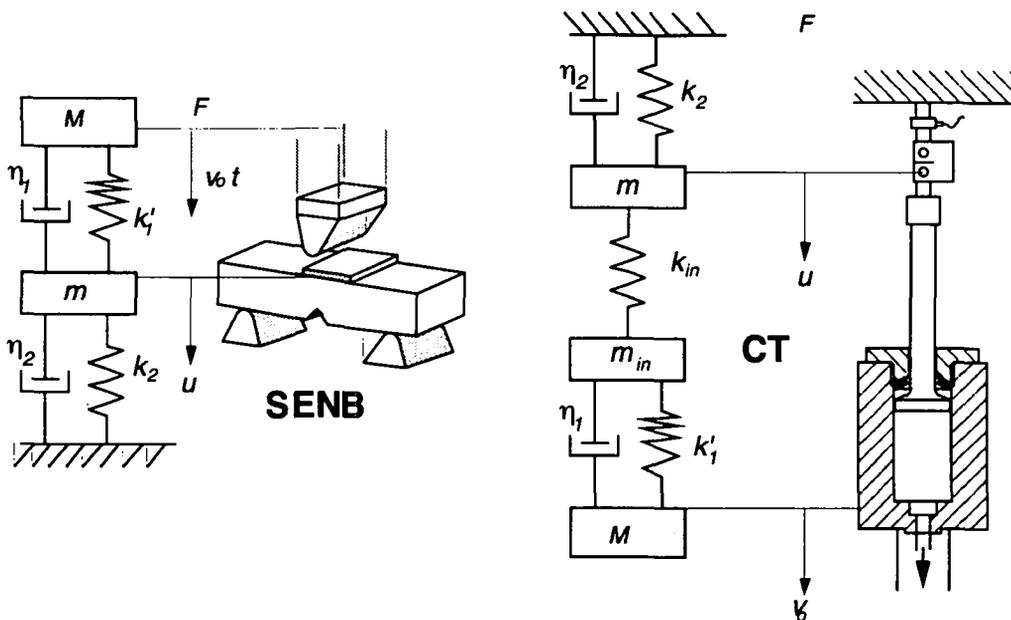


Figure 4-14: Comparaison des modèles mécaniques représentant les essais en flexion 3 points (SENB) et en tension compacte (CT) amortis.

Le plus souvent, dans le cas de la géométrie SENB, la force, F , est mesurée sur l'impacteur, et le déplacement est calculé en émettant l'hypothèse d'une vitesse, v_0 , constante de l'impacteur. Le bilan de l'énergie de rupture, U , par l'intégration numérique de la courbe force-temps donne:

$$U(t) = v_0 \sum_0^t F(t) \Delta t \quad (4-15)$$

L'énergie mesurée de la sorte inclut l'énergie dissipée dans la déformation de l'amortisseur, qui ne peut pas être négligée car elle est de l'ordre de grandeur de l'énergie de rupture. Cette solution n'est pas satisfaisante et nécessite soit la correction expérimentale proposée par l'E.S.I.S. [29], soit la connaissance précise de la loi de comportement de l'amortisseur utilisé [30] pour effectuer la correction.

Grâce à la mesure directe de la déformation du spécimen, u , par le capteur optique, l'approche expérimentale par la géométrie CT que nous proposons permet la mesure l'énergie dissipée dans le spécimen par:

$$U(t) = \sum_0^{u(t)} F(u) \Delta u \quad (4-16)$$

Cette approche permet un bilan précis de l'énergie de rupture sans correction additionnelle, et ne nécessite pas une connaissance précise du comportement de l'amortisseur utilisé. De plus, l'absence de perte de contact en cours d'essai entre la cellule de force et le spécimen contribue à l'augmentation de la précision du bilan énergétique.

4.3. APPLICATION EXPERIMENTALE DE L'APPROCHE PROPOSEE

4.3.1. Détermination de K

La détermination de K_I est basée sur la mesure de la force. Lorsque le comportement est linéaire élastique fragile, l'identification de la force à la rupture ne pose pas de problème, il s'agit de F_{max} . Pour le cas des polymères modifiés choc les plus tenaces, comme nous le verrons au Chapitre 7, la non-linéarité de la courbe force-déplacement est plus difficile à interpréter.

La Figure 4-15 montre le diagramme force-déplacement d'un PMMA 3L30 qui est le matériau le plus anélastique traité dans ce travail (au Chapitre 7). Le protocole d'essai de l'E.S.I.S. [29] préconise comme force pour la détermination de K l'intersection entre la force mesurée, et une droite de pente de 5% à la pente de la courbe de force ($F_{5\%}$).

Pour des raisons qui seront discutées au Chapitre 7, nous avons choisi de calculer K à partir de F_{max} . Ainsi, pour la détermination de K_I , on utilise:

$$K_I = f\left(\frac{a}{W}\right) \frac{F}{BW^{1/2}} \quad \text{ou} \quad K_{I_{max}} = f\left(\frac{a}{W}\right) \frac{F_{max}}{BW^{1/2}} \quad (4-17)$$

avec: $f(a/W)$, le facteur de géométrie défini dans l'annexe A1
 a , B , et W , les dimensions du spécimen définies à la Figure 4-9

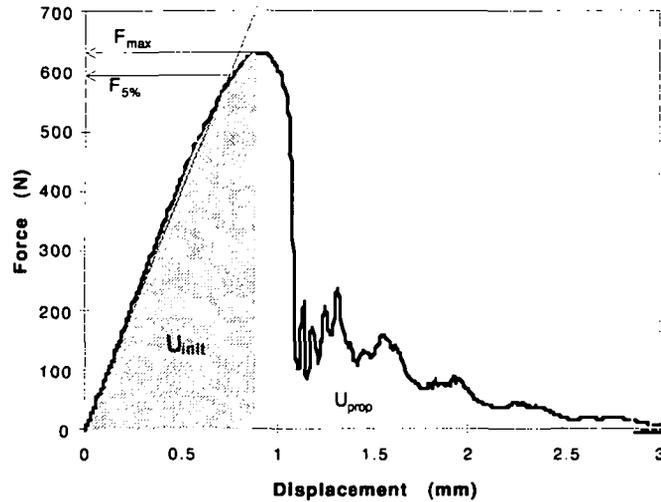


Figure 4-15: Diagramme force-déplacement pour un essai CT amorti à 1 ms^{-1} du PMMA 3L30.

4.3.2. Détermination de G .

La détermination de G implique l'intégration de la courbe force-déplacement telle que décrite par l'équation (4-16). Lorsqu'on utilise l'énergie de rupture totale, G_{tot} , soit l'énergie dissipée pour l'initiation de la rupture plus celle nécessaire à la propagation de la fissure dans le ligament, la courbe force-déplacement est intégrée numériquement dans sa totalité.

Le plus souvent on ne s'intéresse qu'à l'énergie d'initiation, G_{IC} , associée au facteur d'intensité de contraintes et l'intégration n'est réalisée que jusqu'à la force considérée pour le calcul de K_I (voir la Figure 4-15).

Dans ce cas, G_I est calculé à partir de l'équation (4-10), soit:

$$G_{IC} = \frac{U_{init}}{BW\phi\left(\frac{a}{W}\right)} \quad (4-18)$$

avec: U_{init} la surface définies à la Figure 4-15,
 $\phi\left(\frac{a}{W}\right)$, le facteur de calibration pour l'éprouvette CT [29]

4.3.3. Relation expérimentale entre G et K

Nous avons vu au Chapitre 2 que la relation théorique entre G et K est du type:

$$G = \frac{K^2}{E^*}, \text{ avec } E^* = \frac{E}{(1-\nu^2)} \quad (4-19)$$

Nous avons appliqué cette relation à toute une série de données expérimentales, en calculant:

$$E^* = \frac{K_{IC}^2}{G_{IC}} \quad (4-20)$$

Pour tous les matériaux auxquels nous avons appliqué cette relation, nous avons observé une augmentation de E^* avec la vitesse de sollicitation, puis pour ceux dont le comportement à la rupture est hautement instable, une brusque décroissance de E^* avec l'augmentation de la vitesse d'essai, v . La Figure 4-16 montre une telle analyse pour le PMMA 2L étudié au Chapitre 7. La teneur en phase modificatrice est de 0%, 15%, 30% et 45%. Lorsque la fraction modificatrice augmente, le module E^* diminue, par l'accroissement de la teneur en phase caoutchoutique. Parallèlement, K et G augmentent et la rupture instable du ligament (c'est-à-dire le comportement fragile) est décalée vers des vitesses plus élevées.

Si l'augmentation de E^* avec la vitesse de sollicitation est cohérente, la brusque inflexion de la courbe aux vitesses élevées est inattendue. Elle ne peut-être expliquée par les propriétés des matériaux.

Sans étudier cette particularité dans le détail, nous avons remarqué que les matériaux qui présentent une rupture stable à toutes les vitesses ne possèdent pas d'inflexion de la courbe E^* - v , et E^* croît sur toute la gamme de vitesse.

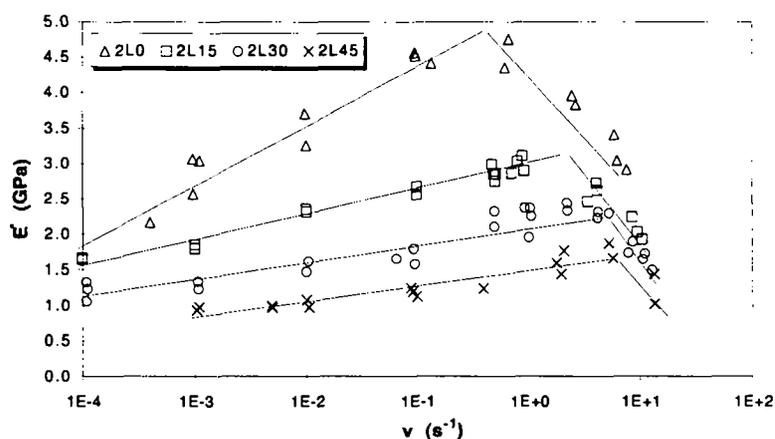


Figure 4-16: Evolution du module d'élasticité apparent, E^* , avec la vitesse d'essai, v , pour une série de PMMA modifiés avec des fractions différentes d'inclusion caoutchoutiques.

L'explication que nous proposons se base sur le § 2.2.7 du Chapitre 2. Elle est la suivante: lorsque la rupture est stable, $G_{IC} = R$. Lorsque la rupture est instable, il n'est plus possible de séparer U_{init} et U_{prop} , comme sur la Figure 4-15. Après l'initiation, la rupture se propage dans tout le ligament $W-a$ car la force motrice de la propagation est la déformation élastique contenue dans l'éprouvette au moment de l'initiation. Si l'énergie élastique stockée au moment de l'initiation est proche de celle nécessaire à la propagation dans le ligament, alors l'énergie de rupture mesurée, $G_{ICmes} \sim G_{IC}$. Si l'excès d'énergie est grand, alors l'énergie cinétique, U_K , de l'équation (2-19) n'est plus négligeable, et $G_{ICmes} > G_{IC}$.

Dans ce cas, E^* calculé par l'équation (4-20) est entaché d'erreur par la surestimation de G_{IC} , et le E^* calculé diminue parce que K_{IC} n'est pas affecté.

4.4. CONCLUSIONS

Les différentes expériences présentées dans ce chapitre montrent qu'au niveau du déplacement induit à l'éprouvette, les essais de flexion 3 points et ceux de tension compacte à

grande vitesse posent les mêmes problèmes. L'expérimentateur doit choisir la nature du contact entre la source d'énergie et le spécimen testé. L'impulsion initiale née d'un contact élastique conduit à un essai dynamique difficile à interpréter, qui peut engendrer une vitesse de déformation oscillante au front de fissure. Au contraire, l'accélération progressive de l'échantillon par un contact mou tend à produire un essai quasi-statique dont la vitesse de déformation au front de fissure augmente graduellement pendant l'essai. La possibilité d'établir une grande vitesse d'ouverture de la fissure, constante pendant la durée du test n'existe pas en raison de l'équilibre dynamique imposé par les équations de mouvement.

La méthode CT proposée ici permet d'obtenir des valeurs fiables de facteur d'intensité des contraintes, K . La mesure de G_c pour les polymères fragiles est plus délicate, et l'utilisation d'une instrumentation sophistiquée ne permet pas de prendre en compte la quantité d'énergie cinétique résultant d'une rupture instable à grande vitesse. Cette énergie excédentaire est responsable des mouvements (parfois violents) des fragments de l'éprouvette rompue, ce qui conduit à une surestimation de G_c .

Il reste à vérifier l'applicabilité des hypothèses statiques de mécanique de la rupture linéaire aux essais CT amortis. De même, les limites d'application doivent être étudiées plus en détail. C'est l'objet du Chapitre 5.

4.5. ENGLISH CAPTIONS

Table 4-1: Estimation of the strain rates in mechanical testing.

Figure 4-1: a) Charpy pendulum. b) Notched Charpy specimen.

Figure 4-2: Force, F , -displacement, x , diagram in a single end notched bending test for an elastic material (schematic)

Figure 4-3: Determination of the fracture energy G_c , by the variation of compliance method (Impact modified PMMA -3L30, impact velocity of 1ms^{-1}).

Figure 4-4: Force measurement, F , and crack propagation, R_o/R , in a Charpy experiment at 3ms^{-1} . a) Polymethylmethacrylate, b) Polycarbonate [12].

Figure 4-5: Effect of the crack length, a/W , on the force-time measurements of a notched specimen in a 3 points bending experiment at 1ms^{-1} . a) Neat PMMA, b) Impact modified PMMA.

Figure 4-6: Force at the tip and displacement measured optically, in SENB experiments at 1 and 3ms^{-1} . a) and c) the displacement of the striker is measured, b) and d), the specimen deflexion is measured. Material: impact modified PMMA (3L30).

Figure 4-7: Mechanical model representing the striker-specimen behaviour in impact testing.

Figure 4-8: Comparison between the correction factors calculated by the Williams's model, and the experimental approach proposed by Böhme. [21].

Figure 4-9: Compact Tension geometry. a) Standard geometry and conventional fixture. b) Modified geometry and reduced weight fixtures and load cell.

Figure 4-10: Schematic representation of the pickup used for high speed fracture experiments in the Schenck servohydraulic.

Figure 4-11: Undamped CT fracture tests on impact modified PMMA (3L30). Piston speed of 0.3, 0.5, 1 and 10ms^{-1} . Left: force and displacement of the moving pin versus time. Right: Force versus displacement.

Figure 4-12: Damped CT fracture tests on impact modified PMMA (3L30). Piston speed of 0.3, 1 and 10ms^{-1} . Left: force and displacement of the moving pin versus time. Right: Force versus displacement.

Figure 4-13: Influence of the contact stiffness in the pickup on the opening velocity and the force measured. Material: POM. a) Undamped contact. b) Damped contact.

Figure 4-14: Comparison between mechanical models equivalent to: left) a SENB test using a damping pad and right) a damped CT test .

Figure 4-15: Force-displacement diagram measured in a damped CT experiment. Piston speed: 1ms^{-1} , material: impact modified PMMA 3L30.

Figure 4-16: Apparent elastic modulus E^ , versus testing velocity, v , measured in a series of rubber modified PMMA with different volume fraction of modifying particles: 2L0: 0%, 2L15: 15%, ...*

4.6. REFERENCES

- 1 Westover R.F., *Plastic Technology*, **4** (1958), p.223
- 2 Reed P.E., *Developments in Polymer Fracture-1*, (1979), Andrews E.H. ed, Applied Science Publisher, London, p. 121
- 3 Kakarala S.N., Roche J.L., *Instrumented Impact of Plastics and Composite Materials*, ASTM STP 936, American Society for Testing and Materials, (1987), p 144.
- 4 Ireland D.R, *Instrumented Impact Testing*, (1974), ASTM STP 563, American Society for Testing and Materials, p. 3
- 5 Williams J.G., Cawood M.J., *Polymer Testing*, (1990), **9**, p.15
- 6 Marshall G.P., Williams J.G., Turner C.E., *J. Mat. Sci.*, (1973), **8**, p 949,
- 7 Williams J.G., *Fracture Mechanics of Polymers*, (1987), Ellis Horwood, Chichester.
- 8 Plati E., Williams J.G., *Polym. Eng. Sci.*, **15**, (1975), 6, p. 470.
- 9 Turner C.E, *Impact Testing of Metals*, ASTM STP 466, American Society for Testing and Materials, (1970), p.93
- 10 Venzi S., Priest A.M., May M.J., *Impact Testing of Metals*, ASTM STP 466, American Society for Testing and Materials, (1970), p.
- 11 Saxton H.J., Ireland D.R, Server W.L, *Instrumented Impact Testing*, (1974), ASTM STP 563, American Society for Testing and Materials, p. 50
- 12 Béguelin, Ph., Stalder B., Kausch. H.H., *Int. J. Fract.*, **23** (1983) R7
- 13 Stalder B., Béguelin Ph., Roulin-Moloney A.C., Kausch H.H., *J. Mater. Sci.*, **24** (1989), p. 2262
- 14 Zanichelli C., Rink M., Pavan A., Ricco T., *Polym. Eng. Sci.*, **30**, (1990), 18, p 1117
- 15 Dear J., *J. Appl. Phys.*, **67**, (1990), 9
- 16 Kalthoff J.F., Winkler S., Böhme W., Klemm W., in *Adv. in Fracture Research*, François *et al.* ed., (1980), Pergamon Press, Oxford-New York, p. 363.
- 17 Böhme W., in *Impact and Dynamic Fracture of Polymers and Composites*, ESIS 19, ed: Williams J.G and Pavan A., (1995), Mechanical Engineering Publications, London, p. 59
- 18 Williams J.G., *Int. J. Fract*, **33**, (1987), p.47
- 19 Williams J.G., Adams G.C., *Int. J. Fract*, **33**, (1987), p.209
- 20 Williams J.G., Badi N.M.N., *Int. J. Fract*, **39**, (1989), p.147
- 21 Williams J.G, Braga L.M., MacGuillivray H.J, in *Impact and Dynamic Fracture of Polymers and Composites*, ESIS 19, ed: Williams J.G and Pavan A., (1995), Mechanical Engineering Publications, London, p. 45.
- 22 Nakamura T., Shih F., Freund L.B., *Engineering Fracture Mechanics*, **25**, (1986), 3, p. 323
- 23 Jud. K., *Thèse de doctorat No 413*, EPFL, (1981).
- 24 Béguelin Ph., Barbezat M., Kausch H.H., *J. Phys. III France I* (1991), p. 1867.
- 25 Barbezat M., *Thèse de doctorat*, EPFL, No 867, (1990).
- 26 Mills N.J., Zhang P.S, *J. Mat. Sci.* **24**, (1989), p. 2099.
- 27 Vu Khanh T., *Analyse et caractérisation par la mécanique de la rupture, de la résistance au chocs des polymères*, Thèse de Docteur-Ingénieur, Université Technique de Compiègne, 17 juin 1982

- 28 Casiraghi T., Castiglioni G., Ronchetti T., *J. Mat. Sci.*, **23**, (1988), p. 459.
- 29 Pavan A., *High Rate KC and GC testing of plastics, an ESIS TC 4 recommendation for impact testing of plastics*, (1996).
- 30 Bezerédi A., Vörös G., Pukanszky B., *Mechanical Damping in Instrumented Impact Testing*, (1995), Manuscript received from authors.

CHAPITRE 5

5. INFLUENCE DE L'ACCELERATION SUR LES ESSAI DE RUPTURE AUX GRANDES VITESSES.

Au Chapitre 4, nous avons proposé une approche des tests de rupture basée sur l'utilisation d'un amortisseur de contact pour réduire l'accélération du spécimen de géométrie CT.

Nous avons remarqué expérimentalement que lors des essais amortis à des vitesses de vérin supérieures à $\sim 8\text{ms}^{-1}$, la rupture dévie en dehors de plan de symétrie de l'éprouvette. Cette constatation est valable pour des vitesses beaucoup plus faibles, de l'ordre de 1.5ms^{-1} lorsque le contact n'est pas amorti. De plus, l'angle de déviation augmente avec la vitesse du vérin.

Nous avons entrepris une étude détaillée de l'état de contrainte dans l'éprouvette pendant les essais de courte durée, par le biais de l'expérimentation et du calcul numérique. Cette étude a été entreprise en collaboration avec Christophe Fond, chercheur au CNRS à l'Institut Charles Sadron de Strasbourg, qui a effectué les calculs numériques lors de son séjour au LP.

5.1. OBJECTIFS ET DEMARCHE SUIVIE.

L'objectif principal de l'étude est une meilleure compréhension de l'influence de l'accélération du spécimen sur l'état de contrainte conduisant aux mécanismes de déformation et de rupture aux grandes vitesses. D'autre part, la justification de l'utilisation des hypothèses statiques de mécanique linéaire élastique de la rupture pour l'analyse des résultats des essais amortis restait à démontrer.

La démarche suivie vise la caractérisation de l'état des contraintes en cours d'essai par des moyens optiques pour quatre conditions de chargement (deux vitesses sans l'utilisation d'un amortisseur, et deux avec). Fort de la connaissance précise des conditions de chargement expérimentales rigoureusement mesurées, ces conditions sont simulées par le recours au calcul par éléments finis. Les résultats sont comparés pour évaluer la validité des calculs. Dans une seconde étape, l'exploitation des résultats des calculs permettent d'estimer des grandeurs qui ne sont pas mesurables expérimentalement.

5.2. CARACTERISATION DE L'ETAT DES CONTRAINTES PAR LA PHOTOELASTICITE.

Les méthodes optiques sont les plus appropriées pour la mesure des phénomènes rapides à caractère dynamique transitoire. Elles sont sans contact mécanique avec les phénomènes à mesurer. Par rapport aux autres méthodes, elles ne perturbent pas les observations par l'adjonction de capteurs qui constituent des masses additionnelles, dont nous avons vu l'importance pour les phénomènes dynamiques. Le temps de propagation des ondes lumineuses peut être négligé comparativement à la vitesse des phénomènes impliquant des transferts de masse, comme la propagation des ondes de contraintes. Parmi les méthodes optiques les plus

utilisées en rupture dynamique, on peut relever la méthode des ombres caustiques, et la photoélasticité.

La méthode des ombres caustiques est largement répandue pour la mesure des propriétés de rupture dynamique des matériaux [1, 2]. Lorsqu'elle est appliquée en réflexion (pour les matériaux non-transparents), elle se base sur la mesure de la déformation hors plan du matériau en tête de fissure. En transmission (pour des matériaux transparents), elle est basée sur le cumul de la déformation hors plans des deux faces de l'éprouvette, et la modification de l'indice de réfraction du matériau, induit par la déformation qu'il subit. Cette méthode est précise, et relativement simple dans le dépouillement des mesures, car une fois la constante optique du matériau connue, il suffit de mesurer la taille du caustique pour connaître le facteur d'intensité des contraintes.

Après avoir expérimenté statiquement cette méthode optique, nous y avons renoncé pour deux raisons: i) pour l'utilisation dynamique, elle nécessite une puissante source d'illumination d'origine ponctuelle (par exemple un laser de grande intensité) que nous ne possédions pas; et ii) l'analyse des modes mixtes de déformation (que nous suspicions) est difficile et imprécise.

5.2.1. Photoélasticité.

On a souvent recours à la photoélasticité pour la mesure de la répartition des contraintes dans une structure. La méthode se prête également très bien à l'étude dynamique, pour autant que l'on possède les équipements nécessaires à la photographie à haute vitesse. Le principe de la photoélasticité repose sur les propriétés que possèdent les corps dits *biréfringents* à présenter des indices de réfraction anisotropes lorsqu'ils sont soumis à des déformations. La variation de l'indice de réfraction avec la déformation (et par conséquent la contrainte) et la direction d'observation permet de visualiser les contraintes internes des matériaux lorsqu'ils sont éclairés en lumière polarisée.

Sans entrer dans le détail, relevons que la position des franges appelées *isoclines* permet de repérer la direction des contraintes principales relatives aux direction de polarisation. Les franges dites *isochromes* rendent compte de l'intensité de la différence des contraintes principales, $\sigma_1 - \sigma_2$. Lorsque la lumière est polarisée perpendiculairement, les isoclines apparaissent en même temps que les isochromes. On les distingue facilement en lumière blanche car les isoclines sont noires, et les isochromes sont colorées. En lumière monochromatique en revanche, il est parfois difficile de les distinguer. Le recours à la polarisation circulaire permet d'éliminer les isoclines, et seules les isochromes subsistent.

Dans un modèle bi-dimensionnel illuminé en lumière monochromatique, la différence des contraintes principales, $\sigma_1 - \sigma_2$ s'exprime par:

$$\sigma_1 - \sigma_2 = \frac{C}{B} \bar{N} \quad (5-1)$$

où C est la constante optique du matériau biréfringent, B , l'épaisseur du modèle et, N , l'ordre relatif de la frange isochrome considérée.

Ainsi l'image formée par les isochromes d'un modèle 2D constitue un relevé des lieux des isovaleurs des contraintes de cisaillement. L'intensité des contraintes en valeurs absolues est plus difficile à établir et nécessite une parfaite connaissance des conditions de bord du modèle.

5.2.2. Matériaux des modèles photoélastiques.

Les matériaux utilisés pour la confection des modèles photoélastiques sont des polymères. Les plus utilisés en raison de leurs constantes optiques élevées sont:

- Le polycarbonate
- Les résines polyester thermodurcies (Homalit 100)
- Les résines époxydes (Araldite)

L'avantage des résines thermodurcies est que leur constante optique, C , dépend peu de la vitesse de déformation, au contraire des thermoplastes [3, 4]. Pour notre étude nous avons choisi une résine époxyde, l'Araldite B, avec $C=10.5$ MPa mm, pour une longueur d'onde de la source de 589 nm (données du fournisseur du matériau [5]). Les éprouvettes conformes à la géométrie de la Figure 4-8b, ont été découpées dans des plaques coulées, exemptes de contraintes internes, préparées spécialement pour la réalisation de modèles photoélastiques.

L'Araldite B possède des propriétés contrainte-déformation linéaires élastiques. Ses propriétés de biréfringence sont linéaires jusqu'à la contrainte de rupture. Les entailles ont été fraisées, mais n'ont pas été propagées naturellement, tel qu'on le fait habituellement pour déterminer K_{IC} . Nous n'avons pas eu recours aux entailles les plus 'aiguës' possibles, car nous désirions une contrainte de rupture la plus élevée possible pour observer un maximum de franges. Nous avons donc utilisé une pré-entaille émoussée (*blunt notch*), qui conduit à des valeurs de rupture de $K_{IC} \sim 1.5$ MPa \sqrt{m} alors que la valeur intrinsèque de ce matériau est de ~ 0.6 MPa \sqrt{m} .

5.2.3. Montage optique.

Nous avons monté un banc optique supportant un polariscope sur la machine d'essai servo-hydraulique. Le montage optique utilisé est schématisé à la Figure 5-1. Il comprend une source de lumière blanche, constituée par un tube flash au Xénon d'une énergie de 15 Joules. Bien que la source de lumière soit dans l'axe d'observation, la grande longueur du tube de décharge (~ 8 cm), et l'utilisation d'un réflecteur parabolique et d'un diffuseur permettent d'éviter la formation des ombres caustiques. Partant de la source, la lumière traverse dans l'ordre: le polariseur orienté à 0° , la première lame quart d'onde à $+45^\circ$, l'échantillon, la seconde lame quart-d'onde à -45° , l'analyseur à 90° , un filtre vert, et entre dans la caméra à haute vitesse.

Le champ de prise de vue est ajusté pour observer la totalité du spécimen. Il est ainsi impossible d'avoir des informations précises sur l'état de contrainte en front de fissure, car la résolution spatiale n'est pas suffisante. L'allumage du flash est déclenché par la position du vérin hydraulique.

Parce que nous utilisons une émulsion négative noir et blanc, le spectre de la lumière blanche de la source est restreint par un filtre vert Kodak No 58, ne laissant passer que les longueurs d'onde comprises entre 500 et 600 nm. L'utilisation de ce filtre permet de porter le nombre de franges qui peuvent être distinguées à 5 ou 6. Par comparaison, en absence de filtre, seuls 3 à 4

ordres sont visibles, en raison du décalage des couleurs de passage d'un ordre à l'autre (spectre de Newton).

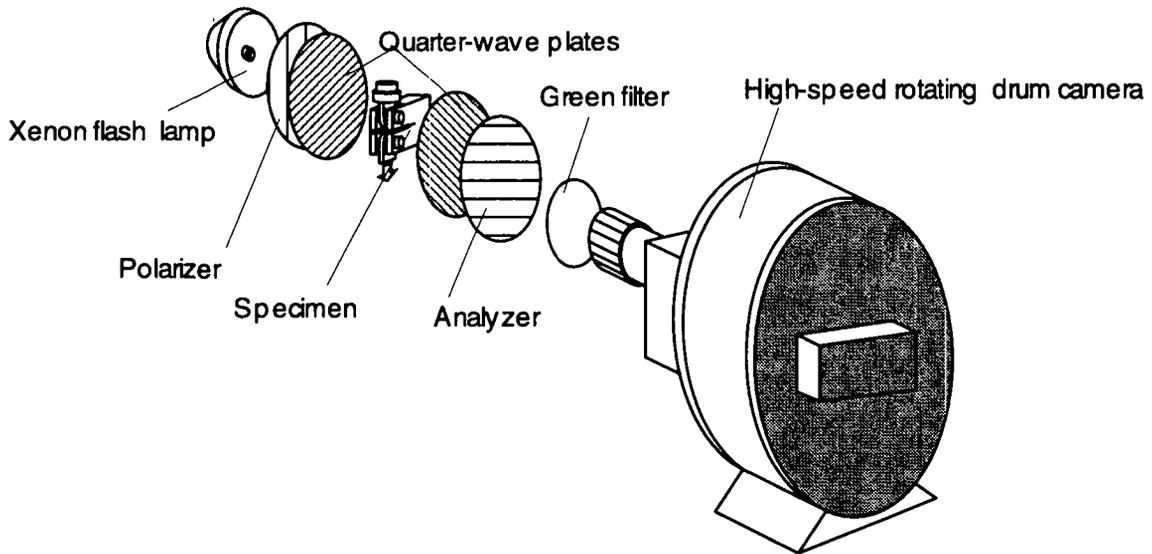


Figure 5-1: Représentation schématique du montage optique utilisé pour les observations photoélastiques.

La caméra à haute vitesse est une Cordin model 377 à miroirs tournants. La fréquence de prise de vue est variable entre 10'000 et 200'000 images par seconde. Pour nos essais, nous l'avons utilisée à sa vitesse maximale, soit un intervalle de temps entre deux prises de vue de $5\mu\text{s}$. La pellicule est une Kodak Tmax™ P3200, noir et blanc. Chaque exposition de la caméra permet d'exposer jusqu'à 500 prises de vue sur une bande de film de 70mm de large et 1m de long. Les images de $10 \times 13 \text{mm}^2$ sont placées en 4 rangées sur le négatif. Etant donné que l'alignement sur le film ne correspond pas à la séquence temporelle, les images négatives doivent être reprises une à une pour l'arrangement en une séquence film ou même simplement temporelle.

Nous avons remplacé la chambre noire par une acquisition directe des négatifs par un ordinateur MacIntosh. Un dispositif d'entraînement de la pellicule par deux moteurs et commandé par l'ordinateur a été réalisé par Olivier Léchenne. Il permet une reprise semi-automatique des images et autorise la réalisation de films numériques projetables en boucle sur l'ordinateur.

5.3.CONDITIONS EXPERIMENTALES.

Nous avons choisi d'étudier quatre conditions expérimentales du domaine des grandes vitesses. Deux conditions correspondent au domaine inférieur de ces vitesses, soit 1ms^{-1} , et deux au domaine supérieur, c'est à dire aux vitesses de piston auxquelles des déviations de fissure sont constatées, soit 7ms^{-1} . Pour chaque domaine, un essai amorti par l'utilisation d'un amortisseur dans l'unité de transmission, ainsi qu'un autre sans amortisseur sont réalisés.

Les conditions expérimentales, leurs dénominations, les temps de rupture, t_f , les vitesses d'ouverture à la rupture, \dot{u}_f , et les taux chargement à la rupture, \dot{K}_f , sont résumés au Tableau 5-1:

| Dénomination | Vitesse de vérin, amortissement | t_f (μ s) | u_f (m/s) | K_I (GPa $\sqrt{ms^{-1}}$) |
|--------------|---------------------------------|------------------|-------------|-------------------------------|
| 1mD | 1 m/s avec amortisseur | 420 | 0.9 | 7 |
| 1mU | 1 m/s sans amortisseur | 135 | 1.7 | 17 |
| 7mD | 7 m/s avec amortisseur | ~170 | 3 | 32 |
| 7mU | 7 m/s sans amortisseur | 25-30 | 9 | 65 |

Tableau 5-1: Conditions expérimentales

Pour chacune des conditions, le déplacement de la goupille mobile, u , et la force de réaction à la goupille stationnaire, F , ont été mesurés respectivement par le capteur à fibre optique et la cellule de force. En parallèle, la répartition des isochromes a été filmée par la caméra à haute vitesse, à intervalle de 5 μ s.

La mesure expérimentale du déplacement, et le déplacement imposé pour la simulation numérique sont représentés à la Figure 5-2 pour les quatre conditions expérimentales. L'effet de l'amortissement sur l'accélération du spécimen est clairement visible sur les courbes $u=f(t)$. Bien que les vitesses de piston soient identiques, à 1ms⁻¹ pour les conditions 1mU et 1mD, et 7ms⁻¹ pour les conditions 7mU et 7mD, les vitesses et les accélérations réelles du spécimen sont radicalement différentes.

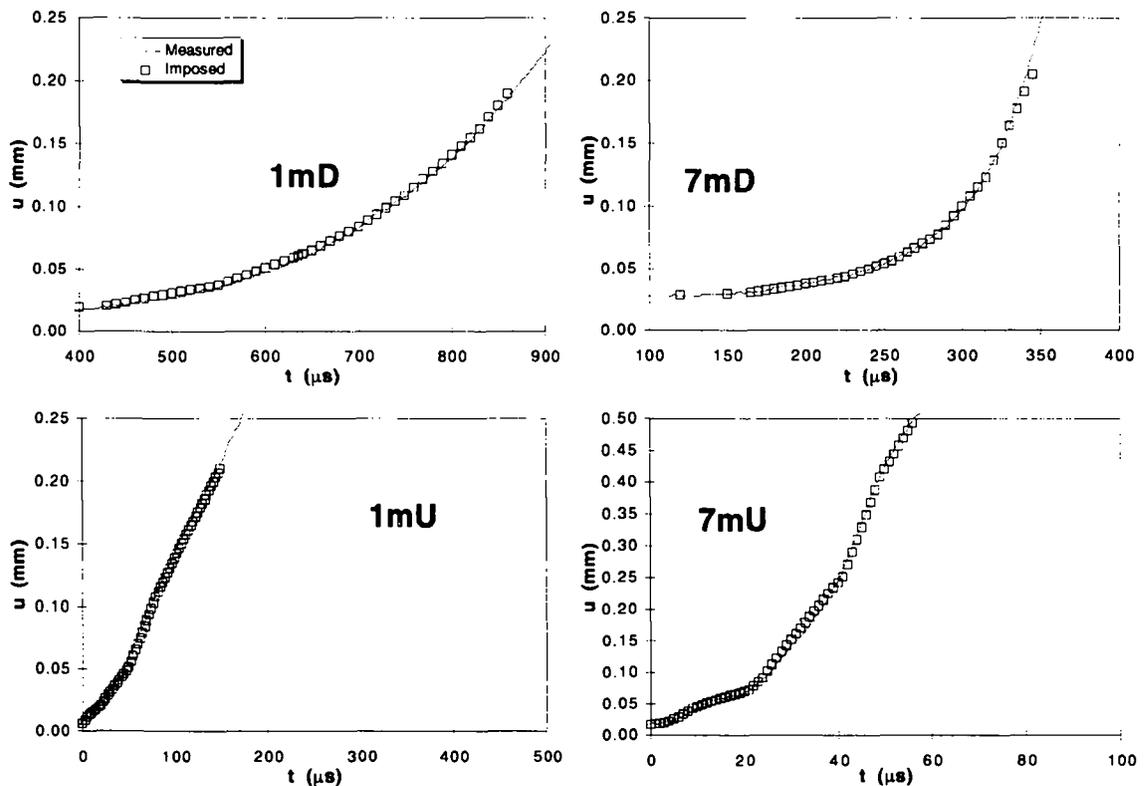


Figure 5-2: Déplacement, u , en fonction du temps, t , pour les quatre conditions expérimentales étudiées (lignes: mesures optiques, carrés: déplacement imposé pour le calcul numérique).

L'accélération des essais amortis (1mD et 7mD) est quasiment constante tout au long de l'essai. Pour un matériau aussi fragile, le temps à la rupture est relativement court et la rupture

du spécimen peut avoir lieu avant que la vitesse de la barre d'entrée n'ait atteint celle du vérin (*c.f.* Chapitre 4).

Au contraire, les conditions non amorties (1mU et 7mU) prodiguent une brusque accélération, et l'impulsion initiale fait rapidement croître la vitesse d'ouverture jusqu'à une vitesse supérieure à celle du vérin. Pour ces deux vitesses, les déplacements représentés sur les diagrammes inférieurs de la Figure 5-2 montrent la partie initiale du déplacement de la barre d'entrée, à l'instant du premier contact et juste après. Le deuxième contact ne figure pas sur le diagramme, car celui-ci a lieu à des temps compris entre 1 et 2 ms (voir la Figure 4-10), donc bien après la rupture de l'éprouvette.

Les courbes de la Figure 5-2 ont servi comme données initiales pour le calcul numérique des contraintes par les éléments finis.

5.4. SIMULATIONS NUMÉRIQUES PAR LES ÉLÉMENTS FINIS.

Bien que l'on se soit surtout intéressé au calcul en dynamique transitoire du comportement de la structure représentée par le spécimen, dans un premier temps, la validité du maillage a été contrôlée par le calcul statique. La comparaison avec la solution analytique de la L.E.F.M. permet de s'assurer de l'adéquation du maillage.

Les résultats des calculs de l'état des contraintes transitoires pendant la phase de chargement ont servi à simuler des images photoélastiques. Ces dernières ont été confrontées aux images expérimentales pour la validation de la procédure de calcul utilisée.

5.4.1. Généralités.

Nous avons vu au paragraphe précédent que les effets d'inertie ne peuvent être négligés en raison des temps de chargement très courts. Dans les essais non amortis, l'impulsion initiale génère des ondes élastiques se déplaçant dans le système d'essai. Leurs longueurs d'ondes sont d'un ordre de grandeur en dessous de la dimension des échantillons. Ainsi, pour éviter les effets d'échelle, les éléments discrets de la structure doivent être aussi un ordre de grandeur en dessous de la longueur des ondes.

Pour que le problème puisse être traité par des capacités de calcul courantes, le modèle est choisi bi-dimensionnel. L'analyse de l'état de contrainte en front de fissure est menée en déformation plane, puisque c'est l'état de contrainte qui prédomine au voisinage du front de fissure dans une éprouvette de ces dimensions.

Les équations constitutives utilisées par le code de calcul sont exprimées par:

$$\frac{E}{2(1+\nu)} \frac{\partial}{\partial x_i} \left[\sum_{j=1}^3 \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} + \frac{2\nu \partial u_j}{(1-2\nu)\partial x_j} \right) \right] - \rho \frac{\partial^2 u_i}{\partial t^2} = 0 \quad (5-2)$$

où $\frac{\partial u_i}{\partial x_3} = 0$ en déformation plane.

avec: E , le module d'élasticité,
 ν , le coefficient de Poisson
 δ , la densité du matériau

u_i , le tenseur des déplacements

Les facteurs d'intensité des contraintes en mode I, K_I , et en mode II, K_{II} , sont calculés à partir des déplacements en tête de fissure:

$$K_I = \hat{u}_1 \frac{E}{8(1+\nu)(1-\nu)} \frac{\sqrt{2\pi}}{r} \quad \text{et} \quad K_{II} = \hat{u}_2 \frac{E}{8(1+\nu)(1-\nu)} \frac{\sqrt{2\pi}}{r} \quad (5-3)$$

où \hat{u}_1 et \hat{u}_2 sont les discontinuités de déplacements respectivement normales et tangentielles, et, r , est la distance au front de fissure.

Selon Irwin, le rayon de la zone plastique, r_p , vaut $\frac{1}{2\pi} \frac{K_{IC}^2}{\sigma_y^2} < 50 \mu\text{m}$ pour l'Araldite B, en prenant comme seuil plastique du matériau, $\sigma_y > 83 \text{ MPa}$ (qui croît avec la vitesse). La zone plastique est donc très petite, et on ne prend en compte dans le calcul ni zone de déformation particulière, ni zone plastique. Pour un matériau aussi fragile, ces zones sont tellement petites qu'on peut considérer que la mécanique linéaire de la rupture (L.E.F.M.) décrit correctement les propriétés de rupture du matériau. Par ailleurs, ses propriétés peuvent être représentées par K_{IC} en fonction $K_I = \frac{\partial K_I}{\partial t}$, et sont pratiquement constantes dans ce domaine de vitesse.

5.4.2. Modèle d'éléments finis.

Les calculs numériques ont été réalisés à l'aide du logiciel d'éléments finis ABAQUS™. Pour les intégrations, il utilise la procédure de HILBER-HUGUES, avec un amortissement numérique de -0.05 [6, 7]. Les pas de temps ont été choisis suffisamment petits pour que leur influence soit négligeable sur les résultats.

Le demi-maillage utilisé est représenté à la Figure 5-3a. Pour la quasi-totalité de la structure, le maillage est constitué d'éléments à quatre noeuds isoparamétriques de taille carrée (0.25x0.25 mm²). Une ligne d'éléments rectangulaires, d'un rapport d'aspect de 12.5 a été placée sur l'axe de symétrie du spécimen (Figure 5-3a). Elle permet d'ajuster la longueur initiale de la fissure en enlevant des éléments du maillage. Au total, le maillage contient 9112 noeuds. Les caractéristiques du matériau sont les mêmes pour tous les noeuds, elles sont reportées au Tableau 5-2.

| Module d'élasticité | Coefficient de Poisson | Densité | Constante photoélastique |
|----------------------------|------------------------|----------------------------------|-------------------------------|
| $E = 3.66 \text{ GPa}$ [8] | $\nu = 0.38$ [5] | $\rho = 1190 \text{ kg/m}^3$ [5] | $C = 10.5 \text{ MPa mm}$ [5] |

Tableau 5-2: Grandeurs physiques de l'Araldite B utilisées pour la simulation numérique

Il est important de noter que la zone d'intérêt principal est celle qui entoure le front de fissure, et qu'elle est relativement éloignée des goupilles. Ainsi, l'influence du champ local de répartition des contraintes autour des goupilles sur l'état des contraintes au front de fissure est négligée.

Comme on ne connaît pas les conditions exactes de contact entre les goupilles et l'éprouvette, par l'intermédiaire des trous de fixation, les trous sont maillés comme le reste du spécimen (Figure 5-3a). Les conditions de déplacement sont imposées sur trois noeuds consécutifs situés au point de tangence du haut et du bas des goupilles, placées respectivement du côté haut et du côté bas de l'éprouvette. Un déplacement nul est imposé aux trois noeuds supérieurs, et les

déplacements représentés par les points des différentes conditions de chargement de la Figure 5-2 sont imposés aux trois noeuds inférieurs.

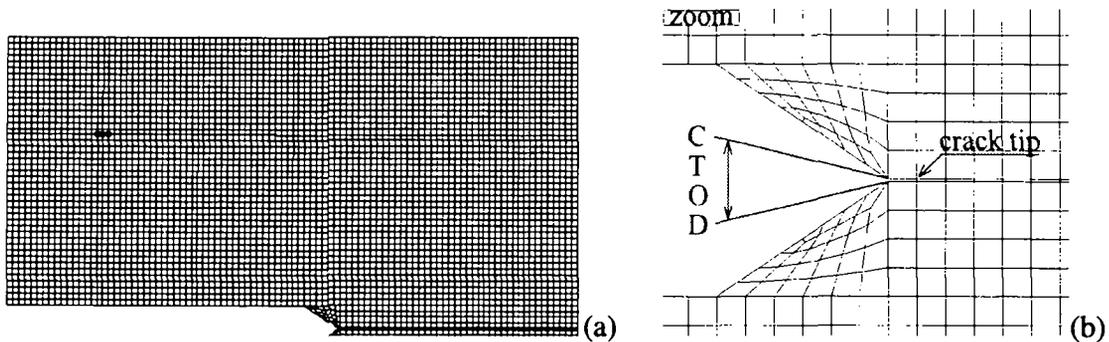


Figure 5-3: a) Maillage utilisé pour la simulation par éléments finis (symétrique). Les noeuds où les déplacements ont été imposés sont représentés par des points. b) Un grossissement du front de fissure montre les noeuds utilisés pour l'analyse des déplacements au front de fissure (CTOD)

Etant donné que les zones du modèle entourant les goupilles sont masquées par les fixations qui ne sont pas transparentes, les franges photoélastiques qui rendraient compte de l'état de contrainte local (et ainsi le détail du contact goupille-modèle) ne sont pas observables.

La masse de la barre d'entrée qui pend sous l'éprouvette représente une charge statique de ~ 3.5 N, et la force dissipée pour la compression de l'air dans l'unité de transmission (qui est variable entre 1.5 et 18 N selon la vitesse) pendant la phase d'accélération sont prises en compte dans les calculs. Ces forces ont été appliquées au premier pas d'intégration d'une durée d'une milliseconde. Le résultat de cette première intégration est considéré comme la condition initiale ($t=0$) dans l'expression de nos résultats.

Les déplacements aux noeuds sont utilisés pour la simulation numérique des figures photoélastiques. Une fois les calculs numériques effectués, les résultats des déplacements aux quatre noeuds des éléments sont interpolés par les fonctions isoparamétriques pour en déduire les déformations et les contraintes.

Les franges isochromes sont calculées par une routine développée par Christophe Fond. L'intensité, I , de la figure formant les isochromes dépend du cisaillement maximum, elle est donnée par la relation:

$$\sqrt{I} = \cos(\pi(\sigma_1 - \sigma_2)B/C) \quad (5-4)$$

où I est l'intensité lumineuse, σ_1 et σ_2 sont les contraintes maximales, B l'épaisseur du modèle, et C la constante photoélastique.

5.4.3. Validations.

Nous sommes conscient que l'hypothèse de déformation plane ne s'applique pas aux zones bordant les plans du modèle. Dans ces zones, le champ de contrainte est mieux décrit par une hypothèse de contrainte plane. Afin d'estimer l'influence du type de simulation (déformation ou contrainte plane) sur les résultats, nous avons réalisé des simulations statiques en condition de contrainte plane et de déformation plane du modèle 2D. Les résultats sont visibles à la Figure 5-4a, qui montre la répartition des isochromes résultant d'une simulation statique à $K_f=1.5$

MPa√m. La moitié supérieure de la figure est le résultat d'une simulation numérique en déformation plane, et la moitié inférieure en contrainte plane. La répartition des contraintes de cisaillement est la même, et quantitativement la différence sur le résultat final est petite, elle n'excède pas 1/2 ordre de frange.

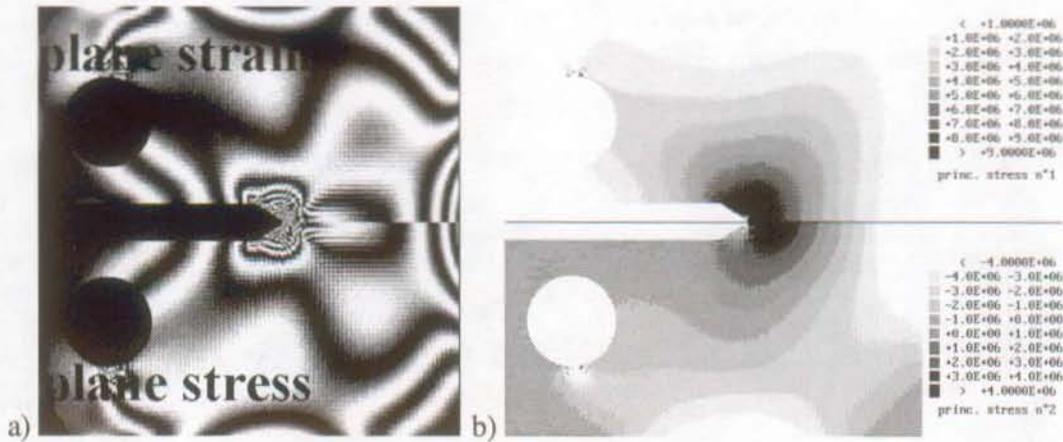


Figure 5-4: a) Image simulée représentant les isochromes dans une éprouvette sollicitée statiquement à $K_{IC}=1.5 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$. Moitié supérieure: déformation plane. Moitié inférieure: contrainte plane. b) Simulation en déformation plane. Moitié supérieure: contraintes principales σ_1 . Moitié inférieure: contraintes principales σ_2 .

Comme l'épaisseur du modèle, B , est de 6 mm, la déformation plane est largement prédominante, et c'est dans ce mode que les calculs sont effectués. La Figure 5-4b montre la répartition statique des contraintes principales à $K_{IC}=1.5 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$. La moitié supérieure montre la répartition des contraintes σ_1 , et la moitié inférieure σ_2 . Le facteur d'intensité des contraintes obtenu par l'équation (5-3) est seulement inférieur de 3% à celui calculé par la L.E.F.M. à partir de la force pour cette géométrie (relation 5-5).

5.5.RESULTATS.

Dans un premier temps, les figures photoélastiques obtenues expérimentalement et simulées seront comparées. Une bonne corrélation temporelle et spatiale doit être obtenue pour valider la procédure de calcul numérique par les éléments finis.

Dans un deuxième temps, les paramètres de la L.E.F.M. basés sur les mesures expérimentales (force, déplacement) seront comparés avec ceux résultant du calcul numérique.

5.5.1.Comparaison entre les figures photoélastiques expérimentales et numériques.

La comparaison entre les figures expérimentales et celles obtenues par le calcul est effectuée par pas de $5\mu\text{s}$. Pour chacune des conditions expérimentales, une sélection des images photographiées et simulées est présentée et discutée. Le temps reporté entre les images réelles (parties supérieures des figures) et calculées (parties inférieures) est le temps écoulé entre le premier incrément de déplacement imposé et celui auquel les images se réfèrent.

La similitude entre les images réelles et simulées est jugée satisfaisante, compte tenu qu'une tolérance de $\pm 1/2$ ordre est acceptable dans les franges.

La distribution des contraintes de cisaillement est discutée ci-dessous pour chacune des conditions de sollicitation du Tableau 5-1, dont les déplacements sont observables à la Figure 5-2:

1mD: En raison de la faible accélération et du temps à la rupture relativement long, propres à cette condition d'essai (vitesse de vérin de 1ms^{-1}), l'état de contrainte prend une forme quasi-statique pendant toute la durée de l'essai (voir la Figure 5-5). La rupture instable est initiée et propagée dans le plan de symétrie de l'éprouvette.

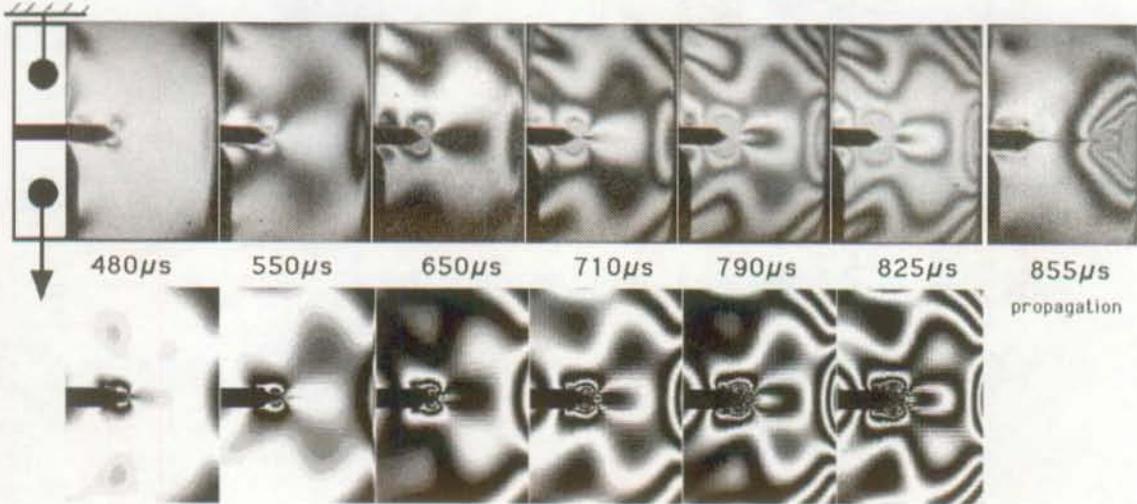


Figure 5-5: Distributions expérimentales (en haut) et simulées (en bas) des isochromes pour une vitesse nominale d'essai de 1ms^{-1} , l'accélération est réduite par l'utilisation d'un amortisseur (1mD).

1mU: En dépit de la vitesse raisonnable du vérin (1ms^{-1}), une brusque accélération est engendrée par la grande rigidité de contact dans l'unité de transmission. Elle produit une légère asymétrie de la distribution des contraintes dans la phase initiale de l'essai (voir la Figure 5-6). Toutefois pour ce matériau et cette configuration expérimentale, la répartition des contraintes est symétrique lorsque la rupture intervient.

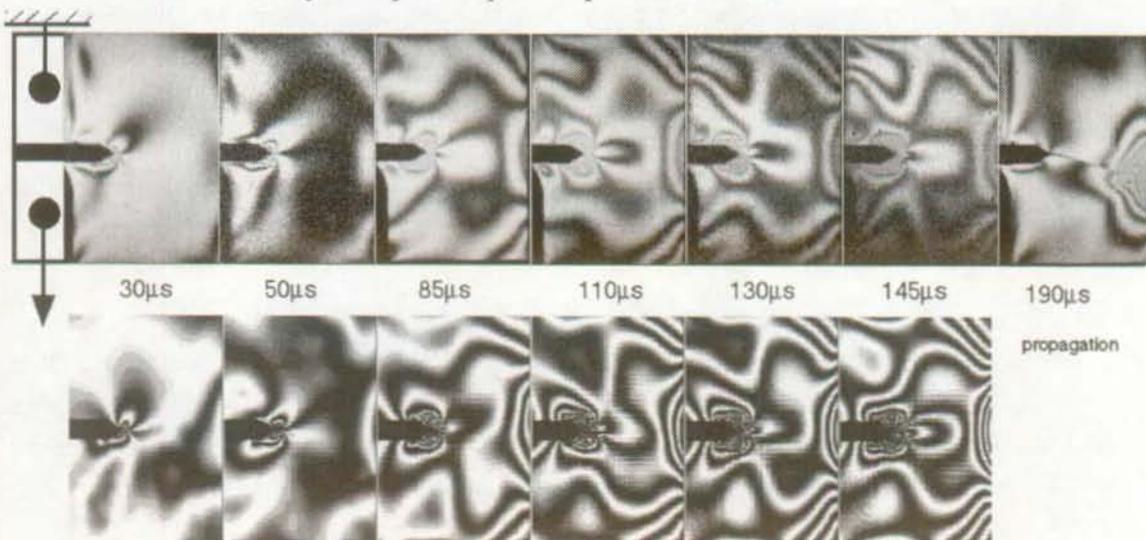


Figure 5-6: Distributions expérimentales (en haut) et simulées (en bas) des isochromes pour une vitesse nominale d'essai de 1ms^{-1} , le contact n'est pas amorti (1mU).

Le début de la propagation se produit dans le plan de symétrie de la géométrie, ce qui montre que le champ de contrainte est également réparti de part et d'autre du front de fissure, au moment du démarrage de la rupture. En cours de propagation, la fissure dévie vers la partie inférieure du spécimen, celle qui est reliée à la barre d'entrée. La cause de cette déviation résulte probablement de la contrainte supplémentaire induite par le déplacement de barre d'entrée en cours de propagation de la rupture.

7mD: A une vitesse du piston aussi élevée que 7ms^{-1} , la répartition des contraintes est quelque peu asymétrique dans le modèle, comme le montre la Figure 5-7. Néanmoins, comme nous le verrons plus bas, l'utilisation d'un contact amorti dans l'unité de transmission nous permet de l'assimiler à un état de contrainte quasi-statique. En comparaison avec la condition 1mU, le temps à la rupture est augmenté, mais la vitesse de chargement ultime est également plus élevée.

La rupture instable a lieu également dans des conditions similaires à 1mU: les premiers millimètres de propagation se produisent dans le plan médian. Ensuite, et pour les mêmes raisons, elle dévie en direction de la partie mobile du spécimen.

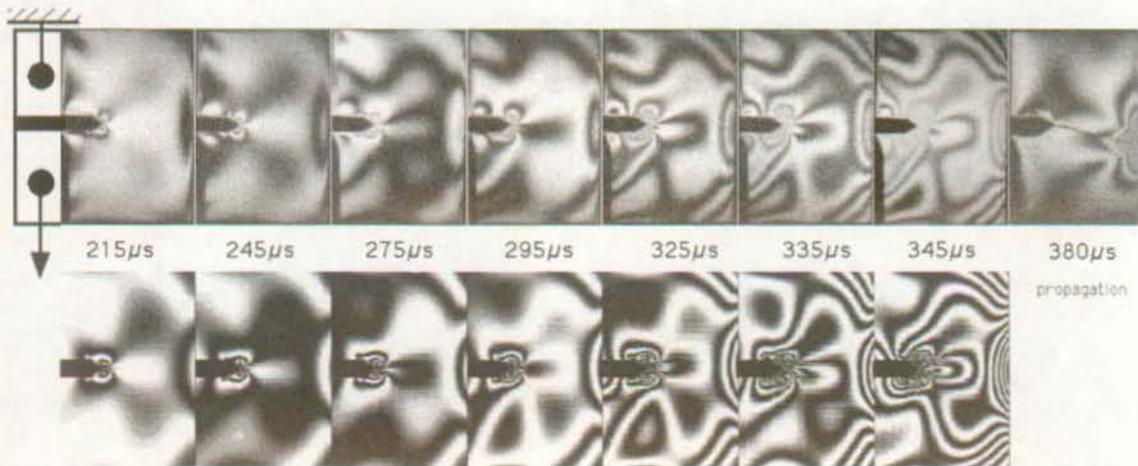


Figure 5-7: Distributions expérimentales (en haut) et simulées (en bas) des isochromes pour une vitesse nominale d'essai de 7ms^{-1} , l'accélération est réduite par l'utilisation d'un amortisseur (7mD).

7mU: La vitesse de vérin de 7ms^{-1} , sans amortisseur est la plus sévère des quatre conditions étudiées. La durée de l'essai est extrêmement courte ($<30\mu\text{s}$). Comme on le voit sur la Figure 5-8, la distribution de la contrainte dans le modèle traduit une situation dynamique (fortement dépendante du temps). La contrainte dans le spécimen est très asymétrique, et les ondes de cisaillement n'ont pratiquement pas atteint la goupille stationnaire (et donc la cellule de force) à l'instant de la rupture. Les isochromes entourant le front de la pré-fissure suggèrent une distribution complexe des contraintes locales.

La rupture est amorcée selon un angle par rapport au plan médian du spécimen, et se propage dans la direction des contraintes les plus élevées. Nous reviendrons plus longuement sur ce phénomène.

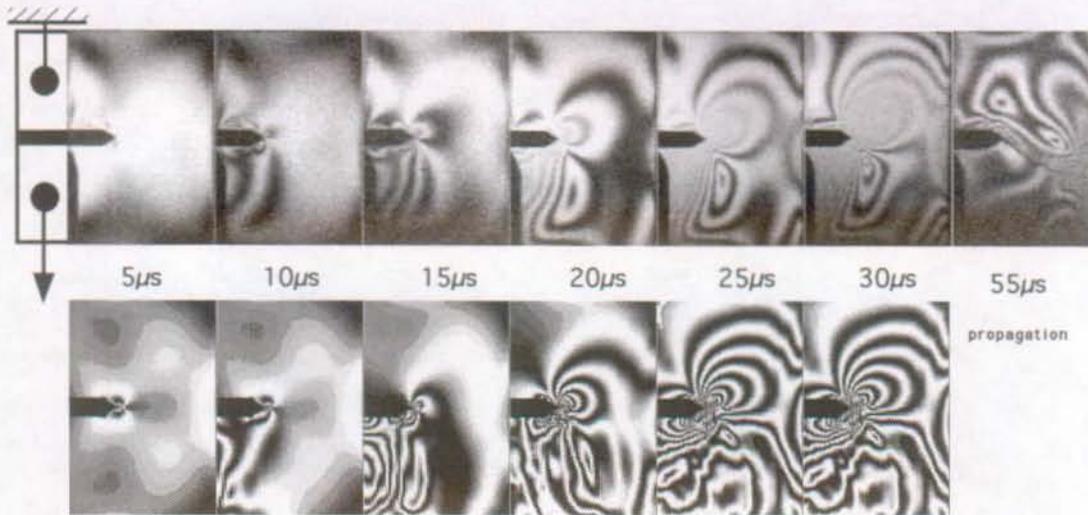


Figure 5-8: Distributions expérimentales (en haut) et simulées (en bas) des isochromes pour une vitesse nominale d'essai de 7ms^{-1} , le contact n'est pas amorti (7mU).

Considérant les répartitions des contraintes de cisaillement observées ci-dessus, il est évident que l'utilisation d'un amortissement important augmente la durée de l'essai. Le temps à la rupture est beaucoup plus long dans les tests à accélération réduite par l'amortissement. Toutefois, même si l'effet de l'histoire du chargement dépend de la nature du matériau testé, il convient de noter que l'extension de la durée de l'essai par l'introduction de l'amortissement touche principalement le début du chargement. Dans cette phase de l'essai, les contraintes à la tête de la fissure sont faibles, et on peut émettre l'hypothèse qu'elles influencent peu les mécanismes de développement de la zone plastique.

5.5.2. Comparaison entre les paramètres de la mécanique de la rupture mesurés et simulés.

Comme la comparaison ci-dessus des figures photoélastiques réelles et simulées nous permet d'avancer que la corrélation spatiale et temporelle est acceptable, elle nous autorise à considérer la procédure de calcul par les éléments finis comme valable. On peut maintenant comparer les mesures expérimentales avec les paramètres obtenus par le calcul numérique.

5.5.2.a) La force.

Les forces mesurées par la cellule piézo à la goupille supérieure, et celles calculées numériquement à l'emplacement des noeuds stationnaires sont représentées à la Figure 5-9 pour les quatre conditions étudiées. Les forces mesurées ont été décalées sur l'axe du temps pour les amener en coïncidence avec celles calculées. Cette procédure est justifiée par l'éloignement physique de la cellule de force dans le montage expérimental, produisant un délai entre l'occurrence d'un phénomène dans l'éprouvette, et le temps auquel il est perçu par la cellule.

L'utilisation d'une approche dynamique par le calcul en éléments finis provoque l'oscillation de la force calculée pour les quatre conditions étudiées. La raison de ces oscillations sera discutée plus loin, dans la section consacrée à l'analyse modale. Il convient toutefois de relever

que l'utilisation des équations d'équilibre dynamique pour la simulation de cas quasi-statique tend à rendre oscillatoire le comportement simulé.

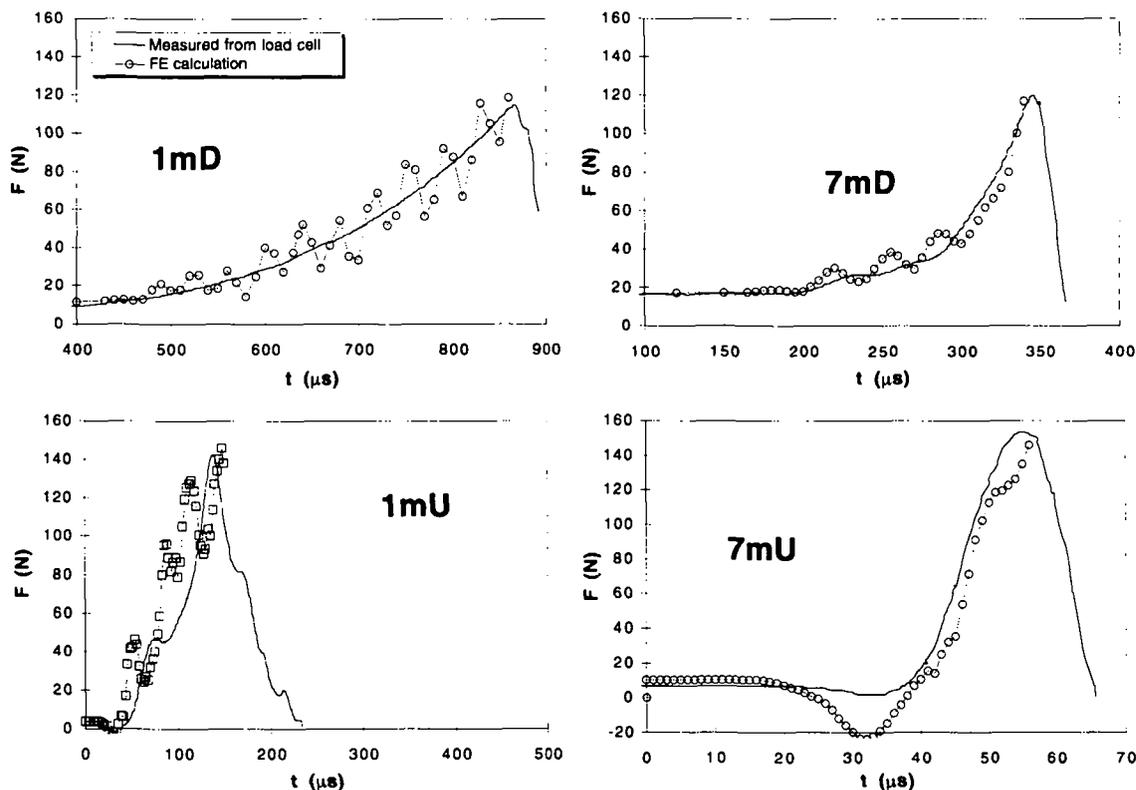


Figure 5-9: Force, F , en fonction du temps, t , pour les quatre conditions de chargement étudiées. Les force mesurées par la cellule de force, et celles calculées par les éléments finis sont représentées pour la comparaison.

Compte tenu de cette remarque, on constate que pour les conditions d'essai amorties figurant dans la partie supérieure de la Figure 5-9 (1mD et 7mD), la valeur moyenne autour de laquelle la force oscille correspond bien aux mesures expérimentales.

A 1 ms^{-1} , contact non amorti (1mU), les forces mesurées et les forces calculées sont oscillantes toutes les deux. Leurs périodes d'oscillation sont différentes car, alors que le calcul traduit l'oscillation du spécimen seul, la mesure rend compte des oscillations mécaniques de la totalité du système mécanique que représentent le spécimen, les fixations et la cellule de force.

A la vitesse de 7 ms^{-1} , sans amortissement (7mU), la force mesurée et la force calculée correspondent relativement bien en dépit de l'échelle de temps très réduite. En réalité, la force est très oscillante (seulement la première demi-période est représentée à la Figure 5-9). Selon les images photoélastiques de l'essai (Figure 5-8), le temps à la rupture ($< 30 \mu\text{s}$) est trop court pour permettre l'établissement d'un équilibre des contraintes avant la rupture. Ainsi, l'impulsion de force mesurée ne traduit que les effets d'inertie du système. Les flancs de montée et de descente de l'impulsion de force ont la même pente au signe près, et confirment par là que le système est en résonance. Dans ces conditions, la force mesurée ne peut pas être utilisée pour une analyse par la mécanique de la rupture.

5.5.2.b) *Le facteur d'intensité des contraintes.*

Lors des analyses statiques par la L.E.F.M, la mesure du facteur d'intensité des contraintes, K_I , par la force mesurée, F , est calculé par la relation:

$$K_I = f\left(\frac{a}{W}\right) \frac{F}{BW^{1/2}} \quad (5-5)$$

où f est un facteur de calibration qui dépend de la géométrie, W et B les dimensions de l'éprouvette.

Par la relation (5-5) et la force instantanée, on peut obtenir pour tous les cas étudiés le profil de K_I expérimental par l'analyse statique. Les valeurs de K_I et K_{II} sont obtenues en simulation numérique par la relation (5-3). La mixité des modes I et II, lorsqu'ils coexistent est habituellement représenté par le rapport K_{II}/K_I . La Figure 5-10 montre les K_I instantanés expérimentaux et ceux calculés numériquement pour les conditions étudiées. On a également reporté sur la figure les valeurs instantanées absolues de la mixité de mode, $|K_{II}/K_I|$. Au vu des remarques faites précédemment concernant la mesure de la force à 7ms^{-1} non-amorti, nous n'avons pas jugé nécessaire de porter les valeurs expérimentales de K_I pour la condition 7mD. Notons que pour cette condition d'essai, nous avons poursuivi les calculs au delà du temps de rupture expérimental.

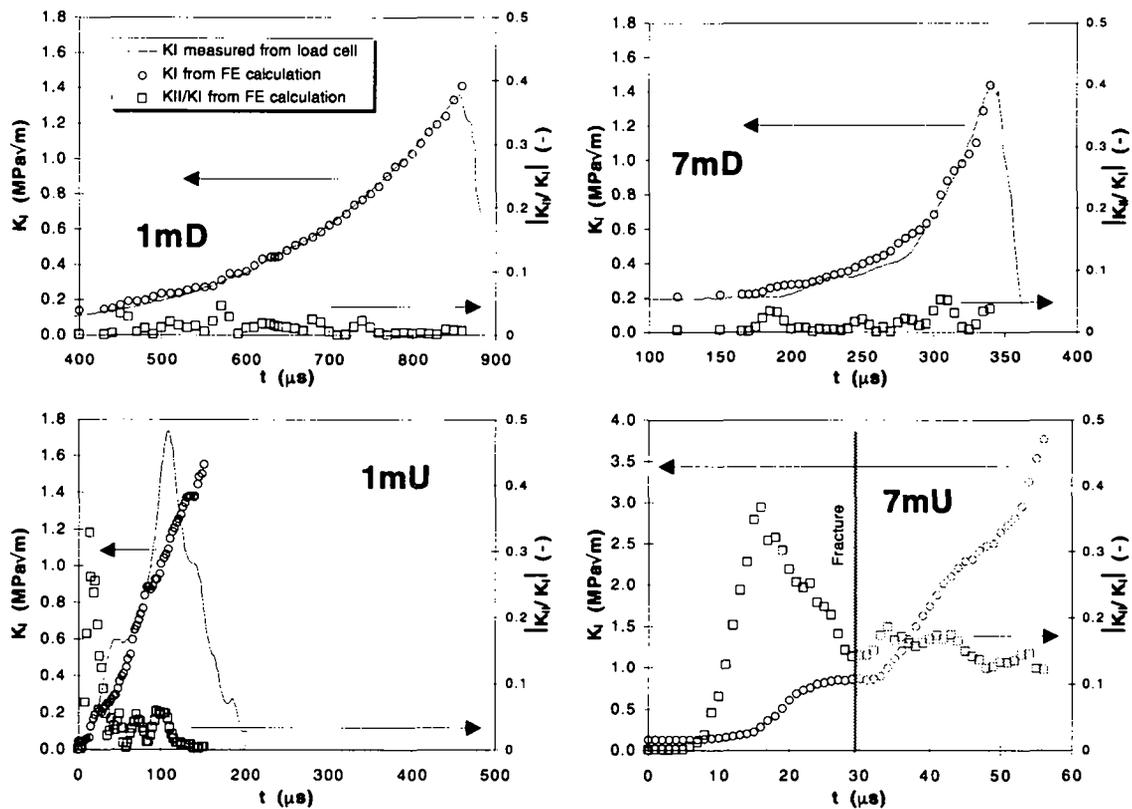


Figure 5-10: Comparaison entre les K_I mesurés par les forces mesurées en appliquant l'hypothèse statique et calculés par les éléments finis, en fonction du temps, t , pour les quatre conditions d'essai. Le rapport de mixité du mode, $|K_{II}/K_I|$, calculé par les éléments finis est aussi représenté.

Il est important de relever que pour les deux conditions amorties (1mD et 7mD), les K_I mesurés expérimentalement et ceux calculés concordent relativement précisément. On peut en conclure que:

- i) la force mesurée est bien représentative des forces extérieures appliquées à l'éprouvette,
- ii) l'hypothèse d'un état de contrainte quasi-statique est vérifiée,
- iii) le calcul de K_I , recourant à la calibration de complaisance statique (f dans l'équation (5-5)) est valable.

Si l'on fait la même comparaison pour les données de 1ms^{-1} non-amorti (1mU), on voit que la correspondance des K_I expérimentaux et calculés est mauvaise. Leurs oscillations sont hors phase, et de plus, le K_I mesuré intègre les oscillations du système au niveau de la cellule de force, qui sont plus importantes que celles réellement présentes en tête de fissure. Cette constatation avait été faite expérimentalement également par Kalthoff *et col.* [9]. De plus, la détection précise de K_{IC} sur une telle mesure est impossible.

On peut donc en conclure que pour les matériaux fragiles, les mesures à 1ms^{-1} sans le recours à un amortisseur conduisent à des erreurs importantes pour l'évaluation de K_{IC} . Dans ces conditions, l'utilisation de vitesses supérieures est hors de question.

L'importante mixité du mode de sollicitation, $|K_{II}/K_I|$, calculée pour la phase initiale des essais non-amortis est en accord avec les observations en photoélasticité.

5.5.3. Analyse modale.

La nature oscillante des forces calculées numériquement peut résulter soit de la propagation et des réflexions des ondes dans le matériau, soit des oscillations de la structure elle-même. Comme l'utilisation d'ABAQUS™ nous donne facilement accès à l'analyse modale de la structure, nous avons utilisé cette possibilité pour simuler le comportement de la géométrie pour deux longueurs de fissure distinctes. Les fréquences des huit premiers modes oscillatoires sont portées dans le Tableau 5-3 pour ces deux longueurs de fissure relatives, a/W .

On constate que le premier mode (visible à la Figure 5-11a) provoque un grand déplacement de la structure, sans qu'elle ne se déforme. Sa fréquence propre est indépendante de la longueur de la fissure. En revenant aux forces mesurées pour les conditions expérimentales non-amorties de la Figure 5-9 (1mU et 7mU), on constate que les forces mesurées, comme les forces calculées commencent par diminuer avant de croître. Cette particularité s'explique par l'existence du premier mode oscillatoire, de basse fréquence qui consiste en une rotation du spécimen autour de son centre de masse lorsqu'il est excité par une accélération élevée. La cause de cette rotation est à chercher dans le désalignement entre la ligne de chargement et le centre de masse du modèle. La situation est particulièrement bien visible pour la condition 7mU, où la durée de l'impulsion de force négative est de $\sim 15 \mu\text{s}$ par le calcul, et de $\sim 20 \mu\text{s}$ expérimentalement. La différence entre les durées expérimentales et numériques du phénomène s'explique par le fait que la fréquence propre du système expérimental est différente de celle du système théorique; en effet, le système simulé numériquement n'intègre pas la masse du capteurs, ni des fixations.

Les oscillations mesurées expérimentalement sont donc reliées à la masse et la rigidité de l'ensemble du système, et probablement aussi à la qualité du contact établi par l'intermédiaire des goupilles. En considérant leur fréquence, les oscillations de la force calculée, visibles à la

Figure 5-9, peuvent être attribuées au quatrième mode oscillatoire, représenté à la Figure 5-11b. Sa fréquence est de 25.9 kHz pour la longueur de fissure considérée, mais ce mode est le plus affecté par la longueur de la fissure, a/W , (voir leTableau 5-3).

| $a/W = 0.5125$ | | $a / W = 0.7$ | |
|----------------|-----------------|---------------|-----------------|
| Mode | Fréquence (kHz) | Mode | Fréquence (kHz) |
| 1 | 0.421 | 1 | 0.421 |
| 2 | 8.95 | 2 | 8.11 |
| 3 | 16.4 | 3 | 15.8 |
| 4 | 25.9 | 4 | 20.7 |
| 5 | 27.4 | 5 | 27.4 |
| 6 | 29.0 | 6 | 28.4 |
| 7 | 32.2 | 7 | 30.7 |
| 8 | 36.9 | 8 | 36.4 |

Tableau 5-3: Fréquences propres des huit premiers modes oscillatoires obtenus par l'analyse modale numérique, pour deux longueurs de fissure relatives a/W .

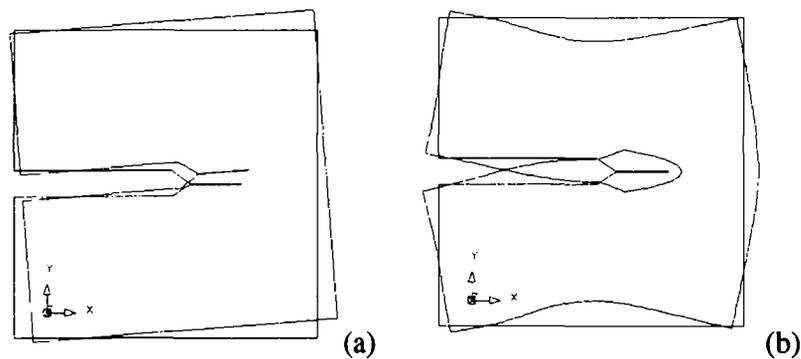


Figure 5-11: Représentation exagérée des premier (a) et quatrième (b) modes propres, obtenus par l'analyse modale

5.6.DISCUSSION.

Les oscillations des forces et des facteurs d'intensité des contraintes obtenues ici par le calcul numérique, doivent être considérées comme la limite supérieure de la manifestation des perturbations dynamiques. En effet, notre simulation prend en compte des contacts parfaitement rigides entre le spécimen et son environnement, un comportement parfaitement élastique du matériau, et aucun facteur dissipatif. En pratique, les causes dissipatives sont nombreuses, même pour un matériau au comportement globalement élastique: contact avec les goupilles, plasticité localisée, dissipation du matériau par frottement interne, ...

Aux temps courts ($<50\mu s$) des conditions non-amorties, les contours des isochromes des Figures 5-6 et 5-8 sont irréguliers en raison des interactions des ondes dans le matériau. En comparant ces images simulées avec les images expérimentales, on remarque que ces effets sont atténués par les sources dissipatives discutées ci-dessus. D'autre part, la longueur des ondes est si petite qu'elles peuvent interférer avec la taille du maillage.

Cela mis à part, la corrélation entre les franges observées et calculées est jugée satisfaisante, compte tenu que la simulation est bi-dimensionnelle en déformation plane, et ne prend pas en compte les effets de bord.

5.6.1. Validité de l'hypothèse quasi-statique pour les essais amortis.

Nous avons vu par l'analyse des contraintes en photoélasticité que dans le cas des essais amortis, c'est un état de contrainte quasi-statique qui prévaut pendant la phase de chargement.

Si les essais amortis se prêtent à une approche par les équations statiques de la L.E.F.M, les grandeurs calculées sont indépendantes des grandeurs expérimentales mesurées. En d'autres termes, la valeur de K_I doit être la même, qu'elle soit basée sur la force, ou le déplacement mesurés.

Nous avons calculé K_I , en fonction du temps, t , à partir de la force mesurée par la cellule, $F(t)$, et du déplacement mesuré optiquement, $u(t)$.

La complaisance adimensionnelle statique sur la ligne de chargement, Z_{LL} , est donnée par la

$$\text{relation [10]: } Z_{LL} = \frac{\Delta B E^*}{F} \quad (5-6)$$

où Δ est le déplacement au point de chargement, dans notre cas, $\Delta = u(t)$.

F , la force,

B l'épaisseur de la plaque,

E^* le module d'élasticité apparent ($E^* = E$ en contrainte plane, et $E^* = E/(1-\nu^2)$ en déformation plane).

En combinant (5-6) avec l'équation du facteur d'intensité des contraintes (5-5) on a:

$$K_I(t) = \frac{f u(t) E^*}{Z_{LL} \sqrt{W}} \quad (5-7)$$

pour la géométrie CT, la complaisance adimensionnelle statique, Z_{LL} , et le facteur de calibration, f , sont donnés dans l'annexe A1.

La Figure 5-12 montre les résultats du calcul statique de $K_I(t)$ à partir de la force, $F(t)$, et du déplacement, $u(t)$. Seules les deux conditions amorties, ainsi que les mesures à 1ms^{-1} non amorti (1mU) ont été représentées. La condition 7mU est négligée car nous avons vu que la mesure de la force n'est pas fiable pour cette condition expérimentale. Les courbes expérimentales ont été décalées dans le temps pour être amenées en coïncidence pour leur comparaison.

Considérant les résultats, on peut affirmer que la calibration de complaisance statique est parfaitement valable dans les conditions amorties. Ces conditions de chargement peuvent donc être assimilées aux conditions statiques, sans réserve. Seule une petite divergence des résultats est visible au pied des courbes de la condition 7mD. Elle résulte probablement d'une petite résonance du système à ce stade de la mise en charge. A 1ms^{-1} sans amortisseur en revanche, la comparaison n'est pas probante. Nous avons ici la preuve de la vibration du système à sa fréquence naturelle.

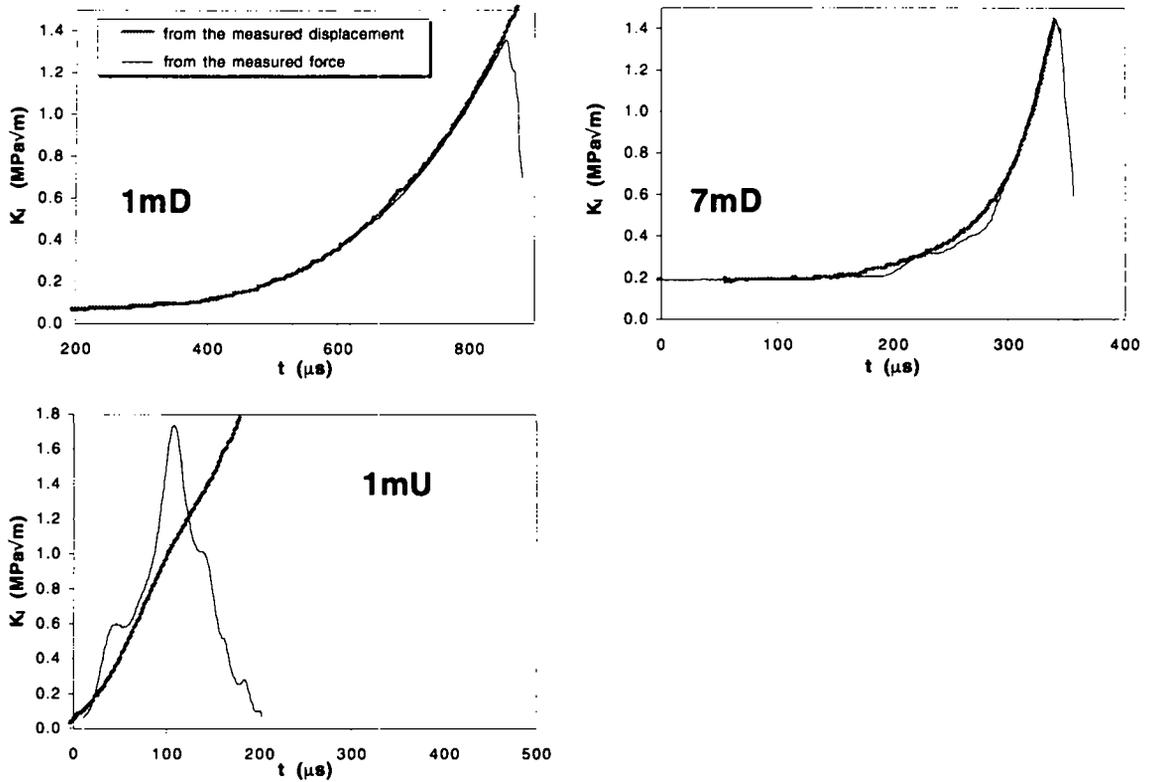


Figure 5-12: Evolution du facteur d'intensité en mode I, K_I , calculé par l'hypothèse statique à partir de la force et du déplacement mesuré, en fonction du temps, t , pour trois des conditions étudiées.

5.6.2. Facteur de correction dynamique.

En suivant une démarche similaire à celles de Böhme [11] et de Williams [12] abordées au §4.1.3.c, on peut calculer un facteur de correction dynamique, k^{dyn} , pour nos essais à 1 ms^{-1} et 7 ms^{-1} non amortis:

$$k^{dyn} = \frac{K_I^{dyn}(t)}{K_I^{qs}(t)} \quad (5-8)$$

avec $K_I^{dyn}(t)$ déterminé par le calcul numérique (relation 5-3),

et $K_I^{qs}(t)$ par la relation (5-7) et le déplacement $u(t)$ imposé pour le calcul numérique.

La Figure 5-13 montre l'évolution de k^{dyn} avec le temps adimensionnel, tC/W , pour les conditions 1mU et 7mU.

Il est intéressant de constater que l'allure de k^{dyn} est tout-à-fait similaire à celle trouvée expérimentalement par Böhme et théoriquement par Williams (voir la Figure 4-7). L'amplitude des oscillations du facteur paraît quelque peu plus importante pour cette géométrie. Toutefois, l'équilibre statique est établi rapidement, ce qui s'explique par la plus grande rigidité de la géométrie CT, comparativement à SENB. Le facteur k^{dyn} calculé ici par les éléments finis représente la limite supérieure de la perturbation dynamique en intensité comme en durée, car nous n'avons pas pris en compte d'amortissement visqueux par le matériau (hypothèse élastique).

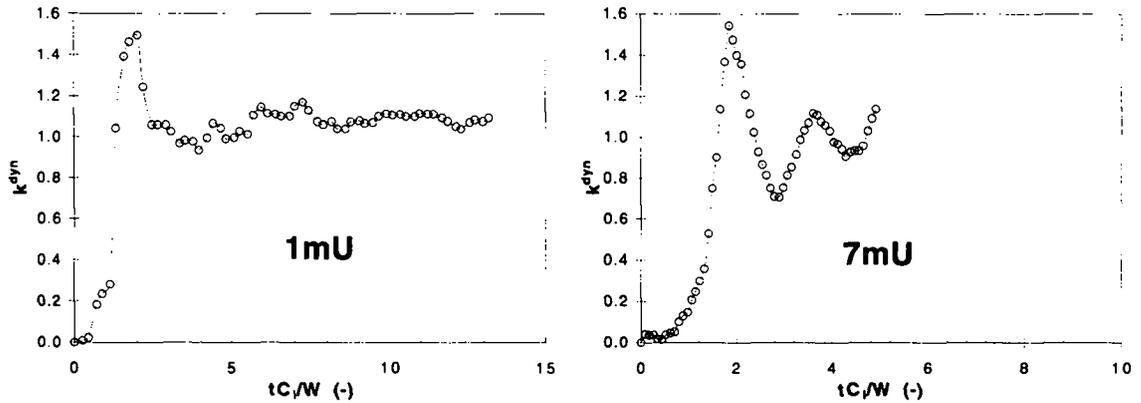


Figure 5-13: Facteurs de correction dynamique, k_{dyn} , exprimés en fonction du temps adimensionnel, tC/W , pour les deux conditions d'essai non amorties.

5.6.3. Mixité de mode.

Les états de contrainte asymétriques observés pour certaines conditions d'essai traduisent la nature dynamique transitoire des conditions de chargement. Dans un tel cas, du mode II local est induit par la distorsion du champ des contraintes. La mixité absolue instantanée de mode, $|K_{II}/K_I|$, est visible sur les courbes de la Figure 5-10. Alors que les conditions amorties n'engendrent jamais plus de 5% de mode II, les essais non-amortis peuvent donner lieu à 35% de mode II dans la phase initiale de l'essai. Si la rupture a lieu avant que la contribution du mode II diminue, la rupture est initiée avec un angle par rapport au plan de symétrie du spécimen. C'est le cas pour les essais à 7ms^{-1} , sans amortisseur (7mU).

Pour les matériaux élastiques au comportement fragile, l'angle de départ de la rupture, θ , peut être lié à la mixité instantanée du mode, K_{II}/K_I , au moment du démarrage de la rupture par la relation [13, 14]:

$$\frac{K_{II}}{K_I} = \frac{\sin \theta}{1 - 3 \cos \theta} \quad (5-9)$$

On peut comparer la mixité du mode calculée numériquement à l'instant de la rupture avec les angles de départ de la rupture, θ , mesurés sur les éprouvettes rompues. Cette comparaison, reportée au Tableau 5-4, ne montre pas une bonne corrélation entre les angles calculés théoriquement par la relation (5-9) et les angles mesurés. Il faut toutefois admettre que le rapport $|K_{II}/K_I|$ évolue très rapidement en cours d'essai, comme le montre la Figure 5-10. Ainsi, une petite erreur sur le temps de rupture peut engendrer une imprécision importante sur l'estimation de l'angle calculé au départ de la fissure. Comme la précision temporelle est de $5\mu\text{s}$ (intervalle entre deux images de la camera rapide), une telle imprécision n'est pas choquante.

On remarque sur la Figure 5-10 l'importante mixité des modes au début du chargement pour les deux conditions non-amorties (1mU et 7mU). L'angle d'initiation de la rupture, θ , dépend donc singulièrement du temps à la rupture. Plus le temps à la rupture est court, et plus l'angle de déviation est élevé en raison de la présence de mode II.

| Condition d'essai | Angle de départ de la rupture (degrés) | Angle calculé (eq. 5-9) (degrés) | $ K_I/K_I $ à l'initiation (calc. num.) | $ K_I/K_I $ maximum pendant l'essai |
|-------------------|--|----------------------------------|---|-------------------------------------|
| 1mD | ≈ 0 | -0.78 | 0.0068 | 0.0045 |
| 1mU | ≈ -7.5 | -0.49 | 0.004 | 0.327 |
| 7mD | ≈ -3.5 | -2.6 | 0.023 | 0.053 |
| 7mU | ≈ -35 | -15.8 | 0.144 | 0.36 |

Tableau 5-4: Angles mesurés et calculés à l'initiation de la rupture.

Hormis pour la condition 1mD où la fissure reste dans le plan médian, l'angle θ augmente après environ 1mm de propagation. Il semble donc que la mixité des modes en tête de la fissure augmente pendant la propagation. Nous pensons que ce phénomène peut résulter de deux causes: i) du déplacement supplémentaire imposé par la barre d'entrée en cours de propagation de la rupture, ii) de la différence de rigidité des fixations supérieures et inférieures qui occasionneraient des déplacements élastiques inégaux de chaque côté du spécimen.

5.6.4. Effets de l'accélération sur la sévérité des tests de rupture.

A ce stade de la discussion, l'intérêt de la technique d'essai amortie proposée est démontrée. Toutefois, un aspect important de la réflexion ne doit pas être éludé: c'est celui de la sévérité des essais proposés.

L'intérêt des essais de choc des polymères repose sur la mise à l'épreuve des matériaux à des vitesses de chargement élevées, allouant par là extrêmement peu de temps au matériau pour activer des mécanismes de déformation viscoplastiques, lui permettant d'accommoder les contraintes auxquelles il est soumis. Nous avons vu que la technique amortie augmente précisément le temps à la rupture, comparativement aux essais non amortis.

La question est de savoir quels paramètres caractérisent la sévérité des essais de choc destinés à la mesure de la ténacité. Habituellement lorsqu'il s'agit de propriétés mécaniques, les équations constitutives ou les loi de comportement utilisent $\dot{\epsilon}$ comme variable, qui exprime la vitesse de déformation. Si $\dot{\epsilon}$ est facile à déterminer en traction à partir de la vitesse de sollicitation, cela n'est pas le cas pour les essais de rupture, en raison de la variation des déformations dans l'échantillon. Il existe notamment un fort gradient local des vitesses de déformation en tête de fissure. En général, la vitesse d'essai est le paramètre le plus utilisé pour caractériser la sévérité du test, mais il ne nous apparaît pas comme le plus pertinent. En effet, pour une vitesse de déplacement imposée sur la ligne de chargement donnée, les vitesses de déformation au front de fissure dépendent de la taille caractéristique du spécimen, W , et de la longueur de la fissure, a . Ainsi, les résultats de spécimens de tailles, ou de longueurs de fissure différentes ne pourraient en toute rigueur pas être comparés entre eux, même si la vitesse d'essai qui leur a été imposée est la même. Dans la pratique, les différences qui en résultent sont presque toujours négligeables lorsque la taille des éprouvette est comparable.

Néanmoins, la variable qui nous paraît le plus appropriée pour la caractérisation des propriétés de rupture par le facteur d'intensité des contraintes, K , c'est précisément son taux de variation par unité de temps, dK/dt , ou \dot{K} , qu'on appellera la vitesse de mise en charge du front

de fissure (*crack tip loading rate*). Nous avons tenté de justifier ce choix de manière plus détaillée dans l'annexe A1.

Pour comparer la sévérité des conditions étudiées ci-dessus, nous avons calculé les vitesses d'ouverture, \dot{u} , et les vitesses de mise en charge du front de fissure, \dot{K} , par la dérivation numérique à partir de u et de K calculés par la simulation. Ces variables sont reportées en fonction du temps, t , pour chaque condition à la Figure 5-14

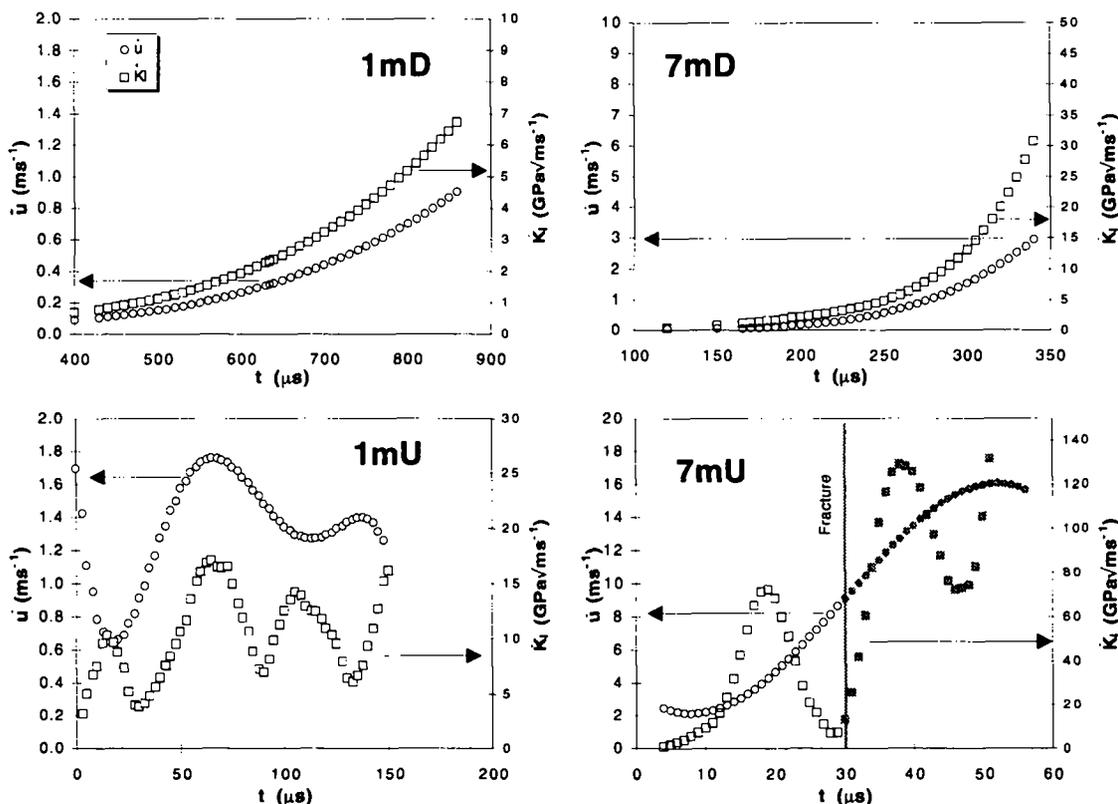


Figure 5-14: Vitesses d'ouverture, \dot{u} , et vitesses de mise en charge du front de fissure, \dot{K} , en fonction du temps, t , pour les quatre conditions étudiées.

L'examen des résultats de la Figure 5-14 conduit aux remarques suivantes:

- Sans l'utilisation d'un amortisseur (conditions 1mU et 7mD), les vitesses d'ouverture réelles sont supérieures aux vitesses de piston, de 1 et 7 ms⁻¹. L'hypothèse d'une perte de contact dans le dispositif d'entraînement se trouve confirmée. On y voit une analogie avec les pertes de contact entre le marteau et l'éprouvette survenant dans le cas des essais SENB choc.
- Cette perte de contact entraîne une ouverture en tête de fissure de type harmonique, que les courbes de \dot{K} traduisent bien.
- L'utilisation d'amortisseurs (conditions 1mD et 7mD) donnent lieu à des vitesses d'ouverture croissantes en cours d'essai. La vitesse ultime dépend donc du temps à la rupture du matériau. L'accélération induite dans le spécimen est toujours de signe positif. Le front de fissure est ainsi sollicité en ouverture croissante tout au long de sa mise en charge.

- K croît constamment, et ne change pas de signe en cours de chargement.
- En première approximation, on peut estimer que l'utilisation d'un amortisseur accroît le temps à la rupture d'un facteur 2 pour les tests des polymères fragiles à 1 ms^{-1} , et d'un facteur 50 pour les essais à 7 ms^{-1} . En revanche, K n'est réduit que d'un facteur 2 à 2.5 par l'utilisation de l'amortisseur.

Notre analyse nous conduit à conclure que les essais à accélération réduite par le recours à un amortisseur diminuent la sévérité du test d'un facteur qui est tout à fait acceptable, si la variable considérée est la vitesse de mise en charge du front de fissure, K . Par ailleurs, c'est ce paramètre que nous recommandons pour l'expression des résultats, lorsqu'on désire comparer le comportement de matériaux en utilisant des méthodes d'essais, des géométries, ou des tailles différentes de spécimen.

5.7. CONCLUSIONS.

L'étude de la fracture des polymères par les essais de choc est un domaine d'intense activité de recherche. L'instrumentation des essais de choc traditionnels a révélé la complexité des phénomènes mis en jeu. Pour répondre à la nature dynamique transitoire des essais, deux approches sont possibles: l'une (analytique) repose sur l'analyse dynamique des structures testées, l'autre (expérimentale) vise à contourner la nature dynamique des essais de choc. Une telle démarche substitue des essais aux grandes vitesses aux essais de choc proprement dits.

Certes les exigences des essais de choc à l'égard des matériaux peuvent être plus élevées dans certains cas. Par exemple, un état de chargement dynamique transitoire peut engendrer d'importantes concentrations de contrainte locales, sous la forme de superpositions d'ondes transitoires, ou par le développement de modes complexes de sollicitation. Cependant, et dans tous les cas, ces phénomènes résultant d'un état de contrainte dynamique transitoire dépendent fortement de la taille, de la forme, et des matériaux qui composent la structure testée. Du point de vue de la recherche, l'établissement des paramètres de contrainte locaux, pour en étudier les incidences sur les mécanismes de déformation, est souvent difficile et laborieux. Son application en routine à l'étude du comportement des matériaux pose encore des problèmes difficiles à résoudre. Du point de vue de l'ingénieur, la situation n'est pas plus claire. Une analyse détaillée des conditions de défaillance des matériaux testés doit être effectuée, avant de pouvoir l'appliquer au dimensionnement de structures complexes.

La seconde voie, que nous avons suivie et que nous encourageons repose sur l'observation du comportement des matériaux aux grandes vitesses, en présence d'un état de contrainte bien défini et facilement caractérisable. Les essais proposés ont un caractère statique, mais les temps à la rupture sont de l'ordre de grandeur de ceux généralement obtenus au choc.

Les vitesses de mise en charge du front de fissure, K , sont proches de celles générées par les essais de choc. Du point de vue du comportement viscoélastique, ou viscoplastique, l'incidence sur les propriétés des matériaux est la même que celle des essais de choc. Les essais amortis conviennent donc bien à l'étude de l'influence de la vitesse de sollicitation sur les propriétés de rupture, car ils limitent au maximum les effets qui ne sont pas propres au matériau testé, et en particulier ceux qui découlent de la mécanique vibratoire des chocs. Du point de vue de l'ingénieur, une telle approche est utile également, car elle vise à l'établissement de courbes

de comportement expérimentales du type $K=f(\dot{K})$. De telles données répondent parfaitement aux besoins des constructeurs, parce qu'actuellement les structures sont le plus souvent dimensionnées par le calcul numérique. Ainsi, la réponse dynamique transitoire des structures est calculée pas à pas. Pour le dimensionnement par mécanique de la rupture, K peut être évalué en tout temps par l'extrapolation des pas de calcul précédents.

Toutefois, comme nous l'avons vu dans ce chapitre, l'ouverture de la fissure par le déplacement d'une seule des deux goupilles (l'autre étant fixe) produit un état assymétrique des contraintes aux temps courts. L'état de contrainte qui en résulte peut aboutir à une rupture comportant une importante mixité de mode. C'est le principal facteur limitatif quant à la vitesse des essais, et il ne nous paraît pas souhaitable d'étendre la plage de vitesse d'essai au delà de 10 ms^{-1} , même en condition d'essai amortie.

Il convient encore de relever, qu'à ce jour, la caractérisation du comportement des matériaux effectuée selon la méthode amortie n'a pas été prise en défaut par les travaux d'autres chercheurs. De manière générale, la tendance est plutôt vers une extension de ce type d'approche, comme le montre les travaux de l'E.S.I.S. T.C.4. Notons encore que des essais comparatifs réalisés conjointement dans ce cadre avec W. Böhme selon son approche dynamique [11], et selon notre approche, ont donné des résultats très similaires pour la caractérisation en rupture d'un PVC modifié, jusqu'à des vitesses de l'ordre de 7 ms^{-1} [15].

5.8. ENGLISH CAPTIONS

Table 5-1: Summary of the experimental conditions.

Table 5-2: Material parameters used for the numerical simulation.

Table 5-3: The first eight natural oscillations of the specimen deduced from modal analysis.

Figure 5-1: Schematic diagram of the circular polariscope used for photoelastic experiments.

Figure 5-2: Displacement, u , versus time, t , for the four loading conditions studied. The solid line are the experimental data, and the squares are the deformation-time steps used in the F.E. simulation.

Figure 5-3: (a) The finite element mesh (symmetrical) used for the numerical simulations. The nodes at which displacement conditions were imposed are indicated by the points. (b) A zoom of the crack tip, showing the node used for crack tip opening displacements analysis.

Figure 5-4: (a) Isochromatic patterns computed in plane strain and plane stress for static loading corresponding to $1 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ in plane strain ($a/W = 0.5125$), and b) Principal stresses, above: σ_1 , below: σ_2

Figure 5-5: Experimental (above) and simulated (below) photoelastic fringes at a nominal opening velocity of 1 m/s , where the acceleration was reduced by the use of a damper (1 mD).

Figure 5-6: Experimental (above) and simulated (below) photoelastic fringes at a nominal opening velocity of 1 m/s , where the test was undamped (1 mU).

Figure 5-7: Experimental (above) and simulated (below) photoelastic fringes at a nominal opening velocity of 7 m/s , where the acceleration was reduced by the use of a damper (7 mD).

Figure 5-8: Experimental (above) and simulated (below) photoelastic fringes at a nominal opening velocity of 7 m/s , where the test was undamped (7 mU).

Figure 5-9: Force, F , versus time, t , for the four loading conditions studied. The force measured by the load cell, and calculated by F.E. are shown for comparison.

Figure 5-10: Comparison between the measured and calculated Stress Intensity Factors, K_I , versus time, t , for the four loading conditions studied. The experimental S.I.F. in mode I were calculated from the force measured by the load cell; the ratio of the S.I.F. in mode I, and in mode II, $|K_{II}/K_I|$ calculated by F.E. are shown.

Figure 5-11: (a) First and (b) fourth modes from modal analysis.

Figure 5-12: Velocity of the moving pin, \dot{u} , and crack tip loading rate, K_I , calculated from the results of the F.E. analysis for the four loading conditions studied.

Figure 5-13: Dynamic correction factor, k^{dyn} , versus adimensional time, tC_I/W , for the two undamped conditions studied.

Figure 5-14: Displacement velocity, \dot{u} , and crack tip loading rate, K , versus time, t , for the four loading conditions studied

5.9. REFERENCES.

- 1 Kim K.S., Phillips J.W, in *Manual on Experimental Stress Analysis*, (1989), eds: Doyle FJ & Phillips J.W, Society for Experimental Mechanics, Bethel
- 2 Takahashi K., Arakawa K., *Experimental Mechanics* , (27), 2, (1987)
- 3 Dally J.W, in *Static and Dynamic Photoelasticity and Caustics*, Recent Developments, Internat. Centre for Mech. Sci., Courses and Lectures No 290, ed. Lagarde A., Springer, Wien
- 4 Träger J., *The Photoelastic Effect and its Applications*, proc. Internal Union of Theoretical and Applied Mechanics, Symposium Ottignies/Belgium, September 10-16, (1973). Kestens J. ed., Springer, Berlin, p.596.
- 5 Tiedemann, D-8100 Garmisch-Partenkirchen.
- 6 ABAQUS™, version 5.3, *Theory Manual*
- 7 Hilber, H. M., Hughes, T. J. R. and Taylor, R. L., *Collocation, Dissipation and 'Overshoot' for Time Integration Schemes in Structural Dynamics*, Earthquake Engineering and Structural Dynamics, 6, (1978),, pp. 99-117.
- 8 Kalthoff J.F, *Handbook on Experimental Mechanics*, 2nd ed. (1993), ed. by Albert S. Kobayashi, VCH Publishers, p.280
- 9 Kalthoff J.F., Winkler S., Böhme W., Klemm W., in *Adv. in Fracture Research*, François *et al.* ed., (1980), Pergamon Press, Oxford-New York, p. 363.
- 10 Anderson T.L., *Fracture Mechanic*, 2nd ed., (1995), CRC Press, Boca Raton
- 11 Böhme W., in *Impact and Dynamic Fracture of Polymers and Composites*, ESIS 19, ed: Williams J.G and Pavan A., (1995), Mechanical Engineering Publications, London, p. 59
- 12 Williams J.G, Braga L.M., MacGuillivray H.J, in *Impact and Dynamic Fracture of Polymers and Composites*, ESIS 19, ed: Williams J.G and Pavan A., (1995), Mechanical Engineering Publications, London, p. 45.
- 13 Williams J.G., *Fracture Mechanics of Polymers*, (1987), Ellis Horwood, Chichester
- 14 Kerkof F., *Proceedings of the International Conference on Dynamic Crack Propagation*, (1972), Noordhoff International Publishing, Leyden
- 15 Böhme W., European Society Society for Structural Integrity, Technical Committee 4, Spring meeting, (1995)

CHAPITRE 6

6. INFLUENCE DE LA VITESSE ET DE LA TEMPERATURE SUR LES PROPRIETES MECANIQUES DU POLYOXYMETHYLENE (POM)

6.1. INTRODUCTION

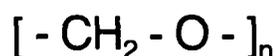
L'objectif de ce chapitre est l'étude de l'influence de la vitesse de déformation sur les propriétés des polyoxyméthylènes (abrégiés POM). Parallèlement, Ch. Plummer étudiait l'influence de la température sur la structure physique et les propriétés mécaniques. Pour l'intérêt de la discussion, les résultats présentés ici regroupent des données obtenues par la variation des paramètres temps et température. La masse moléculaire ainsi que la structure cristalline sont les autres paramètres pris en compte. Une bonne partie de ces données ont fait l'objet de publications [1, 2]

6.1.1. Matériaux

Les POM font partie des polymères dits techniques et sont largement utilisés pour des applications en microtechnique. Ils sont aussi utilisés dans certaines applications de grandes séries comme par exemple l'injection du corps des briquets jetables. En raison de leurs excellentes propriétés mécaniques à basse température, on les utilise pour des applications devant résister au froid comme par exemple les fixations de ski en matière plastique.

Paradoxalement, et bien que largement répandus dans des applications exigeantes du point de vue mécanique, il existe relativement peu de publications traitant de leurs propriétés mécaniques, et très peu concernant leurs propriétés aux vitesses élevées de sollicitation.

Les POM étudiés ici sont des homopolymères de type polyacétal produits par polymérisation cationique du formaldéhyde. Leur structure chimique est:



Notre étude se concentre sur ceux produits par DuPont de Nemours sous la désignation commerciale de DELRIN® 100 NC, 500 NC et 900 NC. Leur masse moléculaire moyenne M_n est de 66'000, 41'000 et 35'000 g mol⁻¹ respectivement.

Le POM cristallise facilement à la mise en oeuvre et après refroidissement sa structure physique est sphérolitique et hautement cristalline. Bien que le degré de cristallinité varie peu avec les conditions de mise en oeuvre, elles influencent passablement la taille des sphérolites. Sa plage d'utilisation s'étend de -40°C à +150 °C.

La Figure 6-1 montre l'analyse mécanique dynamique (DMA) d'un barreau sollicité en flexion à 1 Hz. Les transitions α à 135°C et γ , à ~-70°C sont clairement marquées. La transition β à ~-10°C l'est nettement moins. Elle est toutefois fréquemment reportée dans la littérature [3].

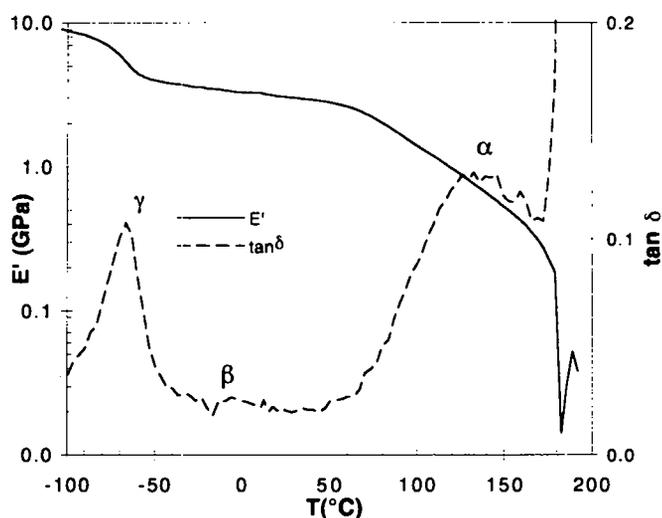


Figure 6-1: Spectre DMA du POM de M_n 41'000 [4].

6.1.2. Mise en oeuvre

Les éprouvettes de traction en forme de sablier, de section de 5 x 3 mm ont été moulées par DuPont. Afin d'obtenir une vitesse de déformation la plus élevée possible avec la machine servo-hydraulique à grande vitesse, la longueur de la section calibrée du fût a été réduite au maximum. Le moule possédait deux empreintes de 15 et 20 mm de longueur de fût.

Des plaques de 6 mm d'épaisseur ont également été moulées par injection, dans lesquelles des éprouvettes de mécanique de la rupture ont été découpées. Pour faire varier la structure cristalline, on a eu recours au moulage de plaques par compression sur une presse Bucher-Guyer LS 35. Après fusion des granulés à 200°C, les températures de cristallisation utilisées ont été de 145, 150 et 160°C, à pression constante de $\sim 5 \times 10^5$ Pa. Les éprouvettes CT ont été découpées dans les plaques ainsi produites (d'environ 8 mm d'épaisseur et 93 mm de diamètre).

Le temps de cristallisation à 150 °C était de 1h., alors qu'à 160°C il a été limité à 6 h pour empêcher la dégradation. Selon les mesures par calorimétrie différentielle à balayage (DSC) de Plummer [6], alors que la cristallisation des POM de plus bas poids moléculaire était complète à 160°C en 6h, ce n'était pas le cas pour les poids moléculaires les plus hauts. Pour l'injection, les T_c ont été estimées à partir des températures de fusion mesurées par DSC [5]. Pour les moulages par compression par contre, T_c est connue avec précision.

Comme le montre le Tableau 6.1 [6] le degré de cristallinité mesuré par calorimétrie différentielle à balayage (DSC) augmente quelque peu avec la température de cristallisation et le poids moléculaire.

6.1.3. Essais

Les essais de traction aux très basses vitesses (jusqu'à 10^{-3} s $^{-1}$), et les essais de rupture à 1mm min $^{-1}$ (1.6×10^{-5} ms $^{-1}$) ont été réalisés sur une machine de traction Zwick 1484 équipée d'un four. Les autres essais ont été réalisés sur la Schenck servo-hydraulique avec les

équipements et selon les procédures (amorties aux grandes vitesses) décrites aux Chapitres 3 et 4.

| T_c | 110°C | 150°C | 160°C |
|---------------------------|----------------|----------|---------|
| | $M_n = 35'000$ | | |
| Degré de cristallinité | 0.7 | 0.78 | 0.83 |
| T_f | 170°C | 172.5 °C | 178 °C |
| $\sigma_{y \text{ comp}}$ | - | 103 MPa | 105 MPa |
| | $M_n = 66'000$ | | |
| Degré de cristallinité | 0.6 | 0.68 | 0.75 |
| T_f | 170°C | 172°C | 175°C |
| $\sigma_{y \text{ comp}}$ | 93 | 95 | 95.5 |

Tableau 6.1: Degré de cristallinité mesuré par DSC, température de fusion, T_f , et seuil de plasticité en compression, $\sigma_{y \text{ comp}}$, pour deux poids moléculaires, M_n , et différentes températures de cristallisation T_c [6].

6.2. ESSAIS DE TRACTION DES EPROUVETTES INJECTEES

6.2.1. Essais aux petites vitesses à différentes températures

La Figure 6-2a montre les courbes contrainte-déformation typiques où l'on observe trois type de comportement aux grandes déformations, selon la température de l'essai :

- aux basses températures, le comportement est fragile et la rupture intervient à 1 ou 2% de déformation,
- à température ambiante le comportement est semi-fragile et hautement non-linéaire, caractérisé par l'absence d'écoulement qui est remplacé par un plateau très étendu précédant la rupture aux environs de 80%,
- aux températures les plus hautes, le comportement est ductile et le seuil plastique est suivi d'une striction qui provoque un écoulement bien visible.

La transition du comportement semi-fragile à ductile dans le domaine 40-60°C n'affecte pas clairement la contrainte maximale, σ_{max} , reportée à la Figure 6-2b en fonction de la température, T . Au contraire, la transition semi-ductile à fragile aux basses températures est marquée par une nette rupture de pente de la courbe $\sigma_{max}-T$.

Relevons que la contrainte maximale du $M_n=66'000$ est plus petite que celle des autres poids moléculaires aux températures supérieures à la transition γ (~-70°C), mais elle est plus grande aux basses températures.

La Figure 6-3 montre l'évolution du module d'élasticité, E , en fonction de la température, T , et de la vitesse de déformation, $\dot{\epsilon}$, pour le POM de poids moléculaire $M_n=41'000$. Le module d'élasticité est affecté vers -80 °C par la transition γ . En revanche, à température ambiante comme aux basses températures, le module élastique dépend peu de la vitesse de sollicitation.

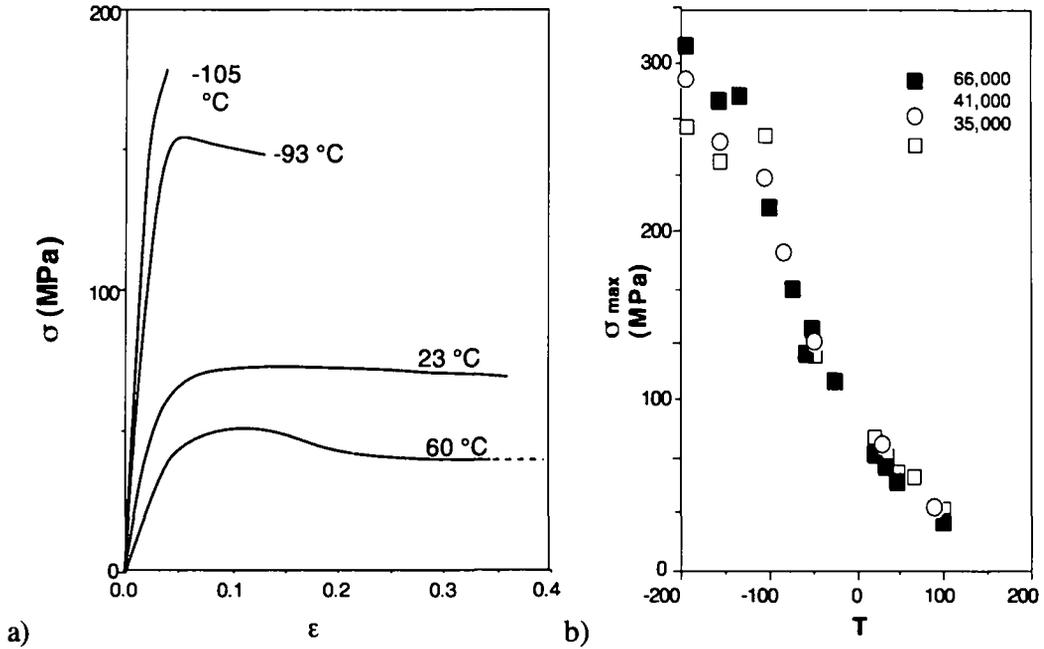


Figure 6-2: a) Courbes contrainte nominale, σ ,-déformation, ϵ , typiques à différentes températures. Ici pour une vitesse de déformation d'environ $1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, et un poids moléculaire M_n de 41'000). b) Contrainte maximale, σ_{max} , en fonction de la température T (vitesse de déformation d'environ $1 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$).

Ces données sont consistantes avec les positions des transitions viscoélastiques qui comportent deux pics de perte, α et γ , respectivement vers +135 et -70 °C. L'existence de la transition α est attribuée au déblocage de mouvement à grande échelle dans les régions cristallines (fusion) [3]. La transition γ est généralement attribuée à la transition vitreuse, bien que d'autres sources situent la T_g vers -10°C (transition β).

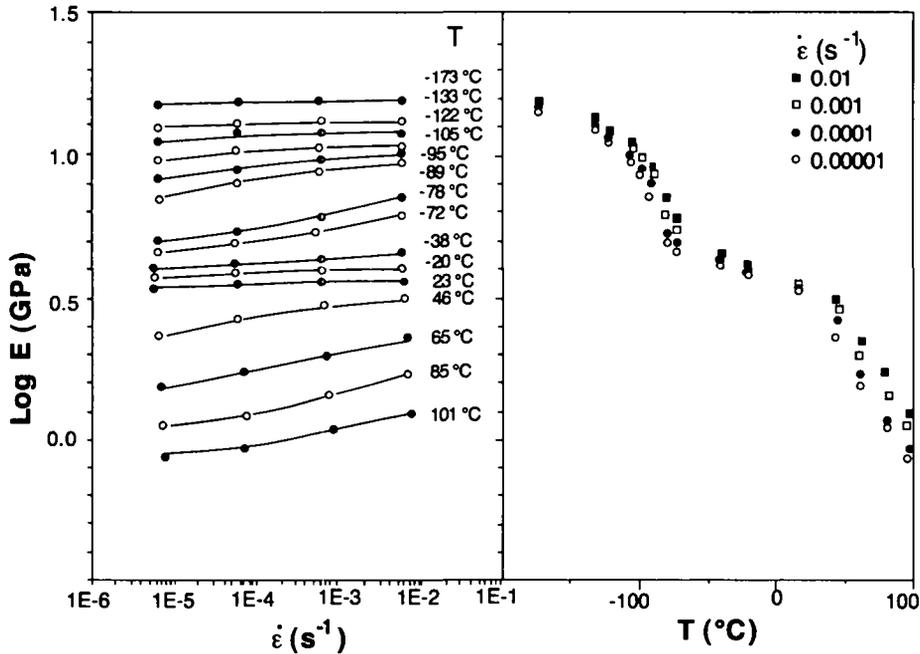


Figure 6-3: Module d'élasticité en traction, E , en fonction de la vitesse de déformation, $\dot{\epsilon}$, et de la température, T , ($M_n = 41'000$).

6.2.2. Essais aux grandes vitesses à température ambiante.

Les essais en traction sur la Schenck à haute vitesse ont couvert 6 décades de vitesse de déformation à la température ambiante. Aux grandes vitesses nous avons utilisé la procédure amortie décrite au Chapitre 3. La Figure 6-4 montre des courbes contrainte-déformation typiques, pour trois vitesses de déformation.

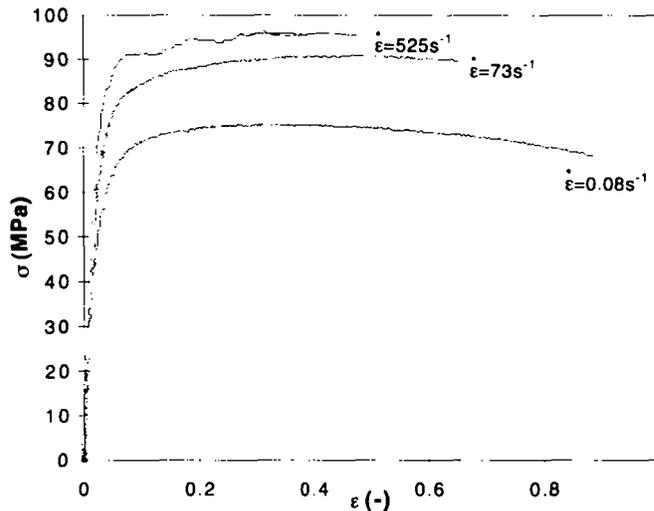


Figure 6-4: Exemples de courbes contrainte, σ , déformation, ϵ , du $M_n=66'000$ à la température ambiante.

Les résultats de ces mesures pour les M_n de 66'000 et 41'000 sont illustrés à la Figure 6-5.

Pour ces deux poids moléculaires, le module d'élasticité en traction ne varie pratiquement pas quelque soit la vitesse de déformation. Ces résultats sont en accord avec ceux de la Figure 6-3. Sur toute la plage couverte, le comportement est de nature semi-ductile, avec un plateau très marqué mais sans écoulement. La déformation plastique du fût apparaît donc homogène. La contrainte nominale au seuil plastique, σ_y , est quasiment identique pour les deux poids moléculaires et varie de façon totalement similaire avec la vitesse de déformation ($\sim 5\text{MPa/décade}$ de vitesse), pour les deux poids moléculaires. L'allongement total à la rupture est notablement plus grand pour le poids moléculaire le plus élevé. Aux vitesses de déformations les plus élevées, qui correspondent à une vitesse de traction de 10 ms^{-1} , l'allongement à la rupture du 66'000 est de l'ordre du double de celui du 41'000.

Des éprouvettes avec les deux longueurs de fût différentes (15 et 20 mm) ont été utilisées de façon à vérifier que les résultats n'en dépendent pas; aucune influence n'est constatée.

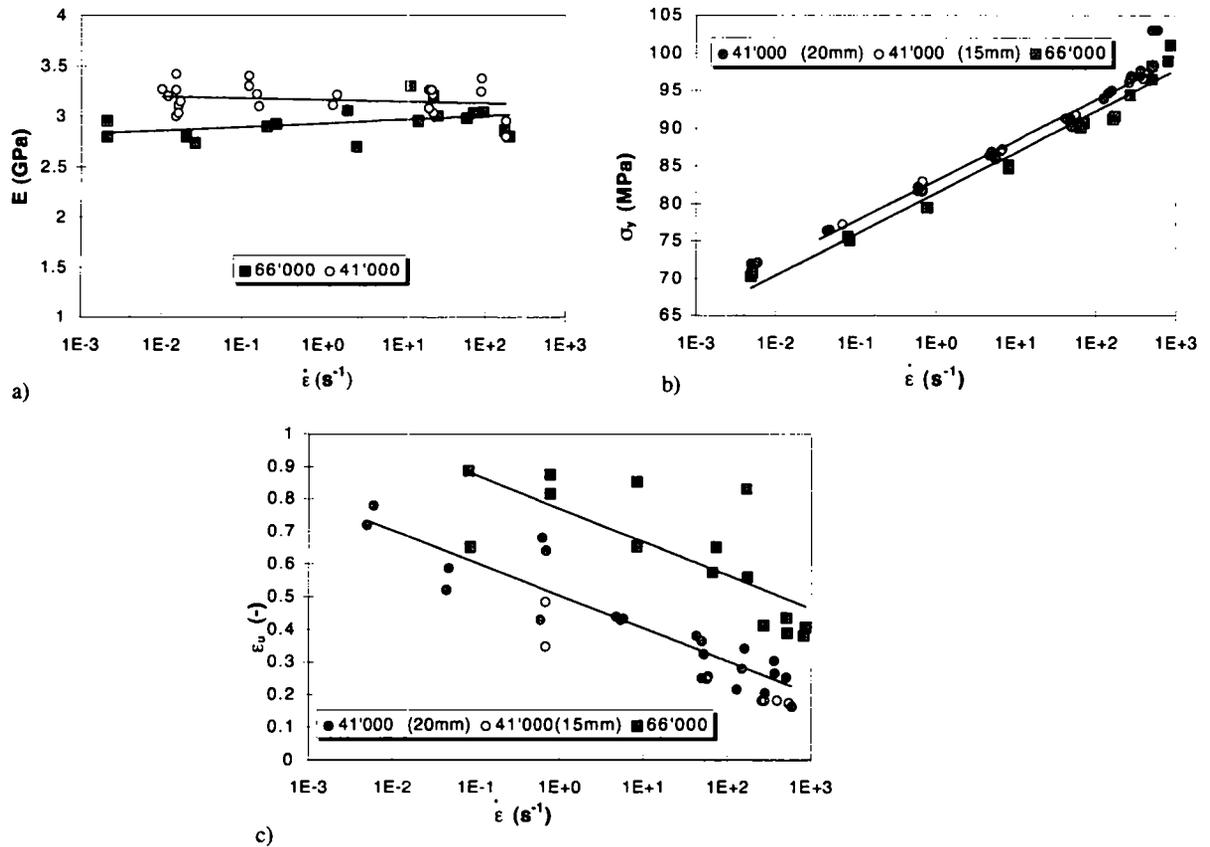


Figure 6-5: a) Module d'élasticité, E , b) contrainte nominale au seuil plastique, σ_y , et c) déformation à la rupture, ϵ_u , en fonction de la vitesse de déformation, $\dot{\epsilon}$. Les masses moléculaires représentées sont $M_n = 66'000$ et $41'000$.

6.2.3. Approche énergétique

Nous nous sommes intéressé à la faculté d'absorption de l'énergie de déformation, et à la façon dont celle-ci pourrait être affectée par la vitesse de déformation. Pour ce faire, nous avons calculé numériquement l'énergie spécifique emmagasinée dans l'échantillon à des taux de déformation, ϵ , de 0.2 et 0.35. Ces taux de déformation ont été choisis arbitrairement et pourrait prendre n'importe quelle valeur entre 0 et l'allongement de rupture.

L'énergie spécifique, W_s , est calculée pour 0.2 et 0.35 de déformation par les relations:

$$W_s = \int_{\epsilon=0}^{\epsilon=0.2} \sigma(d\epsilon), \text{ ou } W_s = \int_{\epsilon=0}^{\epsilon=0.35} \sigma(d\epsilon) \quad (6-1)$$

Les résultats sont exprimés à la Figure 6-6a. On constate que l'énergie de déformation augmente de façon monotone avec le logarithme de la vitesse de déformation. Les mesures jusqu'à 35% de déformation montrent qu'elle ne dépend pratiquement pas de la masse moléculaire du matériau. Les mesures jusqu'à 20% de déformation ne sont représentées que pour le $M_n = 41'000$, et montrent qu'elles sont indépendantes de la longueur de l'éprouvette, puisque elles ont été réalisées avec deux longueurs de fût différentes, soit 15 et 20 mm.

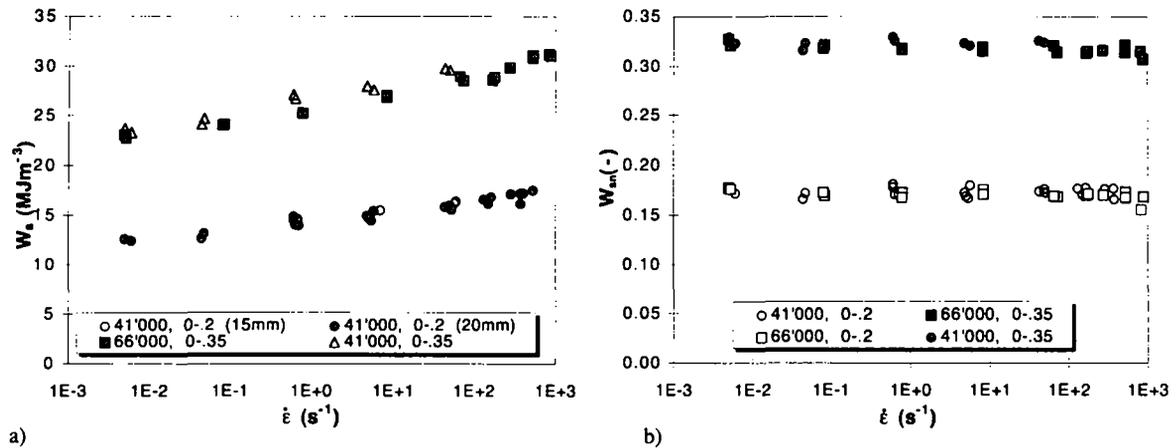


Figure 6-6: a) Energie spécifique, W_s , et b) énergie spécifique normalisées, W_{sn} , pour deux masses moléculaires différentes jusqu'à 20% et 35% de déformation, exprimé en fonction de la vitesse de déformation, $\dot{\epsilon}$.

En normalisant l'énergie représenté en Figure 6-6a par la contrainte au seuil de plasticité, σ_y , selon les relations $W_{sn} = \frac{1}{\sigma_y} \int_{\epsilon=0}^{\epsilon=0.2} \sigma(d\epsilon)$, et $W_{sn} = \frac{1}{\sigma_y} \int_{\epsilon=0}^{\epsilon=0.35} \sigma(d\epsilon)$ pour 0.2 et 0.35 de déformation respectivement, on remarque que l'énergie de déformation normalisée, W_{sn} , (Figure 6-6b) est constante avec la vitesse, et ne dépend pas de la masse moléculaire.

Ceci étant, on peut en conclure que l'augmentation de l'énergie de déformation avec la vitesse (pour atteindre une déformation donnée) résulte seulement de l'augmentation du seuil de plasticité. On ne constate ainsi aucun changement de mécanisme de déformation à la température ambiante dans un domaine de vitesse de déformation compris entre $\sim 0.5 \times 10^{-3}$ et 1×10^3 s⁻¹. De plus, l'énergie de déformation ne dépend pas de la masse moléculaire. Toutefois, si on se reporte aux valeurs d'allongement à la rupture représentées à la Figure 6-5c, on se rend compte que le polyacétal de $M_n=66'000$ est capable d'absorber plus que le double d'énergie avant la rupture en traction que le $M_n=41'000$, et cela avec des propriétés de module et de contrainte maximale identiques.

Ainsi, l'influence la plus importante de la masse moléculaire sur les propriétés en traction à la température ambiante est l'augmentation significative de l'allongement à la rupture, et par conséquent de l'énergie de rupture. La Figure 6-5 montre que cette remarque est vraie sur toute la plage de vitesse couverte. Par contre, le module élastique du POM de poids moléculaire le plus élevé est légèrement inférieur à celui des masses plus faibles, probablement en raison de son taux de cristallinité légèrement plus bas.

6.2.4. Observations fractographiques

A la température ambiante, le comportement en traction du POM est semi-ductile (endommagement important, et rupture instable). L'observation en MEB des surfaces de rupture des éprouvettes de traction montre l'initiation de la rupture au centre des éprouvettes. Une zone circulaire correspondant à la propagation stable de la rupture est observable à toutes

les vitesses de déformation. Son diamètre tend à diminuer avec l'augmentation de la vitesse de traction. La Figure 6-7 montre les surfaces de rupture observées par le microscope électronique à balayage Cambridge S250 à 5 kV, après dorage. Les éprouvettes déformées à 10^{-4} s^{-1} montre une surface de rupture de type *cup and cone* de grande taille, similaire à celles observées par Rodriguez [7] en fatigue sur le PVC. A 10 ms^{-1} , la surface de rupture est plane, et la zone circulaire de propagation stable est restreinte à un diamètre d'une centaine de micromètres.

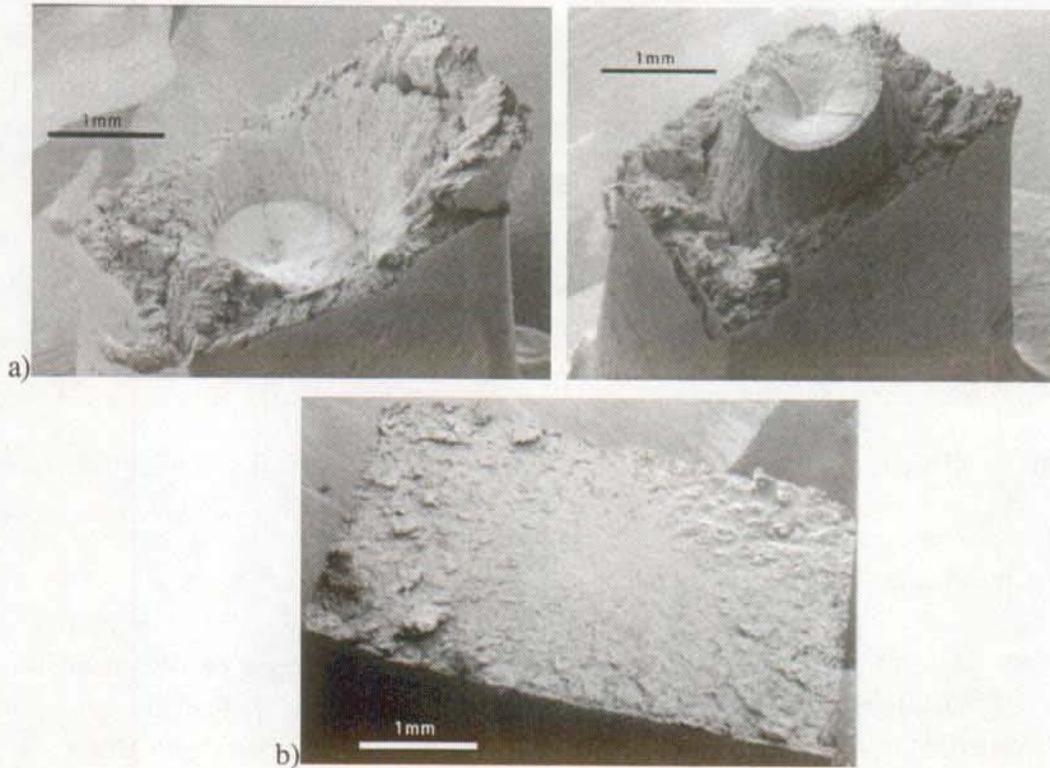


Figure 6-7: Surface de rupture en traction d'une éprouvette injectée de POM de $M_n=66'000$, sollicité à: a) 10^{-4} ms^{-1} , b) 10 ms^{-1} .

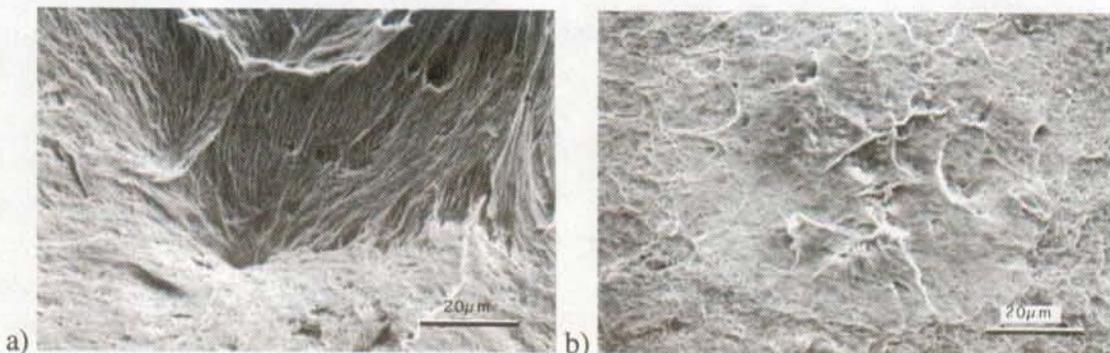


Figure 6-8: Agrandissement des zones d'initiation de la rupture de la Figure 6-7. a) 10^{-4} ms^{-1} , b) 10 ms^{-1} .

Observées à plus fort grossissement (Figure 6-8), les zones de propagation stable sont constituées de matériau hautement déformé. Des cavités sont clairement observables sur les surfaces de rupture, leur tailles et leur nombre sont plus grands à basse vitesse.

A 10^{-4} ms^{-1} , la propagation de la rupture instable en dehors du plan d'initiation défini par la partie circulaire s'explique par le gradient de structure résultant du procédé de mise en oeuvre

des éprouvettes par injection. La vitesse élevée de solidification du fondu à proximité des parois du moule, et plus généralement le gradient de vitesse de refroidissement dans le moule ainsi que le cisaillement conduisent à une structure cristalline inhomogène [5]. Pour exemple, la Figure 6-9 montre la structure du POM sur une lame mince microtomée, observée par microscopie optique en lumière polarisée. Partant du bord de l'échantillon (partie noire de la photo) on remarque une zone à très petite structure, puis une augmentation de la taille des sphérolites, à mesure que l'on se rapproche du centre de la section.



Figure 6-9: Observation par microscopie optique en lumière polarisée de la structure du POM injecté de $M_n=66'000$.

Relevons encore la dépendance de la taille de la zone d'initiation avec la vitesse de traction (Figure 6-10a) et avec la température (Figure 6-10b). Le diamètre de la zone déformée plastiquement tend vers l'épaisseur de l'éprouvette lorsque la vitesse diminue ou que la température augmente. Cette observation est consistante avec le fait qu'à basse vitesse, une petite augmentation de la température par rapport à l'ambiante conduit à un comportement ductile en traction.

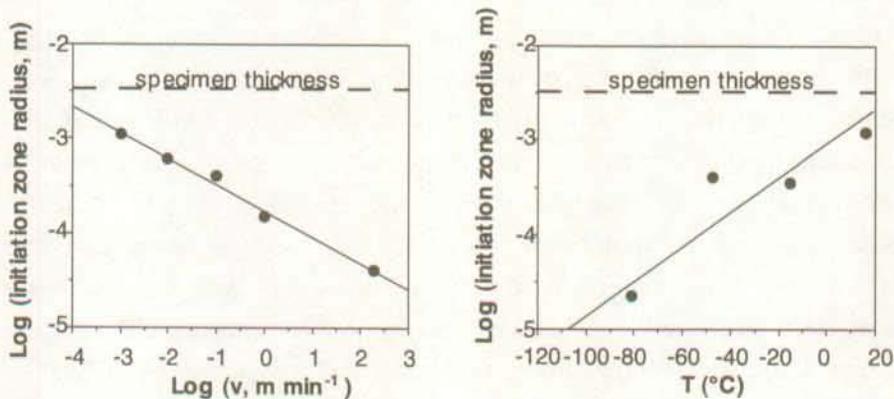


Figure 6-10: Rayon de la zone plastique développée en traction pour le POM injecté de $M_n=41'000$. a) en fonction de la vitesse de traction, v, b) en fonction de la température T.

6.2.5. Mécanismes de déformation

En effectuant les essais de traction, on a remarqué que contrairement aux autres thermoplastiques semi-cristallins au dessus de leur T_g , une grande partie de la déformation est recouverte lors de la rupture de l'éprouvette. Cette constatation est vraie à toutes les vitesses.

Ainsi, l'énergie spécifique de déformation représentée à la Figure 6-6 n'est pas totalement dissipée en travail de déformation plastique. La Figure 6-11 représente les fractions de la déformation élastique, ε_{el} , immédiatement recouvrée et de la déformation plastique résiduelle, ε_{pl} , en fonction de la déformation totale, ε . Les mesures ont été effectuées sur trois échantillons de POM de $M_n=66'000$ soumis à des cycles de charge-décharge à une vitesse de déformation de $5 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$.

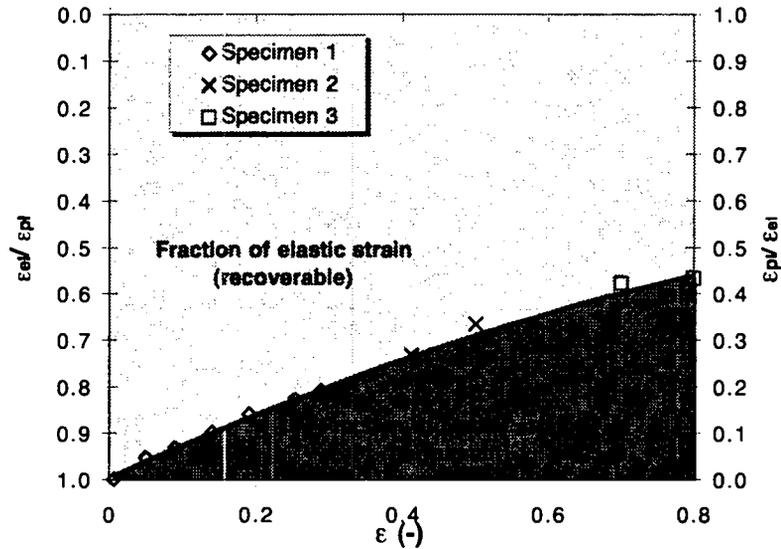


Figure 6-11: Fractions élastiques, ε_{el} , (réversible) et plastiques, ε_{pl} , (permanente) de la déformation en fonction de la déformation totale. $M_n=66'000$, vitesse de déformation $5 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$.

Les données de la Figure 6-11 montrent un degré élevé de réversibilité de la déformation et par conséquent de l'énergie de déformation mesurée précédemment. Ainsi sur l'énergie totale de rupture, plus de la moitié est réversible parce qu'elle est emmagasinée sous la forme de déformation élastique. La courbe contrainte-déformation des six cycles de chargement de l'éprouvette 1 utilisée pour établir la Figure 6-11 est représentée à la Figure 6-12a. On remarque tout de suite le comportement particulier de ce matériau après endommagement. Au 6e cycle de déformation, la déformation réversible reste élevée, et chaque courbe de chargement présente une double pente de comportement élastique. Par analogie avec le comportement des élastomères à $T > T_g$ nous pouvons définir des modules élastiques E et G . Ils sont représentés pour chaque cycle à la Figure 6-12b. Relevons que pour les cycles 3 à 6, les rapports G/E sont de 0.23-0.3. Il s'agit donc d'un comportement proche des élastomères où $E \sim 3G$.

Ces mesures montrent qu'une fois passé le seuil d'endommagement, le POM présente un comportement élastique largement réversible qui pourrait résulter d'un processus de déformation en cisaillement interlamellaire, dans les régions amorphes. Geil [8] a observé un glissement des lamelles du POM et la formation d'une structure fibrillaire créée entre les régions lamellaires.

Dans notre cas, il est parfaitement envisageable qu'au delà d'une certaine déformation, les molécules de liaison (*tie molecules*) communes à deux lamelles adjacentes forment une structure fibrillaire, tout en laissant intactes les lamelles elles-mêmes. La potentialité de recouvrement de la déformation lors d'une décharge résulte des propriétés élastiques de la structure fibrillaire

créée. Lorsque l'on recharge une éprouvette préalablement déformée, dans un premier temps les lamelles peuvent glisser entre elles en exploitant l'élasticité de la structure fibrillaire. Puis, si les molécules de liaison non rompues ont une potentialité de désenchevêtrement suffisante dans l'interface interlamellaire amorphe pour continuer à étirer la structure fibrillaire, la longueur des fibrilles est accrue. En approchant la déformation atteinte au cycle précédent, de nouvelles molécules de liaison sont étendues, puis rompues. Un tel mécanisme pourrait expliquer l'augmentation du module de cisaillement (noté G sur la Figure 6-12) à l'approche du plateau d'endommagement.

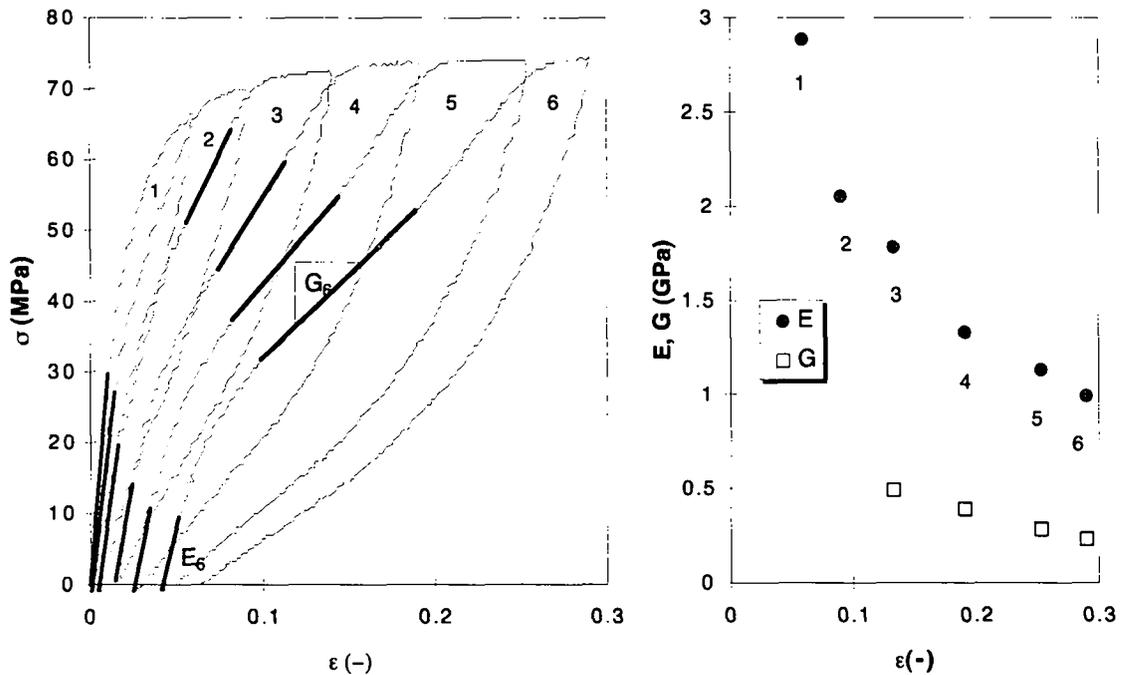


Figure 6-12: Cycles de charge décharge en traction sur un POM de $M_n=66'000$. Vitesse de traction 1 mms^{-1} (vitesse de déformation $5 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$)

Un comportement tout à fait similaire a été reporté récemment [9] sur un polypropylène (PP) dont le comportement est qualifié de 'hard elastic'. L'hypothèse de la formation d'une structure fibrillaire par la déformation des zones interlamellaires amorphes est avancée. La formation de cette structure sur des films minces a été suivie par la diffraction des rayons X aux petits angles. La réversibilité de la déformation est sensiblement modifiée par le milieu dans lequel l'essai est effectué (air, méthanol, décaline). En utilisant une approche énergétique similaire à la notre, les auteurs ont montré que la fraction de l'énergie de déformation restituée par rapport à l'énergie totale de déformation change selon le milieu de l'essai.

Il faut encore relever qu'un tel comportement mécanique aux cycles de charge-décharge a également été observé sur le polystyrène modifié au choc (HIPS) [10,-13]. Il faut donc en conclure que ce comportement est induit par la présence d'une phase caoutchoutique (~20%) à la température considérée, plutôt que la présence d'une phase sphérolitique.

Quoi qu'il en soit, l'origine d'un tel comportement n'est pas expliquée clairement actuellement. Il est néanmoins certain que le processus d'endommagement du POM est inhomogène à l'échelle microscopique, car il est accompagné de cavitation. Dans nos

observations au microscope électronique à balayage (MEB) nous avons souvent observé une porosité importante des zones hautement déformées. Il est difficile de savoir si ces porosités résultent des mécanismes de déformation ou de la dégradation du matériau sous le faisceau d'électrons. En effet, la stabilité du POM au faisceau électronique est mauvaise, et nous avons même constaté l'apparition de cavités à la surface des échantillons de microscopie lors des opérations de dorage par déposition en phase vapeur.

Dans l'incertitude et pour trancher une fois pour toute sur le problème de l'existence ou non de cavitation, nous avons mesuré la densité d'éprouvettes préalablement sollicitées en traction à différents stades d'élongation. Nous avons sollicité six échantillons à une vitesse de traction de 10^{-3} ms^{-1} à des stades de déformation différents. Après décharge, nous avons effectué des mesures de densité par pesée d'Archimède sur une balance de précision (résolution de 0.01 mg) en prenant soin de respecter le même laps de temps entre la décharge et la pesée. La variation de la densité, ρ , en fonction de la déformation, ϵ , est représentée à la Figure 6-13.

Bien que l'énergie dissipée en déformation plastique, $W_{s \text{ plast}}$, soit beaucoup plus petite que l'énergie de déformation totale, $W_{s \text{ tot}}$ du système, la diminution de ρ est marquée, prouvant ainsi l'existence d'un mécanisme de cavitation.

Les mécanismes de déformation en jeu sont donc inhomogènes, et en grande partie confinés dans les régions amorphes. La potentialité de déformation élevée du matériau est conservée sur une large plage de vitesse et de température. L'augmentation du poids moléculaire a essentiellement pour effet d'augmenter l'énergie de rupture par le biais d'une plus grande déformation à la rupture. Les autres propriétés, E , σ_y , ϵ_y , sont peu sensibles au poids moléculaire

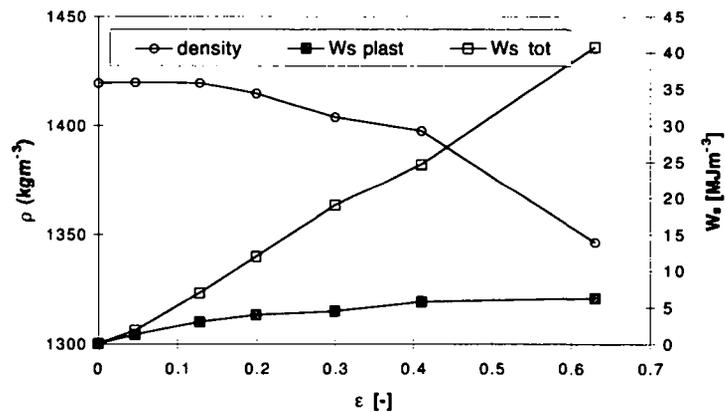


Figure 6-13: Evolution de la densité, ρ , de l'énergie totale, $W_{s \text{ tot}}$, de l'énergie dissipée, $W_{s \text{ plastic}}$, en fonction de la déformation, ϵ . Vitesse de traction 0.1 mms^{-1} , $M_n=66'000$.

6.3.ESSAIS DE MECANIQUE DE LA RUPTURE.

Le facteur critique d'intensité des contraintes, K_{IC} , a été mesuré sur des éprouvettes de géométrie CT, selon la procédure décrite au Chapitre 4. Le comportement des éprouvettes CT de POM est quasiment linéaire élastique; aux basses vitesses, on enregistre toutefois une légère courbure de la trace force-déplacement, comme le montre la Figure 6-14. Quelle que soit la

vitesse et la température, la rupture est toujours instable. Dans certains cas, elle est du type instable-arrêt (*stick slip*).

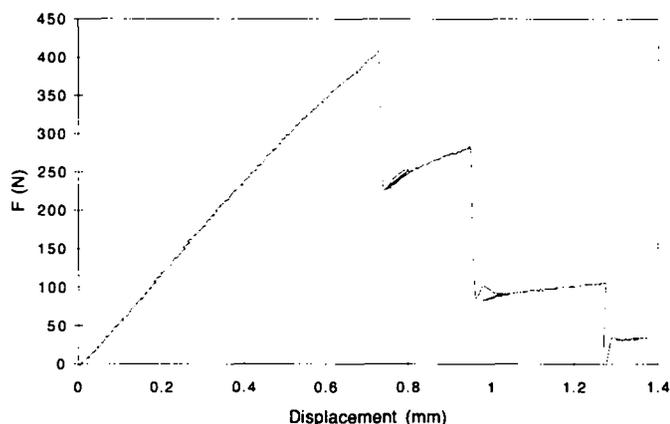


Figure 6-14: Exemple de courbe force-déplacement d'un POM de $M_n=66'000$ testé à 10^{-3} ms^{-1} . Propagation de la rupture 'stick slip'.

Après usinage de la préfissure à la fraise, les entailles ont été propagées en tapant une lame de cutter dans la pré-entaille usinée. Les fissures ont ainsi été propagées sur quelques millimètres en avant de la lame.

6.3.1. Effets de la température et de la vitesse de déformation.

La ténacité en fonction de la température d'éprouvettes CT découpées dans des plaques injectées, a été mesurée à la vitesse de 1 mm min^{-1} ($1.6 \times 10^{-5} \text{ ms}^{-1}$). La Figure 6-15 montre le facteur d'intensité des contraintes, K_{IC} , pour les trois masses moléculaires. On remarque que K_{IC} augmente sensiblement avec la masse moléculaire, mais varie peu avec la température jusqu'à environ -100°C .

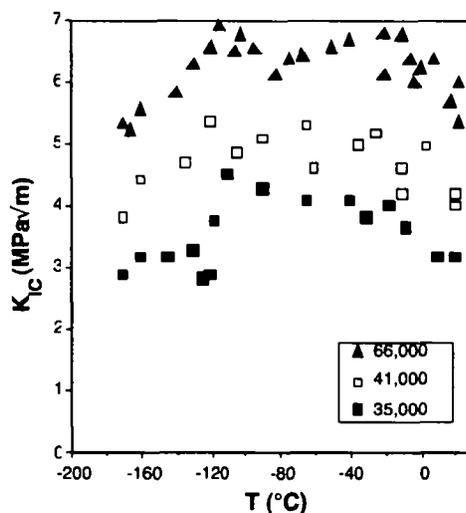


Figure 6-15: Facteur critique d'intensité des contraintes K_{IC} de trois POM de masses moléculaires différentes en fonction de la température T .

En dessous de $\sim -100^\circ\text{C}$, la ténacité décroît. Cette température correspond à la température de transition de comportement de semi-ductile à fragile mesurée en traction (voir Figure 6-2a). Il

convient de remarquer les valeurs élevées de la ténacité (entre 3 et 5 MPa√m selon le poids moléculaire) mesurées à des températures très basses, de l'ordre de celles de la transition γ .

La Figure 6-16 montre l'effet de la vitesse sur K_{IC} . La diminution de la ténacité des éprouvettes injectées est très marquée pour des vitesses supérieures à $1 \times 10^{-4} \text{ ms}^{-1}$. Le comportement en vitesse est le même pour les trois M_n . Seul le POM de plus grand poids moléculaire présente une ténacité plus élevée à toutes les vitesses.

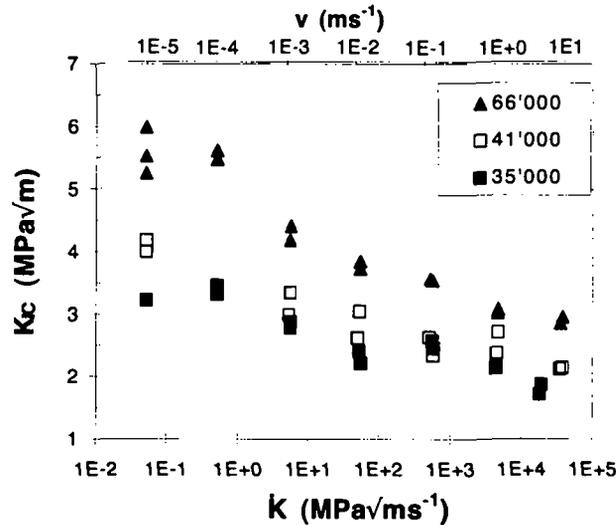


Figure 6-16: Facteur critique d'intensité des contraintes, K_{IC} , de trois POM de masse moléculaires différentes en fonction de la vitesse de mise en charge du front de fissure, K . L'échelle du haut représente la vitesse des essais, v .

6.3.2. Effet de la température de cristallisation.

La ténacité en fonction de la température de cristallisation T_c a été mesurée sur des éprouvettes produites par injection, et moulage par compression. La Figure 6-17 montre que pour toutes les masses moléculaires la ténacité diminue sensiblement lorsqu'on élève la température de cristallisation.

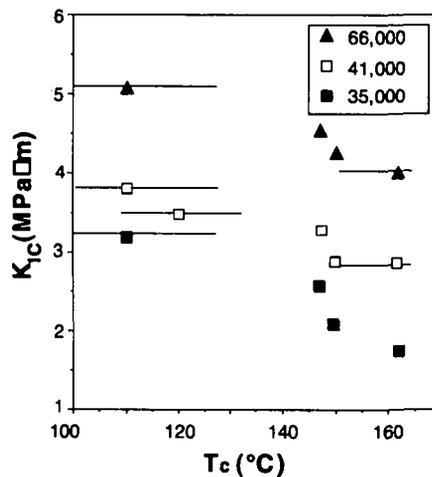


Figure 6-17: Facteur critique d'intensité des contraintes, K_{IC} , des trois POM de masse moléculaires différentes en fonction de la température de cristallisation, T_c .

Pour des vitesses supérieures à $1 \times 10^{-3} \text{ ms}^{-1}$ nous n'avons pas observé de différence de ténacité importante selon la température de cristallisation (les résultats ne sont pas présentés ici).

En résumé, ces essais de rupture montrent que la ténacité du POM augmente avec la masse moléculaire. Si aux faibles vitesses de sollicitation, la ténacité n'est que peu influencée par la température jusqu'à des températures aussi basses que -100°C , elle l'est fortement par l'augmentation de la vitesse de chargement, et chute approximativement de 50% sur 6 décades de vitesses. De même l'élévation de la température de cristallisation conduit à une diminution marquée de K_{IC} aux vitesses de sollicitation les plus basses.

6.3.3. Observations fractographiques

L'observation de la zone déformée en tête de pré-fissure par MEB est révélatrice de la taille de la zone plastique développée avant la propagation de la rupture. La Figure 6-18 montre la surface d'éprouvettes CT rompues à des vitesses de piston de 10^{-3} , 6,2 et 10 ms^{-1} . La zone I (à gauche) correspond à la surface de la pré-fissure et la zone II (à droite) à la surface de la propagation instable. La zone intermédiaire résulte de la déformation plastique en tête de la pré-fissure, avant la propagation instable. Sa taille est petite et diminue fortement avec l'augmentation de vitesse. A 10 ms^{-1} , la zone plastique n'est pas visible à l'échelle considérée.

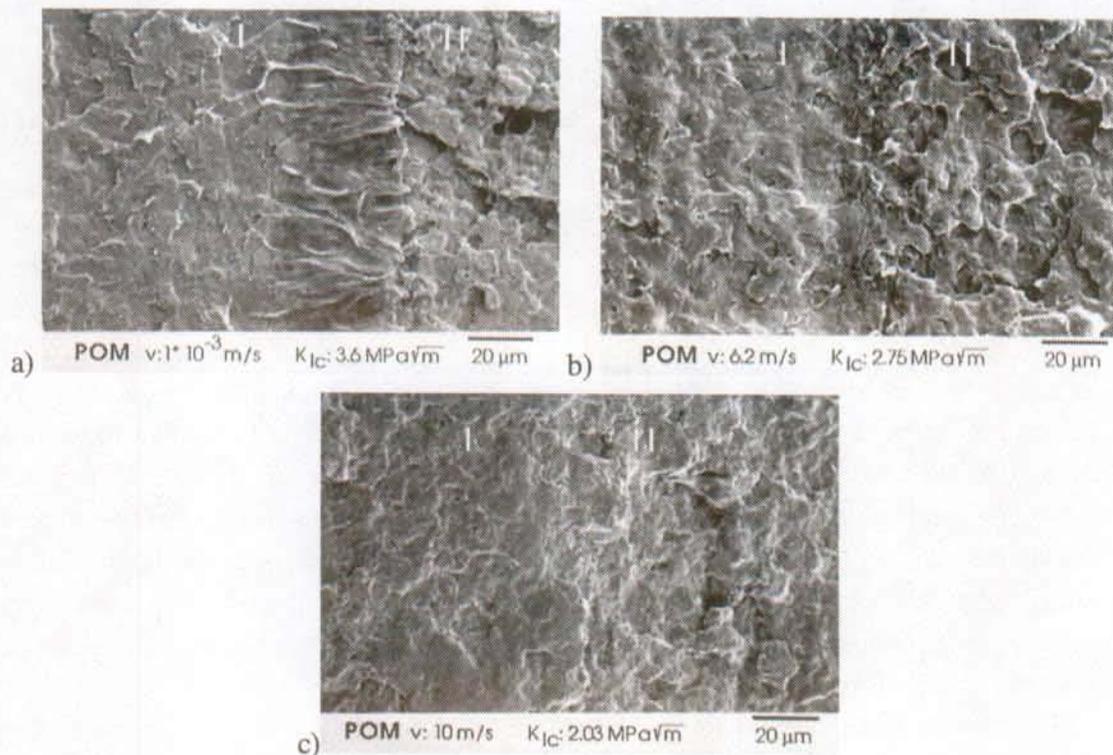


Figure 6-18: Surfaces de rupture des éprouvettes CT du POM de M_n 41'000 observées en MEB. Vitesse d'essai: a) 10^{-3} ms^{-1} , b) $6,2 \text{ ms}^{-1}$, c) 10 ms^{-1} .

Une telle diminution de la taille de la zone plastique avec la vitesse d'essai confirme la brusque chute de K_{IC} . Même dans le domaine 1 à 10 ms^{-1} , la diminution de la taille de la zone plastique est significative.

6.3.4. Discussion: ténacité et mobilité moléculaire

Le point de départ des méthodes de mise en oeuvre conventionnelles comme l'extrusion, le moulage par injection ou encore par compression est un fondu enchevêtré. Les mouvements relatifs des macromolécules sont limités par leurs enchevêtrements. On peut se représenter le fondu comme un réseau enchevêtré caractérisé par une masse moléculaire entre enchevêtrement, M_e , par les loi de l'élasticité caoutchoutique. A l'état solide, la combinaison d'une haute T_g ou une température de fusion élevée (T_f), et d'une haute densité d'enchevêtrement conduit généralement à des propriétés mécaniques intéressantes. Si le réseau enchevêtré du fondu est conservé à l'état solide, on peut considérer que la rupture résulte principalement de la scission des macromolécules. Ainsi, l'expression de l'énergie de rupture de Griffith devient:

$$G_{IC} = 2\gamma \approx 2\gamma_0 + 2\Sigma U \quad (6-2)$$

où γ_0 est l'énergie de surface de Van der Waals, Σ est le nombre d'enchevêtrement pris en compte au voisinage du plan de rupture considéré, et U l'énergie nécessaire à rompre une liaison de la chaîne principale. Σ peut être calculé par la relation $\Sigma = v_e d / 2$, où la densité volumique d'enchevêtrement est $v_e = L_A \rho / M_e$ (L_A est le nombre d'Avogadro et ρ la densité), et d_e la distance séparant deux points d'enchevêtrement. Pour les polymères hautement enchevêtrés, ΣU peut être d'un ordre de grandeur plus grand que γ_0 , ce qui entraîne une forte influence de v_e sur la ténacité [6].

6.3.5. Modèles moléculaires de ténacité dans les matériaux formant des craquelures.

Dans les polymères, l'énergie de rupture G_{IC} se situe normalement en dessus de 100 Jm^{-2} , plutôt qu'inférieure à 1 Jm^{-2} , comme le suggère l'équation 6-2. En pratique, comme nous l'avons vu au Chapitre 1, à moins que la température de l'essai ne soit très basse ou la vitesse de sollicitation très élevée, des déformations plastiques localisées ou des craquelures sont créés en tête de fissure. Ainsi, si l'on prend en compte le volume réel impliqué dans la dissipation de l'énergie il est beaucoup plus grand que celui qui serait impliqué si l'on ne considérait que la rupture de la chaîne principale des molécules situées dans le plan de rupture. Dans le cas des polymères semi-cristallins comme le POM en dessus de la température de transition vitreuse T_g , les déformations fibrillaires localisées observées en tête de fissure sont similaires aux craquelures dans les polymères amorphes [8, 14]. Toutefois, les fibrilles sont de beaucoup plus grands diamètres dans les polymères cristallins (supérieures à 100 nm dans le POM contre ~10 nm dans le PMMA) et les mécanismes de fibrillations ne sont pas les mêmes.

Pour tenter d'expliquer le comportement du POM en rupture, il est intéressant d'essayer d'appliquer des modèles moléculaires de ténacité.

6.3.5.a) Modèle de Brown.

Brown [15] propose un modèle moléculaire de ténacité pour des polymères amorphes (PMMA, PS). Il montre que la densité d'enchevêtrement, v_e , est un paramètre important car elle détermine la stabilité de la craquelure. En effet, l'existence d'enchevêtrement entre les macromolécules extraites de la zone active située de part et d'autre de la craquelure (voir le Chapitre 1) conduit à créer des liaisons latérales croisées entre les fibrilles (cross-tie fibrils). Ces

liaisons empêchent les fibrilles rompues en tête de fissure de se décharger totalement, contribuant ainsi à former l'ouverture critique en fond de fissure (CTOD). Si ces fibrilles de liaison n'existaient pas, le fond de fissure serait plat, comme le montre la Figure 6-19.

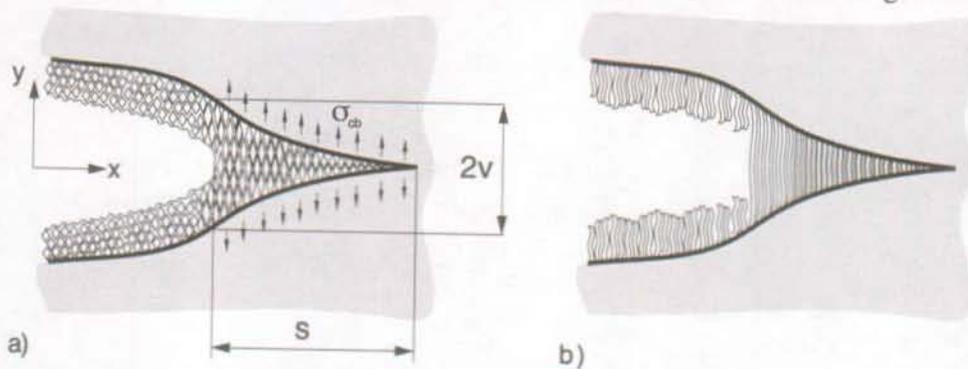


Figure 6-19: Représentation schématique d'un front de fissure avec craquelure unique. a) les enchevêtrements créent des fibrilles de liaison croisées, b) représentation simplifiée sans fibrille de liaison.

La craquelure a une longueur, \$S\$, et une épaisseur, \$2v\$. L'ouverture critique, \$2v_0\$, est donnée par:

$$2v_0 = (1 - \frac{1}{\lambda})2v \quad (6-3)$$

où \$\lambda\$ est le taux d'étirement des fibrilles.

La contrainte à l'interface craquelure-matériau plein \$\sigma_{cb}\$ est supposé constante, et ainsi:

$$G_c = \sigma_{cb} 2v_0 \quad (6-4)$$

Considérant le cas d'une fracture stable où une craquelure unique se propage en tête de la fissure, Brown a assimilé la structure fibrillaire hautement anisotrope de la craquelure à une bande de matériau élastique orthotrope (matériau anisotrope avec trois plans de symétrie perpendiculaires) d'épaisseur \$2v\$. En émettant l'hypothèse que seule une petite section de la craquelure autour du front de fissure est influencée par les fibrilles de liaison, il a postulé que la force motrice locale de la fissure se propageant dans la craquelure, \$g\$, vaut: \$g=2vW\$ avec, \$W\$, la densité d'énergie de déformation élastique (recouvrable) dans la craquelure étirée:

$$W = \frac{\sigma_{cb}^2}{2E_y} \quad (6-5)$$

où \$E_y\$ est le module d'élasticité longitudinal des fibrilles. On a donc:

$$g = \frac{2v\sigma_{cb}^2}{2E_y} \quad (6-6)$$

Considérant la craquelure comme un corps orthotrope, Brown propose l'approximation:

$$g = \frac{k_{tip}^2}{(E_x E_y)^{1/2}} \quad (6-7)$$

avec \$E_x\$ et \$E_y\$ le module d'élasticité de la fibrille dans les direction respectivement normale et parallèle à la fibrille, et \$k_{tip}\$ le facteur d'intensité des contraintes locale à la tête de la rupture.

La contrainte est maximale dans les fibrilles du plan de craquelure, à une distance $D/2$ (où D_0 est le diamètre de la première rangée de fibrille). Elle est plus grande que dans le matériau isotrope d'un facteur λ :

$$\sigma_f = \frac{\lambda k_{ip}}{(\pi D_0)^{1/2}} \quad (6-8)$$

En combinant les équations 6-6, 6-7 et 6-8 Brown propose la relation entre la contrainte maximale dans les fibrilles, σ_f , et la contrainte à l'interface craquelure-matériau plein, σ_{cb} :

$$\sigma_f = \lambda \sigma_{cb} \left(\frac{2\nu}{2\pi D_0} \right)^{1/2} \left(\frac{E_x}{E_y} \right)^{1/4} \quad (6-9)$$

Lorsque la déformation plastique est petite à l'échelle macroscopique, on peut exprimer l'énergie de rupture globale, G_{IC} , en fonction de la contrainte de rupture des fibrilles, σ_f :

$$G_{IC} = \frac{\sigma_f^2 2\pi D_0}{\sigma_{cb} \lambda^2} \left(\frac{E_y}{E_x} \right)^{1/2} (1 - 1/\lambda) \quad (6-10)$$

Si l'on admet que le processus de rupture des fibrilles à l'état vitreux résulte de la scission des chaînes qui composent la fibrille, la force nécessaire à la rupture d'une fibrille est le produit de la force nécessaire à la rupture d'une chaîne, f_s , par le nombre de chaînes effectivement enchevêtrées composant la fibrille. Brown émet l'hypothèse que tous les enchevêtrements du matériau isotrope sont conservés lors de l'écoulement du polymère pour former les fibrilles de la craquelure, et si la densité d'enchevêtrement par unité de surface est notée Σ , on a:

$$\sigma_f = \Sigma f_s \lambda \quad (6-11)$$

Le résultat final est donc:

$$G_{IC} = \frac{2\pi D_0}{\sigma_{cb}} \left(\frac{E_y}{E_x} \right)^{1/2} (1 - 1/\lambda) (f_s \Sigma)^2 \quad (6-12)$$

Or, nous savons qu'en déformation plane: $G_{IC} = \frac{K_{IC}^2}{E(1-\nu^2)}$ (6-13)

Ainsi, on peut donc écrire.

$$K_{IC} = \left(\frac{2\pi(1-\nu^2)ED_0}{\sigma_{cb}} \right)^{1/2} \left(\frac{E_y}{E_x} \right)^{1/4} (1 - 1/\lambda)^{1/2} f_s \Sigma \quad (6-14)$$

où: ν est le coefficient de Poisson et, E , le module d'élasticité global.

Cette approche a donnée des résultats probants pour le PMMA [15], et a fait l'objet de vérifications détaillées par d'autres auteurs [16].

Si on modélise la rupture du POM par l'équation 6-14 avec les grandeurs figurant dans le Tableau 6.2 pour des diamètres de fibrilles D_0 , compris entre 100 nm et 1 μ m qui est la taille des fibrilles mesurées à la température ambiante en microscopie électronique à transmission

(MET) par Plummer *et coll.* [14], on obtient une valeur estimée de K_{IC} de 10 à 64 MPa√m. Ces valeurs sont environ d'un ordre de grandeur trop élevées.

| Variable | Valeur | Référence |
|---------------|---------------------------------------|-----------------|
| f_s | 2×10^{-9} N | [14, 15, 22] |
| d_e | 6.6×10^{-9} m | [14] |
| ρ | 1430 kgm ⁻³ | |
| M_e | 3100 | [14] |
| σ_{cb} | 70 MPa | |
| Σ | 9.16×10^{17} m ⁻² | |
| λ | 4 | [6] |
| E/E_x | 50 | comme PMMA [15] |
| ν | 0.38 | |
| E | 3 GPa | |

Tableau 6.2: Grandeurs physiques utilisées pour modéliser la zone cohésive en tête de fissure en dessus de la T_g .

Ainsi, si l'on part du principe que les fibrilles se rompent principalement par un mécanisme de scission des chaînes à cause de la densité d'enchevêtrement élevée, le modèle de zone cohésive unique (du type Dugdale-Barenblatt) en régime établi ne se justifie que si la taille des fibrilles est de quelques nm (comme dans les craquelures des thermoplastes amorphes). C'est l'hypothèse à émettre pour conduire à des valeurs raisonnables de K_{IC} .

Dans le POM (comme dans beaucoup d'autres polymères semi-cristallins), l'hypothèse d'un modèle de craquelure unique ne se justifie plus dès lors que la déformation en tête de fissure est constitué d'une zone dense, de forme approximativement circulaire résultant d'un endommagement composé de craquelures diffuses. De plus, étant donné le caractère instable de la propagation de la fissure, plutôt que d'un régime établi de croissance d'une fissure précédée d'une zone cohésive unique, il s'agit du problème de l'initiation d'une fissure stationnaire entourée par une zone endommagée. Il ressort des observations fractographiques qu'il y a peu de déformation plastique globale au démarrage de la propagation instable (voir la Figure 6-18).

Admettons dans un premier temps que la zone endommagée en tête de fissure est composée de craquelures diffuses plutôt que d'une craquelure unique, et émettons l'hypothèse que la propagation instable est initiée par la rupture par scission de chaînes de la première rangée de fibrilles d'une craquelure.

Le facteur d'intensité des contrainte local, k_{iip} , de la première rangée de fibrilles au front de fissure est dérivé de l'équation 6-8, et vaut:

$$k_{iip} = ((2\pi D_o)^{1/2}) f_s \Sigma \tag{6-15}$$

Avec les valeurs du Tableau 6.2 on obtient des valeurs de k_{iip} comprises entre 2 et 6.5 MPa√m pour des diamètres de fibrilles entre 100 nm et 1 μm. C'est sensiblement plus proche des valeurs mesurées que ce que nous donne l'équation 6-14. Toutefois, si la présence de vides (cavités) diminue les propriétés élastiques dans la zone plastique, alors la concentration de contrainte locale, k_{iip} , est inférieure au K calculé par l'approche globale. La valeur calculée en appliquant le critère de Brown pour la rupture fibrillaire est donc surestimée parce qu'on a ignoré la présence de la zone plastique. C'est un problème très similaire à celui de l'écrantage en tête de fissure par des micro-fissures (comme dans certaines céramiques).

6.3.5.b) Modèles d'écrantage de la fissure.

Le concept d'écrantage de la fissure (*crack shielding*) est basé sur l'hypothèse que la redistribution de la contrainte localisée en tête de la fissure par la zone endommagée peut retarder la croissance instable de la rupture. Cette redistribution résulte de la réduction du module élastique apparent par l'endommagement local, et d'une redistribution de la déformation par ces mêmes mécanismes. L'existence même d'une zone endommagée est liée à la capacité du matériau à développer de manière stable une micro-fissuration ou des micromécanismes de déformation localisés. La rupture instable du système résulte de la coalescence des micro-endommagements dans la zone considérée.

Dans le POM, beaucoup d'indices indiquent l'existence d'une telle zone: la légère non-linéarité de la courbe de chargement avant la rupture instable (Figure 6-14), les observations microscopiques [5, 6, 8], et enfin les propriétés élastiques évoquées au § 6.2.5.

Diverses analyses d'écrantage de la fissure en plasticité restreinte ont été proposées pour les céramiques et les métaux (17-20). Dans une telle situation la ténacité globale, K_I , reste proportionnelle à la ténacité locale de la zone endommagée, k_{ip} ; la constante de proportionnalité est dans ce cas une fonction du rapport des constantes élastiques dans le matériau endommagé par les micro-fissures et dans celui non endommagé. Ainsi K_{IC} devrait continuer à dépendre de $2\pi D_o^{1/2} f \Sigma$ comme dans l'équation 6-14. De tels modèles ne prédisent pas la dépendance de la contrainte à l'interface entre la zone endommagée et le reste du matériau. Aussi longtemps que le critère de plasticité à petite échelle est respecté, c'est à dire que la structure se comporte de façon quasi-linéaire élastique, K_{IC} est indépendant du critère de plasticité de la zone endommagée.

Hutchinson [18] propose l'analyse de différents cas d'endommagement comprenant des fissures stationnaires ou en propagation stable, dans une zone endommagée par des micro-fissures distribuées aléatoirement, ou orientées perpendiculairement à la contrainte appliquée. Pour ce dernier cas, considérant l'état de contrainte à la tête d'une fissure stationnaire, il propose le rapport entre k_{ip} et K :

$$\frac{k_{ip}}{K} = \left(1 + \frac{\beta}{(1 - \nu^2)} \left(\frac{E}{E_s} - 1 \right) \right)^{-1/2} \quad (6-16)$$

où $\beta=1.0942$ et E_s est le module de Young du matériau fissuré (considéré isotropique). Des résultats similaires ont été obtenus par des approches numériques plus détaillées qui prennent en compte les interactions des cavités, et les variations de densité de cavitation [20].

Si l'on se réfère au 6e cycle des chargements cycliques en traction du § 6.2.5, $E=E_6$, $E_s=G_6$, ainsi $E/E_s=4,3$. En introduisant ces valeurs dans l'équation 6-16, cela conduit à une valeur de k_{ip}/K de ~ 0.5 . Ainsi pour le cas de rupture par scission de chaînes, la combinaison des équations 6-15 et 6-16, donne des valeurs comprises de ténacité globale entre 4 et 13 MPa√m pour des diamètres de fibrilles de 100 nm et 1 μm.

Ces valeurs sont nettement plus raisonnables que celles obtenues par le modèle de Brown, et montre que la prise en compte d'un modèle d'écrantage simple conduit à des valeurs de ténacité plausibles.

6.3.5.c) Comparaison avec les résultats.

K_{IC} et Σ

Si le modèle de rupture des fibrilles par la scission des chaînes, et l'analyse statique appliquée dans la section précédente sont valables pour décrire l'initiation de la rupture dans le POM, K_{IC} doit dépendre de la densité d'enchevêtrement. L'augmentation de la température de cristallisation T_c conduit généralement à une diminution de la densité des molécules de liaison. Or, nous avons vu que K_{IC} décroît avec T_c . Par ailleurs, étant donné que la proportion des molécules de liaison proprement dites est relativement faible [6], et étant donné les analogies apparentes entre les propriétés des polymères semi-cristallins et des amorphes en dessous de T_g , on préfère expliquer ces changements en terme d'enchevêtrements.

Dans la section précédente, l'estimation de Σ était basée sur la densité d'enchevêtrement du fondu en émettant l'hypothèse que si le matériau cristallise rapidement (comme lors du moulage par injection), il est raisonnable d'admettre que les enchevêtrements sont conservés dans le polymère solidifié.

Aux T_c plus élevées, et donc à des vitesses de cristallisations plus lentes, il est possible que les enchevêtrements soient perdus par reptation pendant la formation des lamelles. Plummer [6] a évalué le taux de perte d'enchevêtrement pendant la phase de cristallisation du POM par la théorie de la croissance des sphérolites par nucléation secondaire de Lauritzen-Hoffman [21]. Aux températures de cristallisation élevées ($T_c > 160^\circ\text{C}$), il apparaît que la reptation forcée procure une description adéquate de la cinétique de croissance. Il a conclu que même aux températures plus basses ($T_c < 160^\circ\text{C}$), où la croissance est essentiellement due à la nucléation répétée de blocs d'environ 3 replis par lamelle, la reptation peut encore avoir lieu. Il faut pour cela que le temps entre les événements de nucléation le long d'une même chaîne soit suffisamment long pour lui permettre d'atteindre son état de configuration complètement relaxé. En dessous d'environ 140°C , la nucléation est trop rapide pour permettre ne serait-ce qu'une reptation transitoire. Il considère qu'à cette température la densité d'enchevêtrement reste approximativement la même que dans le fondu ($3 \times 10^{26} \text{ m}^{-3}$). Le nombre d'enchevêtrement Σ est considéré comme proportionnel à la densité d'enchevêtrement, ν_e . Pour $T > 140^\circ\text{C}$, il a estimé la perte relative d'enchevêtrements, ν_e / ν_{0e} , par une simulation numérique du processus de nucléation. La prédiction de l'évolution de K avec M_n et T_c , basée sur l'équation 6-14 est montrée à la Figure 6-20. Pour l'ajustement aux valeurs mesurées, K est normalisé pour obtenir $K\nu_e / \nu_{0e} \approx 5$ pour la température de cristallisation la plus basse du M_n le plus élevé.

Même si la dépendance du poids moléculaire est seulement qualitativement décrite par cette approche, elle rend compte d'une façon raisonnable de l'évolution de K_{IC} avec la température de cristallisation, T_c , (comparer avec les résultats expérimentaux de la Figure 6-17). La dépendance expérimentale plus grande du poids moléculaire pourrait être la conséquence d'un mécanisme de rupture des fibrilles par désenchevêtrement. Il convient toutefois de remarquer que les résultats expérimentaux proviennent de matériaux possédant une polydispersité importante, alors que le calcul de Σ considère une répartition monodisperse du poids moléculaire.

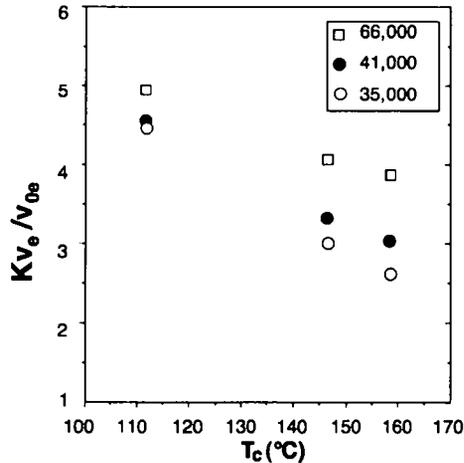


Figure 6-20: Estimation de la dépendance de K_{IC} avec la température de cristallisation, T_c ; K est normalisé de telle manière que $K_{v_e}/v_{0e}=5$ pour $M_n=66 \times 10^3$ à la température de cristallisation la plus basse.

Dépendance de K_{IC} avec la température et la vitesse de sollicitation

A des températures sensiblement plus basses que le point de fusion, ni scissions de chaînes ni désenchevêtrements par glissement de chaînes à travers les cristaux lamellaires ne peuvent être induits thermiquement [22]. Si on émet l’hypothèse qu’entre la transition γ et la température ambiante le rapport E/E_s reste constant, l’équation 6-16 ne prédit pas de dépendance de K_{IC} avec la température. Cela semble être en accord avec les résultats de la Figure 6-15 où K_{IC} reste approximativement le même qu’à la température ambiante jusqu’à T_γ pour tous les poids moléculaires. Au vu de ces résultats, la décroissance de la ténacité avec la vitesse de sollicitation est quelque peu inattendue. Habituellement, on trouve une similitude de comportement en diminuant la température et en élevant la vitesse de sollicitation. Ici, le K_{IC} des poids moléculaires les plus bas semble même croître légèrement en diminuant la température. Malgré tout, ces résultats confirment les travaux d’autres auteurs [23, 24, 25].

Il faut relever que le module de Young mesuré en traction augmente sensiblement lorsque la température diminue, alors qu’il ne varie pratiquement pas à température ambiante avec la vitesse de déformation. Il est possible que le module d’élasticité dans la zone endommagée, E_s , commence à augmenter avec la vitesse de déformation avant que E n’augmente pour une même vitesse, conduisant à une diminution du rapport E/E_s . Nous avons vu au Chapitre 1 que dans les polymères amorphes l’augmentation de la vitesse de sollicitation (ou la diminution du temps alloué à la formation des craquelures) peut déboucher sur une transition de comportement conduisant à une réduction drastique du taux d’étirement des fibrilles ainsi que de la longueur des craquelures. Si il en est de même dans les parties fibrillaires de la zone endommagée qui nous occupe, une chute de E/E_s qui diminuerait l’effet d’écrantage n’est pas à exclure. De plus, dans le modèle de Brown également, une diminution de λ avec l’augmentation de la vitesse conduirait à une augmentation de k_{ip} (équation 6-8), car on ne s’attend pas à un changement important du diamètre des fibrilles D_0 .

La Figure 6-21 montre l’énergie d’initiation G_{IC} en fonction de la température et de la vitesse. Les valeurs de G_{IC} reportées en fonction de la température (fig. a) sont calculées par l’équation 6-13 à partir des K_{IC} de la Figure 6-15 et des modules E de la Figure 6-3. Les valeurs de G_{IC}

reportées en fonction de la vitesse (fig. b) ont été calculées directement par l'intégration des courbes expérimentales force-déplacement. Ainsi, les observations de la Figure 6-21 qui montrent une diminution de G_{IC} avec la température et l'accroissement de la vitesse sont qualitativement consistantes. L'accroissement apparent de G_{IC} aux vitesses de sollicitation les plus élevées peut être mis en relation avec les restrictions expérimentales décrites au Chapitre 4, applicables aux hautes vitesses d'essai, à savoir la présence possible d'une énergie cinétique importante, voire d'effets d'échauffement adiabatique.

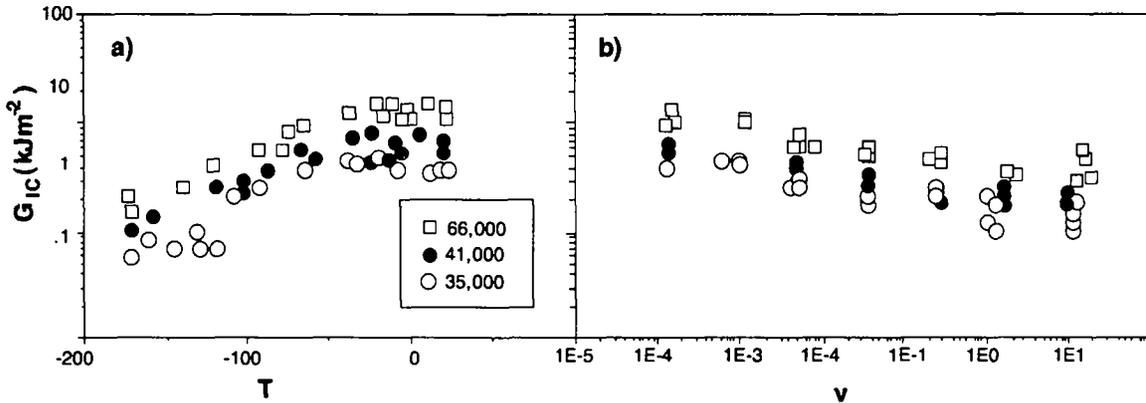


Figure 6-21: Energie d'initiation, G_{IC} , en fonction de a) la température, T , (pour une vitesse de 1.6×10^5 m/s, et b) la vitesse de sollicitation, v .

Bien que l'examen de la Figure 6-21 le suggère, il est difficile de défendre l'idée qu'un accroissement de vitesse de sollicitation, même si il est de cinq décades produit le même effet qu'un changement de température de 100K.

Récemment Leever [26] a émis l'idée de l'existence d'un important échauffement adiabatique supportant les faibles valeurs de l'énergie de rupture qu'il a mesuré en propagation rapide sur le POM. Il justifie cette hypothèse par la similitude des comportements en propagation rapide entre le POM et le polyéthylène de haute densité sur lequel il a mis en évidence un tel échauffement adiabatique [27]. Il propose un modèle pour prédire la valeur de l'énergie de rupture en propagation rapide. Les valeurs de G qu'il a obtenu en propagation rapide par des essais en double torsion à haute vitesse sur le même POM que le nôtre ($M_n=66'000$) sont voisines de $3,5 \text{ KJm}^{-2}$ à des vitesses comprises entre 100 et 300 ms^{-1} . Ces valeurs sont identiques à nos valeurs d'initiation mesurées à 1 ms^{-1} . La comparaison de ses résultats avec les nôtres tend à prouver que la valeur limite de l'énergie d'initiation, G_{IC} , vers laquelle tendent les mesures reportées à la Figure 6-21 est la valeur G_{ID} qui est l'énergie nécessaire à entretenir la propagation de la rupture à haute vitesse. Si il en est ainsi, le volume et les mécanismes de déformation locaux en tête de pré-fissure impliqués dans l'initiation aux vitesses de chargement élevées, sont identiques à ceux présents en tête fissure lors de la propagation de la rupture à haute vitesse.

6.4. CONCLUSIONS.

Aux alentours de la température ambiante le module d'élasticité ne varie pas ou peu avec la vitesse de déformation, mais augmente de façon substantielle lorsque la température descend en dessous de la transition γ . A ce régime de température, la rupture est semi-fragile et caractérisée

par une déformation importante mais pour une grande partie réversible. Elle engendre la formation de vides disséminés dans le matériau. Les propriétés en traction des POM de diverses masses moléculaires se distinguent essentiellement par une élongation à la rupture plus grande pour les masses moléculaires les plus élevées. Cette constatation reste vraie aux grandes vitesses de déformations et explique la ténacité plus grande du $M_n=66'000$ aux grandes vitesses de sollicitation. La potentialité de développement d'une zone endommagée dissipatrice d'énergie en tête de fissure est plus élevée pour les matériaux de grande masse moléculaire. De fait, dans les essais de rupture en tension compacte, la fracture résulte d'une propagation instable qui traverse soudainement la zone plastique développée pendant le chargement. De la même façon qu'en traction, cette zone plastique contient une densité élevée de petites cavités semblables à des microfissures de taille et d'espacement de l'ordre de $0.1 \mu\text{m}$.

L'application d'un modèle moléculaire de ténacité développé par Brown pour la propagation de fissures dans les craquelures des polymères amorphes conduit à des valeurs de ténacité globale K_{IC} sensiblement plus élevées que celles mesurées expérimentalement pour l'initiation de la rupture dans le POM. Toutefois, en appliquant le même modèle, mais en admettant un critère de rupture local, celui de la première rangée de fibrilles en tête de fissure, on calcule une valeur théorique locale k_{ip} plus proche de la réalité. L'utilisation d'un modèle d'écrantage pour évaluer la ténacité globale à partir de la valeur locale définie ci-dessus conduit à une estimation réaliste de la ténacité. Par ce modèle, les valeurs d'initiation dépendent essentiellement du rapport des modules des régions endommagées et non-endommagées, ainsi que du nombre d'enchevêtrements par unité de surface en tête de fissure Σ .

A température ambiante la dépendance de K_{IC} avec Σ a été démontrée par l'utilisation de différentes températures de cristallisation. La ténacité décroît avec l'augmentation de T_c et la diminution de masse moléculaire. Mais la plus grande influence que prévus de la masse moléculaire suggère que du désenchevêtrement pourrait être impliqué dans la rupture des fibrilles plutôt que seulement des scissions de chaînes comme le prévoit le modèle. Par ailleurs, ce modèle qui décrit bien la relative insensibilité de K_{IC} à la diminution de la température prédit mal l'importante diminution de la ténacité avec l'augmentation de la vitesse de chargement à la température ambiante. L'hypothèse émise d'un comportement purement élastique linéaire de la zone avoisinant le front de fissure pourrait s'avérer fautive en raison des valeurs localement élevées des contraintes et des vitesses de déformations en tête de fissure. Autrement dit, l'hypothèse que la dissipation plastique par écoulement ne joue pas de rôle dans l'initiation de la rupture devrait être soigneusement vérifiée. A ce sujet, la thèse de P. Scaramuzzino actuellement en cours au Laboratoire de Polymères et qui vise à étudier les micromécanismes d'endommagement du POM sollicité en fatigue statique et dynamique.

6.5. ENGLISH CAPTIONS

Table 6-1: Degree of cristallinity, fusion temperature, T_f , and yield stress measured in compression, σ_y , for different crystallisation temperature, T_c , and two molecular weight, M_n .

Table 6-2: Material properties used to model the cohesive of POM above T_g .

Figure 6-1: The dynamic storage modulus, E' , and the loss tangent, $\tan \delta$, plotted versus temperature, T , for the POM of $M_n=41'000$ [4].

Figure 6-2: a) Typical stress-strain curves at different temperatures (here for a strain rate of approximately $1 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$, and $M_n=41'000$) b) Maximum tensile stress for different molecular weights over an extended temperature range for a strain rate of $1 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$.

Figure 6-3: The tensile modulus as a function of strain rate and temperature for $M_n=41'000$.

Figure 6-4: Typical stress, σ ,-strain, ϵ , curves at different strain rates, $\dot{\epsilon}$, at room temperature ($M_n=66'000$).

Figure 6-5: a) The tensile modulus, E , b) nominal stress at yield, σ_y , and c) the rupture strain, ϵ_r , versus strain rate, $\dot{\epsilon}$. The molecular weights represented are $M_n=66'000$ and $41'000$.

Figure 6-6: a) Specific energy, W_s , and b) specific energy to the yield stress, W_{sn} , up to 20% and 35% strain, versus the strain rate, $\dot{\epsilon}$. The molecular weights represented are $M_n=66'000$ and $41'000$.

Figure 6-7: Fracture surfaces from tensile experiments on injection moulded POM specimens, observed in SEM. Tensile speed: a) 10^4 ms^{-1} , b) 10 ms^{-1} . ($M_n=66'000$).

Figure 6-8: Higher magnification of the fracture initiation zones of figure 6-7. a) 10^4 ms^{-1} , b) 10 ms^{-1} .

Figure 6-9: Optical microscopic observation in polarised light of the morphology of an injection moulded POM. ($M_n=66'000$).

Figure 6-10: Radius of the initiation zone (plastic zone) developed in tension in the POM of $M_n=41'000$. a) versus the tensile velocity, v , b) versus the temperature, T .

Figure 6-11: Fractions of the elastic, ϵ_{el} , (recoverable) and plastic, ϵ_{pl} , (unrecoverable) strain, versus the total strain, ϵ , in POM. $M_n=66'000$, the strain rate was $5 \times 10^2 \text{ s}^{-1}$.

Figure 6-12: The tensile loading and unloading cycles on a POM of $M_n=66'000$. Tensile velocity 1 mms^{-1} (strain rate: $5 \times 10^2 \text{ s}^{-1}$). Right: Tensile modulus, E , and shear modulus, G , measured for the different cycles.

Figure 6-13: The specific density, ρ , the overall energy, W_s , tot, and the dissipated energy, $W_{s,plastic}$, versus the total strain, ϵ , for POM. Tensile velocity: 0.1 mms^{-1} , $M_n=66'000$.

Figure 6-14: Typical force, F , versus displacement, D , diagram in a CT experiment for POM of $M_n=66'000$. Testing velocity: 10^3 ms^{-1} . 'Stick slip' fracture.

Figure 6-15: Stress intensity factor, K_{IC} , plotted against temperature, T , for POM of three different molecular weights.

Figure 6-16: Stress intensity factor, K_{IC} , plotted against the crack tip loading rate, K , for POM of three different molecular weights. The upper scale shows the testing velocity, v .

Figure 6-17: Stress intensity factor, K_{IC} , plotted against the crystallisation temperature, T_c , for POM of three different molecular weights. (Testing speed: 1 mm min^{-1}).

Figure 6-18: Post mortem fracture surfaces of POM observed in SEM. Testing speeds: a) 10^{-3} ms^{-1} , b) 6.2 ms^{-1} , c) 10 ms^{-1} . ($M_n 41'000$)

Figure 6-19: Schematic representation of a craze in front of a crack tip. a) Cross-tie fibrils resulting from the molecular entanglements are represented, b) Without cross-tie fibrils

Figure 6-20: Estimates of the dependence of K_{IC} from the crystallisation temperature in POM, T_c ; K is chosen such that $Kv_e/v_{\alpha_e}=5$ for $M_n=66'000$ at the lowest T_c .

Figure 6-21: Estimates of G_{IC} , plotted against: a) temperature, T , (for a testing speed of $1.6 \times 10^5 \text{ m/s}$, and b) testing speed, v .

6.6. REFERENCES

- 1 Plummer C.J.G., Béguelin Ph., Kausch H.H, *Impact and Dynamic Fracture of Polymers and Composite*, ESIS 19, Williams J.G. & Pavan A. ed., (1995), Mechanical Engineering Publications, London, p. 265.
- 2 Plummer C.J.G., Béguelin Ph., Kausch H.H, *Polym. Eng. Sci.*, **35**, (1995), 17, p.1300
- 3 Gray R.W, *Jour. Mat. Sci.*, **8**, (1973), p. 1673
- 4 Kausch H.H., Plummer C.J.G, Scaramuzzino P., *1st Internat. Conf. on Mechanics of Time-Dependent Materials*, Ljubliana, September 11-13, 1995
- 5 Menu P., Mocostructure et propriétés mécaniques du POM.,Travail de diplôme, EPFL Laboratoire des polymères, (1993).
- 6 Plummer C.J.G., Menu P. , Cudré-Mauroux N., Kausch H.H, *J. Appl. Polymer Science*, 1995, **55**, 489
- 7 Rodriguez E.L., *J. of Mat. Sci. Letters* ,**14** (1995), pp 1230
- 8 Geil P.H., *Polymer Single Crystals*, (1973), 2nd edition, John Wiley & Son, New York
- 9 Kreitmeier S., Wittkop M., Wagner T., Götitz D., Zietz R, *Colloid. Polym. Sci.*, **273**, (1995), p. 1008
- 10 Miles M.J., Baer E., *J. of Mat. Sci.*, **14**, (1979), p 1254
- 11 Moet A., Palley I., Baer E., *J. App. Phy.*, **51**, (1980), p. 5175
- 12 Bucknall C. B., *Toughened Plastics*, (1970),Applied Science, London
- 13 Castellani L., Maestrini C., *Polymer*, **31**, (1990), p. 2279
- 14 Plummer C.J.G., Cudré-Mauroux N., Kausch H.H, *Polym. Eng. and Sci.*, **34**, (1994), 4, 318.
- 15 Brown H. R. *Macromolécules* , **24**, (1991), 2752.
- 16 Hui C.Y., Ruina A., Creton C., Karger E.J., *Macromolecules* ,**25**, (1992), 3948
- 17 Hoagland R.G., Embury J.D, *J. Am. Ceram. Soc.*, **63**, (1980), 404.
- 18 Hutchinson J.W.:, *Acta Metallica*, **35**, (1987), 1605.
- 19 Ortiz M. *Trans. ASME.*, **54**, (1987), 54.
- 20 Wu S. Chudnovsky A., *Int. J. Fracture*, **59**, (1993), 41.
- 21 Lauritzen J. L., Hoffman J.D., *J. Res. nat. Bur. Stand.*, **64A**, (1960), 73.
- 22 Kausch H. H., *Polymer Fracture* ,(1978) Springer, New York.
- 23 Bandyopadhyay S., Roseblade J. R., Muscat R., *J. Mater. Sci.*, **28**, (1993), 3777.
- 24 Hashemi S, Williams J. G., *J. Mater. Sci.*, **20**, (1985), 4202.
- 25 Adams G. C., Bender R. G., Crouch B. A., Williams J. G., *Polym. Eng. and Sci.*, **30**, (1990) 4, 241.
- 26 Leever P.S., *Int. J. Fracture*, **73**, (1995), p. 109.
- 27 Leever P.S, Morgan R.E., *Eng. Fract. Mech.*, **52**, (1995), 6, p. 999

CHAPITRE 7

7.COMPORTEMENT MECANIQUE AUX GRANDES VITESSES DES POLYMETHACRYLATES DE METHYLE MODIFIES CHOC

7.1.INTRODUCTION

La plupart des applications des matériaux aux hautes vitesses de déformation exigent d'une manière ou une autre des capacités dissipatives d'énergie de la part du matériau. Ces applications font appel à des propriétés spécifiques différentes des matériaux selon que l'intégrité de la structure doit être garantie pour faire face par exemple à des sollicitations répétées ou au contraire qu'il s'agisse d'un cas exceptionnel de sollicitation de la structure qui autorise sa perte de fonctionnalité ultérieure.

Dans le premier cas on fait en général appel aux propriétés de frottement interne des matériaux combinées avec une grande potentialité de déformation élastique à l'état caoutchoutique. L'utilisation des élastomères pour la fabrication de butées dans divers domaines industriels en est un exemple concret. Dans le deuxième cas les capacités de déformation plastique des matériaux qui composent la structure jouent un rôle capital pour dissiper un maximum d'énergie avant la ruine de l'élément. Les exemples d'application sont nombreux, tant dans le domaine du quotidien (sécurité des véhicules de transport, objet ménagers...) que celui de l'occasionnel (tremblement de terre, blindage, aérospatiale...). La ténacité du matériau est directement reliée à sa capacité à développer des mécanismes de déformation hautement dissipatifs en terme énergétique et à entretenir ces mécanismes jusqu'aux plus grandes déformations possibles. Nous avons vu au Chapitre 1 que les mécanismes de déformation plastique peuvent être soit généralisés et/ou homogènes soit localisés et inhomogènes. Cette capacité de plasticité peut être intrinsèque au matériau ou encore provoquée par l'élaboration de matériaux spécifiques dits *modifiés choc*, à structure hétérogène.

Sous certaines conditions, la déformation des matériaux à structure hétérogène peut engendrer une plasticité généralisée à l'échelle macroscopique initiée par des micro-mécanismes localisés autour des hétérogénéités ou des défauts de structure. Ces propriétés sont de plus en plus utilisées pour l'élaboration de nouvelles matières plastiques résistantes au choc basées sur des copolymères, des alliages de polymères ou encore des composites. Cette classe de matériaux est abordée ici par l'étude du comportement des *Polyméthacrylates de méthyle modifiés au choc*.

Les propriétés d'absorption d'énergie réduites des polyméthacrylates de méthyle (PMMA) purs résultent d'un comportement fragile à la température ambiante, et les rendent inopérants dans le domaine des applications au choc. A l'instar des solutions trouvées pour augmenter la ténacité d'autres matières plastiques au comportement intrinsèquement fragile comme le Polystyrène [1] ou les résines époxydes [2, 3], la modification des PMMA par l'inclusion d'une phase caoutchoutique connaît une intense activité de recherche depuis une quinzaine d'années. Une des conditions posée pour le développement de PMMA choc est que la modification ne doit

pas altérer notablement les bonnes propriétés optiques de la matrice, car l'objectif industriel est de développer un concurrent au polycarbonate.

La quasi totalité des études portant sur les propriétés mécaniques des PMMA choc sont basées sur les résultats obtenus à une basse vitesse de sollicitation (mode statique) et à une seule vitesse de choc (en général, essai Charpy ou Izod). Les transitions ductile-fragile, lorsqu'elles sont abordées le sont par le biais de la température. Dans ce travail, nous avons délibérément choisi d'étudier les transitions de comportement des PMMA choc à la température ambiante par le balayage d'une plage étendue de vitesses de sollicitation.

7.2. LA MODIFICATION DES PMMA

Pour conserver la propriété de transparence de la matrice, la taille de la phase incluse doit être plus petite que la longueur d'onde de la lumière visible. L'utilisation de particules à structure de type 'salami' comme celle incluses dans le Polystyrène pour donner lieu au hiPS (high impact Polystyrène), dont l'optimum de taille est de 1 à 3 μm [4] conduirait la perte des propriétés optiques. On utilise donc en général des particules sphériques d'un diamètre maximum de 0.2 à 0.4 μm , dont l'indice de réfraction est ajusté à celui de la matrice. Industriellement le mélange des particules modificatrices avec la matrice est réalisé au stade de la production des granulés. Ainsi la présence d'un processus de cisaillement favorise l'homogénéisation du mélange. Pour la production de PMMA coulé où aucun cisaillement n'est engendré par la mise en oeuvre, Lee *et col.* [5] ont étudiés la possibilité de mélanger les particules dans le MMA avant la coulée. Les propriétés mécaniques se sont avérées intéressantes, en dépit des agglomérats de particules et de leur mauvaise adhésion à la matrice. L'alternative récemment proposée est l'élaboration d'un réseau Polyuréthane-PMMA interpénétré [6]. Dans la suite de ce travail ce type de matériau sera abrégé IPN, de l'appellation anglaise *Interpenetrating Polymer Networks*.

7.2.1. Les matrices PMMA

Pour la préparation des mélanges choc dans la vis d'extrusion on utilise généralement une matrice PMMA de bas poids moléculaire. Bien que les propriétés mécanique des matrices de masse moléculaire plus élevée soient meilleures, l'utilisation de PMMA d'un M_w situé aux alentours de 130'000 à 170'000 g mol^{-1} est nécessaire pour obtenir une viscosité suffisamment basse pour un mélange homogène avec les particules.

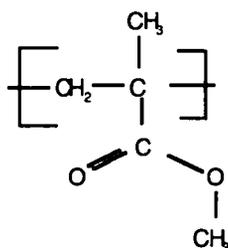


Figure 7-1: Structure chimique des matrices PMMA

Dans le cas des IPN, la polymérisation *in situ* conduit à une réticulation de la phase PMMA comme celle du PU.

7.2.2. Composition et morphologie des nodules de modification

L'utilisation d'une phase dispersée à l'état caoutchoutique dans la matrice vitreuse conduit généralement à une augmentation de la ténacité mais aussi à une diminution des propriétés statiques telles que le module d'élasticité ou la contrainte au seuil plastique. Il s'agit donc de trouver le meilleur compromis des propriétés sur toute la gamme de vitesse d'utilisation.

Il est établi que les propriétés statiques diminuent avec l'augmentation de la fraction volumique de phase élastomère et qu'au contraire, l'énergie de rupture et la ténacité augmentent avec la fraction de particules [7-15]. Certains auteurs ont constaté que la taille des particules joue un rôle important dans l'augmentation de la ténacité [12, 13, 16]. Les variables d'optimisation des propriétés sont donc le contenu en particules, leurs natures, leurs morphologies et leurs tailles.

Dans les procédés industriels d'élaboration des particules, leur phase caoutchoutique est préparée séparément de la matrice par polymérisation en émulsion [17-20]. Elle est constituée d'un copolymère d'acrylate de butyle et de styrène qui est réticulé par un diméthacrylate. Le procédé permet de conserver la forme sphérique lors du mélange avec la matrice et la mise en oeuvre. Pour assurer une bonne compatibilité entre les particules et la matrice, elles sont entourées d'une écorce de PMMA dont une partie des chaînes est greffée sur la phase caoutchoutique [21]. La présence de l'écorce de MMA évite les agglomérats de particules et assure une adhésion optimale entre la phase élastomère et la matrice. L'absence d'une telle coquille autour de l'interface conduit à des propriétés au choc médiocres des mélanges [22]. Du point de vue de la morphologie, une alternative à la structure noyau mou (Figure 7-1 a) est celle à noyau dur et coquille molle (Figure 7-1b). Cet artifice permet de contenir la fraction de la phase élastomère incluse tout en ajustant la taille et la fraction volumique afin d'optimiser les propriétés.

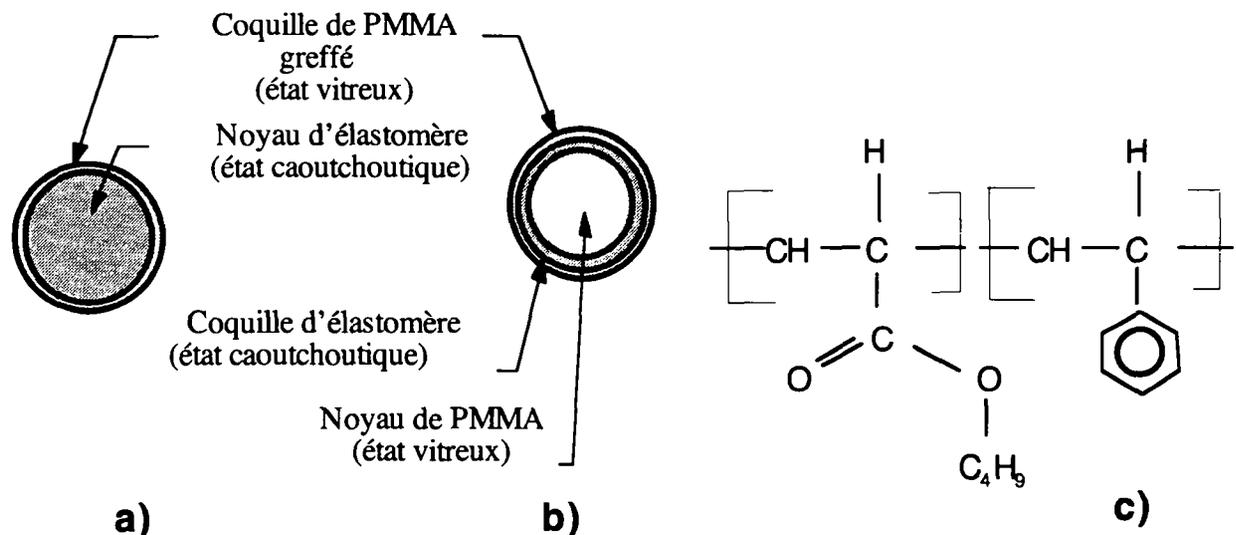


Figure 7-1: Morphologie des nodules modificatrices, a) à deux couches de type noyau mou, b) à trois couches de type noyau dur-écorce molle. c) Structure chimique des monomères de la phase caoutchoutique

L'élaboration des particules à trois couches, voire quatre couches [12, 13] est le résultat d'un procédé d'élaboration séquentiel des couches.

Dans la suite du travail, les particules à deux couches de type noyau mou seront désignées par la notation **2L** (2 layers) et celles à trois couche de type noyau dur-écorce molle par la désignation **3L**.

7.2.3. Morphologie des réseaux de polymères interpénétrés (IPN)

La morphologie des IPN est beaucoup plus complexe que celle des matériaux modifiés par des nodules. La technique d'élaboration des réseaux interpénétrés a été découverte dans les années 60 par Frisch et Sperling [23, 24, 25]. La synthèse juxtaposée de deux polymères (ou plus) ne conduit pas exactement à l'interpénétration à l'échelle moléculaire, mais au mieux à l'interpénétration de phases séparées pouvant former une morphologie co-continue à l'échelle de quelque dizaines de nanomètres [26]. Jin et Meyer [27, 28] ont développé la technique qui permet de combiner deux réseaux de polymères *in situ* dans le moule par l'incorporation simultanée de tous les monomères et des précurseurs préalablement mélangés.

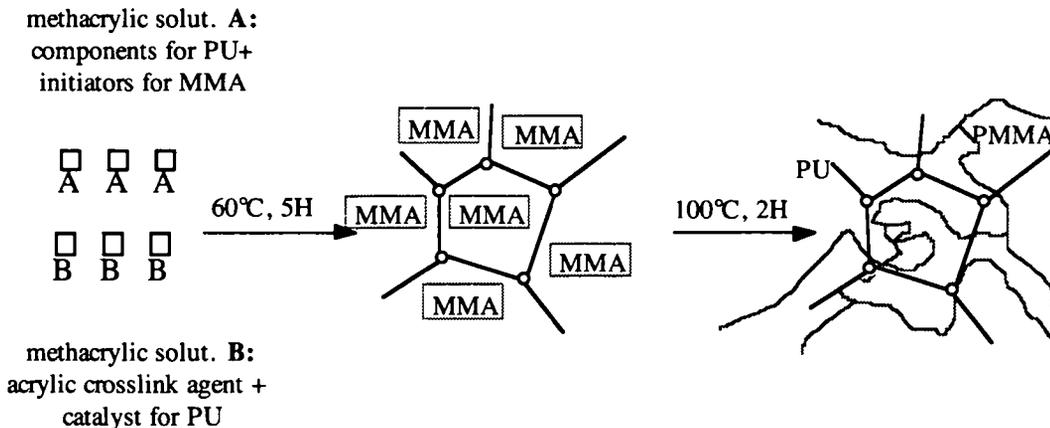


Figure 7-2: Schéma de principe de la synthèse simultanée des réseaux interpénétrés PU-PMMA [6]

Cette technique est appliquée pour la production de plaques coulées de PMMA modifié par une petite fraction de Polyuréthane (PU) [29]. La morphologie et la transparence ne dépendent pas seulement de la fraction de la phase caoutchoutique PU, mais essentiellement de la cinétique de réaction du matériau. La morphologie observée par Heim *et col.* [6] consiste en une inclusion de nodules de PMMA d'une taille de 0.5 à 10 μm dans le réseau PU-PMMA pour les fractions inférieures à 6%. Pour des fractions de PU supérieures, la taille des domaines de PMMA diminue jusqu'à la formation d'un réseau interpénétré à très petite échelle (vers 20% de PU) possédant deux transitions vitreuses séparées à la caractérisation thermomécanique.

La séparation des phases des systèmes IPN PU-PMMA a fait l'objet d'une publication récente de Mishra et Sperling [30] qui proposent un diagramme de phase métastable. Ce diagramme tridimensionnel de forme tétraédrique décrit la formation des gels et la séparation des phases des quatre composants du système, soit les deux prépolymères MMA et U, et les deux polymères PMMA et PU.

7.2.4. Matériaux étudiés.

Nous avons étudiés les propriétés des PMMA modifiés dans le cadre de plusieurs projets. La plupart des résultats ont été publiés séparément, et nous tenterons d'inclure ici les aspects les plus marquants analysés comparativement. Ces projets, dont certains sont encore en cours sont:

- 1) L'étude de l'influence de la fraction volumique de particules sur les propriétés de rupture des PMMA choc qui a constitué la partie de la thèse de O. Julien de l'ESPCI réalisée conjointement au LP [14], [37, 38].
- 2) Les essais effectués sur le PMMA choc dans le cadre de l'ESIS (European Society for Integrity of Structures) [31].
- 3) Les projets de semestres proposés aux étudiants des matériaux [32, 33].
- 4) L'étude des PMMA choc en collaboration avec Ph. Heim et Ph. Tordjeman du Groupe de Recherche de Lacq (GRL) d'Elf Atochem (Fr) [34]
- 5) L'étude des propriétés des PMMA choc en collaboration avec le Research Institute of Applied Mechanics (RIAM) de l'Université de Kyushu à Fukuoka (Japon) [35]

Les principales caractéristiques des matériaux étudiés au cours de ces projets sont résumées dans le Tableau 7.1.

| Désignation dans cette étude | Désignation commerciale | Provenance | Type de morphologie et diamètre de la partie molle des particules | Fraction volumique de phase modificatrice (%) | Masse moléculaire de la matrice M_w ($g\text{mol}^{-1}$) | Etude No |
|------------------------------|-------------------------|------------|---|---|--|----------|
| 2L0 | PD2773 | Norsolor | - | - | 132'000 | 1 |
| 2L15 | - | GRL | mou-dur, 140 nm | 15 | 132'000 | 1 |
| 2L30 | - | GRL | mou-dur, 140 nm | 30 | 132'000 | 1 |
| 2L45 | - | GRL | mou-dur, 140 nm | 45 | 132'000 | 1 |
| 3L30 | Altuglas EI-CH 50 | GRL | dur-mou-dur, 200nm/250nm | 30 | 130'000 | 2, 3, 4 |
| 2LB | - | GRL | mou-dur | 45 | 122'500 | 4 |
| IPN | Ch-Ci 160 | GRL | Réseaux interpénétrés | 6 | réticulée | 3, 4 |
| CU | - | RIAM | - | - | 2'731'000 | 5 |
| EU | - | RIAM | - | - | 136'000 | 5 |
| EM20 | - | RIAM | dur-mou-dur 180/230 | 20 | 120'200 | 5 |
| PM40 | - | RIAM | dur-mou-dur 230nm/300nm | 40 | 143'000 | 5 |
| GS 233 | Plexiglas | Röhm | - | - | 4'180'000 | 5 |

Tableau 7.1: Résumé des principales caractéristiques des PMMA étudiés.

Certains de ces matériaux ont été étudiés en traction et en rupture, d'autres l'ont été en rupture seulement. Les propriétés de rupture sont mises en relation avec les paramètres de la phase modificatrice.

7.2.5. Caractérisation de la morphologie des matériaux étudiés.

Il est relativement difficile d'observer la morphologie de la phase modificatrice. Le seul moyen est la microscopie électronique à transmission (MET).

Pour être transparents aux électrons, les échantillons doivent être suffisamment minces. On utilise des coupes prélevées dans des échantillons massifs par ultramicrotomie. Les films de 100 à 250 nm d'épaisseur découpés à la température ambiante par un couteau en diamant ne présentent spontanément que peu de contraste au faisceau d'électron. Pour observer la phase caoutchoutique il est souhaitable de procéder à un contrastage par le RuO₄. Ces molécules se fixent facilement sur la phase caoutchoutique par une réaction d'oxydation. Comme la stabilité du PMMA au faisceau d'électron est mauvaise, on recourt à des grilles en Cu revêtues par un film de carbone amorphe comme support.

Bien que délicates et longues, les opérations de découpe et d'observation procurent des informations vitales sur les matériaux étudiés. Ces informations sont indispensables si l'on veut tenter de corrélérer le comportement de ces matériaux avec leurs morphologies.

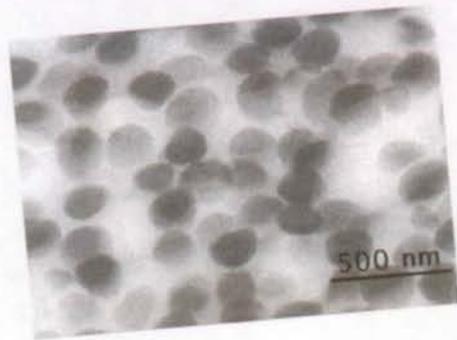
La Figure 7-3 montre la morphologie à l'état non déformé de la plupart des systèmes étudiés ici. La phase foncée des photos correspond à la phase modificatrice caoutchoutique. Les nodules 2L, à noyau dur et écorce molle, comportent une phase plus claire incluse dans la phase caoutchoutique. Ces observations ont été réalisées à l'aide du microscope électronique à transmission Philips EM300 à 100 kV.

7.3. PROPRIETES MECANIQUES DES PMMA CHOC: REVUE DE LA LITTERATURE

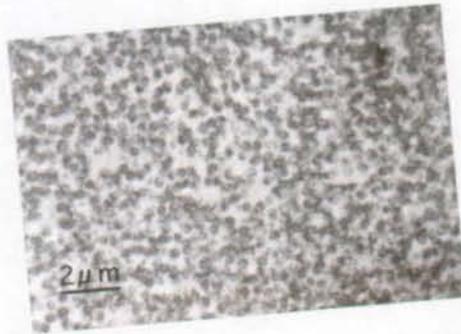
En raison de l'intérêt porté aux matériaux modifiés par des particules caoutchoutiques en général, la littérature est assez abondante. Elle est plus limitée en ce qui concerne les PMMA, et assez peu abondante concernant les IPN PU-PMMA. Nous en proposons ci dessous un rapide survol.

7.3.1. PMMA renforcés par des particules.

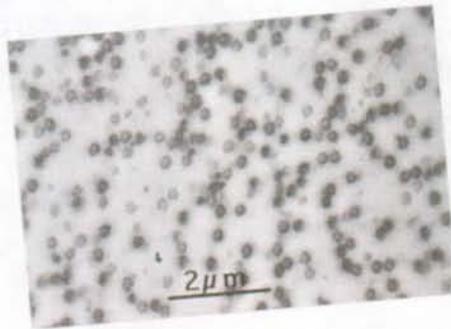
En étudiant l'effet de la fraction des particules sur cinq décades de concentration, Mauzac et Schirrer [9, 15] ont mis en évidence la disparition progressive de la rupture du PMMA par une craquelure unique. Pour un contenu en particules en dessus de 4%, ils proposent l'existence d'une zone endommagée qui s'étend avec l'élévation de la fraction de nodule. L'influence de la fraction de particule modificatrice a également été étudiée par d'autres auteurs [10, 16, 36] ainsi que par Julien [14] dans sa thèse de doctorat à laquelle nous avons participé activement et dont les résultats sur lesquels nous reviendrons ont fait l'objet de publications communes [37, 38]. Bien que la morphologie des particules diffère d'une étude à l'autre, l'optimum de ténacité est obtenu avec une fraction volumique de particules située entre 25 et 40% [10, 11, 14]. La plupart des études s'accordent sur un diamètre optimal des particules de l'ordre de 250 nm [13, 16]. Par leurs expériences de fluage Bucknall *et col.* [7], ou encore celles de traction à basse vitesse de Schirrer [39], ces auteurs n'ont mesuré qu'un faible changement de volume, même sur des matériaux fortement blanchis par des déformations au delà du seuil de plasticité macroscopique. Ils émettent l'hypothèse que la plasticité de la matrice en cisaillement est le phénomène principal impliqué dans les grandes déformations à petite vitesse de déformation.



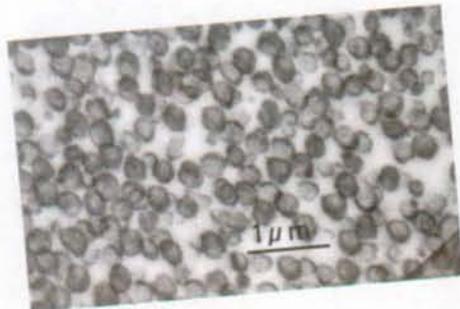
2LB



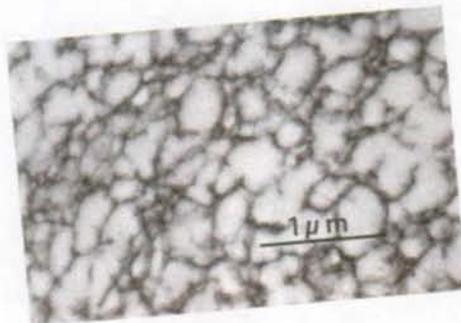
3L30



EM 20



PM 40



IPN

Figure 7-3: Structure des phases de renforcement caoutchoutiques des principaux PMMA étudiés. Coupes de 100-250 nm d'épaisseur, prélevées à l'ultramicrotome. Contrastage au RuO₄. Observation au TEM Philips EM 300, 100 kV.

Dans leur étude sur l'influence de la vitesse de déformation en traction d'un PMMA modifié par des nodules dur-mou-dur du type 3L, Frank et Lehmann [40] avaient observé l'importante corrélation entre l'augmentation de la vitesse de déformation et l'apparition d'une déformation volumique synonyme de cavitation pour des déformations supérieures à 3%. Par la suite, d'autres auteurs [41] ont confirmé ces observations. Dans l'une des premières études sur le PMMA modifié, Hooley *et col.* [42] avaient déjà observé la plus grande ténacité d'un matériau modifié par des particules 3L comparativement aux particules 2L. Toutefois leur étude portait sur des disques non-entaillés, et bien qu'ayant utilisé la même fraction de particules (~24%), elle ne mentionnait pas si les deux types de nodules étaient de taille similaire. D'autres auteurs ont également utilisé des particules à deux et trois couches [9, 15]. Plus récemment, plusieurs types de morphologie ont fait l'objet d'études comparatives à l'Université de Manchester [13, 43]. Des matrices ont été modifiées par des particules de deux à quatre couches de tailles et d'épaisseurs des couches molles différentes. Les matériaux ont été sollicités en traction à $3 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ et au choc Charpy à 0.8 ms^{-1} . Ces études montrent clairement que le module et la contrainte au seuil plastique diminuent linéairement avec la fraction de caoutchouc. Dans cette situation, les particules 3L procurent des propriétés meilleures que les particules 2L pour un diamètre et une fraction donnée de particule, parce que le volume de caoutchouc est plus petit. Par diffusion des rayons X aux petits angles, ces auteurs ont clairement mis en évidence la formation de cavités dont la structure est orientée parallèlement à l'axe de traction.

Les paramètres des études citées ci-dessus sont nombreux, et le plus souvent la comparaison des résultats est difficile parce que les méthodes de mesure des propriétés mécaniques et surtout les vitesses de sollicitation varient d'un auteur à l'autre. Nous avons résumé les tendances dégagées par ces études dans le Tableau 7.1.

7.3.2. Réseaux de polymères interpénétrés

Dans les années 70, Allen *et col.* [44-49] ont synthétisé des réseaux de PMMA imbriqués dans une matrice de PU par polymérisation interstitielle simultanée. Ces matériaux aux propriétés optiques similaires à celles du PMMA pur comportaient deux phases distinctes et donc deux T_g . Les propriétés choc de ces mélanges sont aussi intéressantes que celles d'autres matériaux renforcés par des particules de caoutchouc, pour autant que la T_g de la phase caoutchoutique soit située en dessous d'environ -30°C . La position de la T_g dépend de la densité de réticulation du PU; une réticulation importante décale la T_g vers la température ambiante, et la résilience d'une formulation donnée diminue lorsque la température de transition α augmente. Ils remarquèrent que l'augmentation de la mobilité (pic α prononcé en caractérisation thermomécanique) de la fraction PU s'accompagne d'une augmentation de la ténacité, sans pour autant l'attribuer à l'accroissement d'énergie absorbée dans la phase PU uniquement. Ils notèrent également que l'augmentation de la fraction caoutchoutique provoque une diminution du module d'élasticité, mais que cette dernière peut être contenue en partie par l'élaboration d'un réseau de PU plus serré au moment où la polymérisation du MMA est initiée, ce qui augmente l'interaction des phases. Ils montrèrent que la méthode de polymérisation utilisée initialement n'induit pas de mécanismes de copolymérisation, et que lorsqu'ils tentèrent d'introduire des greffages entre les phases [47] la résilience diminuait, probablement en raison d'un important décalage de la T_g vers la température ambiante de la phase élastomère. Même s'ils ne purent pas

les décrire, ils relevèrent l'importance de la morphologie sur les mécanismes de déformation, et ainsi sur les propriétés de choc. Ils notèrent que la déformation plastique de ces systèmes s'accompagne d'un important blanchiment.

| <i>Variable</i> | <i>Module d'élasticité E</i> | <i>Seuil de plasticité σ_y</i> | <i>Energie de rupture au choc G_{IC}</i> |
|---|--|--|--|
| <i>Fraction de nodule augmente V_f</i> | diminue [13, 14] | diminue [13, 14] | augmente [9, 12, 13, 14] |
| <i>Fraction d'élastomère V_e augmente</i> | diminue [13, 14] | diminue [10, 13, 14] | élastomère plus efficace en écorce qu'en noyau [13] |
| <i>Diamètre des nodules augmente (100-290 nm)</i> | sans changement à V_e égale [13] | sans changement à V_e égale [13] | augmente (aug. moins en dessus de 250 nm [13]) (diminue au dessus de 250 nm [16]) |
| <i>Degré de réticulation du caoutchouc augmente</i> | petite diminution [13] | petite diminution [13] | grande diminution [13] |
| <i>Degré de greffage des particules à la matrice augmente</i> | petite augmentation [13] | petite augmentation [13, 16] | petite augmentation [13, 16] |
| <i>Nombre de couches des nodules (2-4 couches)</i> | sans changement à V_e égale [13] augmente pour 3L à V_f égale [9] | sans changement à V_e égale [13] augmente pour 3L à V_f égale [9] | augmente entre 2L et 3L [9, 12, 13, 42] 4L sans effet par rapport à 3L [12, 13] |

Tableau 7.1: Résumé de l'influences des paramètres de modification sur les propriétés mécaniques

Par des méthodes de synthèses similaires, mettant en oeuvre les composants de façon simultanée, Hur *et col.* [50], ou séquentielle, Akay *et col.* [51], étudièrent des réseaux interpénétrés PU-PMMA possédant une seule température de transition vitreuse. Du point de vue des propriétés mécaniques, ces systèmes ne sont pas aussi intéressants que ceux de Allen. L'existence d'un seul pic de relaxation α , fortement élargit, dont la position en température dépend de la fraction des constituants (la transition est décalée vers les basses températures par l'augmentation de la phase PU) est attribué à la 'semi-miscibilité' des constituants du système. Un tel système comporte des micro-hétérogénéités en ce sens qu'il pourrait être constitué d'une infinité de domaines de différentes compositions. En pratique, l'existence d'une ou de plusieurs transitions α est une mesure de l'hétérogénéité du système. Hermant et Meyer [52] proposent la mesure de l'amplitude du pic de $\tan \delta$ à mi-hauteur comme mesure du degré de miscibilité des composants du réseau interpénétré.

Contrairement aux précédents auteurs [44 - 48, 50, 51] qui firent varier le composant PU dans le PMMA entre 0 et plus de 80% par pas d'environ 10%, Heim *et col.* [6] étudièrent de façon plus serrée les systèmes composés d'une fraction de PU comprise entre 0 et 22%. L'élaboration est initiée par le mélange de deux solutions comme le montre la Figure 7-2. Pour des concentrations de PU inférieures à 10%, les composants mélangés peuvent coexister pendant plus d'une heure avant que le PU ne gélifie.

La grande originalité de l'étude de Heim *et col.* est de mettre en évidence un pic des propriétés au choc à une concentration de PU d'environ 6%. A cette concentration la résilience est comparable à celle obtenue avec environ 20% de PU. Etant donné que le module d'élasticité diminue rapidement avec la concentration de fraction caoutchoutique, il est très avantageux de contenir au maximum sa concentration.

Les IPN étudiés par Heim sont similaires à ceux de Allen mais avec une fraction de PU plus petite, et leurs propriétés mécaniques évoluent de la même manière avec les paramètres de mise en oeuvre. Les propriétés dépendent de la fraction de PU, du délai entre la formation du réseau PU et celui du PMMA. Pour Heim qui enregistre un pic de résilience à des fractions comprises entre 4 et 6% le retardement de la polymérisation du MMA décale le pic vers les basses concentrations. En outre, la résilience diminue lorsque le degré de réticulation de la phase PU est accru.

L'analyse thermomécanique montre deux T_g . Les transitions vitreuses de la matrice (120 à 130°C) et celle du PU qui est superposée à la transition β du PMMA (-60 à +5°C) sont pratiquement identiques pour des concentrations de PU de 6 et 18%.

L'étude microscopique en SEM et TEM montre que la morphologie des phases dépend sensiblement des conditions énumérées précédemment. Des îlots ou des nodules de PU trop grands (taille comprise entre 1 et 10 μ m), ou encore des domaines très petits (avec un degré d'interpénétration tel que les phases ne sont plus discernables), sont obtenus respectivement en dessous et en dessus de la concentration de ténacité maximale. La morphologie et la taille des nodules sont déterminées par la densité de réticulation du réseau de PU gonflé au moment de l'initiation de la polymérisation du MMA. Plus la densité de réticulation de l'élastomère est élevée plus la structure finale tend vers un vrai réseau interpénétré. La structure la plus favorable pour les propriétés mécaniques possède une taille caractéristique de l'ordre de quelques centaines de nanomètres, sans pour autant que l'existence de nodules sphériques soit une condition nécessaire. On a plutôt à faire à une phase interstitielle continue de PU enrobant des nodules de PMMA dont la taille est submicronique. Les propriétés optiques dépendent également de la taille de la structure, et la morphologie de grande taille obtenue avec de faibles fractions volumiques de PU (< 3-4%) conduit à des matériaux opaques.

7.4. COMPORTEMENT EN TRACTION.

L'étude a porté sur l'influence de la vitesse de sollicitation sur les propriétés en traction à la température ambiante des matériaux possédant les propriétés de ténacité les plus intéressantes, c'est-à-dire le 3L30 et l'IPN. Ces matériaux nous ont été fournis par Ph. Heim d'Elf-Atochem.

Le 3L30 est un PMMA extrudé de masse moléculaire de 130'000 g/mol. modifié par 30% en volume de particules à trois couches à noyau dur et écorce molle. Le diamètre extérieure de l'écorce molle est de 250 nm. La phase caoutchoutique de morphologie annulaire apparaît la plus foncée sur la photo de la Figure 7-3. Bien que les particules soient relativement bien distribuées, il existe de nombreux domaines où elles se touchent, formant une série contiguë. La distance inter-particules maximale est d'environ 800 nm, mais le plus souvent cette distance est largement inférieure.

L'IPN est un mélange de PMMA et de PU élaboré par la méthode de coulage simultanée et polymérisation séquentielle des composants décrite précédemment. La fraction volumique de la phase caoutchoutique PU est d'environ 6%. La matrice PMMA est réticulée et n'a pas pu être dissoute dans le chloroforme pour la mesure du poids moléculaire par la chromatographie en phase gel (GPC). La Figure 7-3 montre la structure non déformée observée dans les mêmes conditions que le 3L30. Le PU qui apparaît le plus foncé sur la photographie forme un réseau continu d'épaisseur variable inclus dans la matrice, elle même continue. La distance caractéristique des mailles est d'environ 300 nm, mais rarement supérieure à 500 nm.

Il est possible qu'il existe une fraction des constituants interpénétrés à plus petite échelle qui ne soit pas discernable par cette méthode d'observation en raison du caractère intime du mélange des deux phases. Relevons que cette structure est tridimensionnelle, les phases formant un véritable réseau co-continu.

Il est important de mentionner que les distances inter-particules typiques du 3L30 et les distances caractéristiques entre deux domaines contigus de PU dans l'IPN sont très similaires: généralement plus petite que 500 nm.

A température ambiante, nous avons réalisé des essais de traction à vitesse constante sur des éprouvettes en forme d'os de chien découpées dans des plaques de 3L30 de 2.5mm d'épaisseur, et dans des plaques d'IPN de 4.5 mm d'épaisseur. Dans un premier temps nous nous sommes attaché à déterminer l'évolutions des paramètres habituels de traction avec la vitesse de déformation. Il s'agit du module d'élasticité, E , de la contrainte et de l'allongement longitudinal au seuil plastique, σ_y et ϵ_y , de la contrainte de rupture, σ_u , et de l'allongement à la rupture, ϵ_u .

7.4.1. Courbes σ - ϵ .

Pour les vitesses de déformation, $\dot{\epsilon}$, jusqu'à $5 \times 10^{-3} \text{ s}^{-1}$, les essais ont été réalisés sur une machine Schenck à vis en utilisant une extensométrie mécanique conventionnelle. Aux vitesses de déformations supérieures les essais ont été conduits sur la Schenck à haute vitesse selon la procédure décrite au chapitre 3. Comme nous le verrons plus tard, on ne peut pas émettre une hypothèse de déformation à volume constant pour les PMMA modifiés. La mesure de la contrainte vraie nécessite le recours à la mesure de la déformation latérale en même temps que longitudinale; cette mesure n'étant pas possible aux hautes vitesses par notre instrumentation

actuelle les courbes de contrainte nominale sont représentées. L'évolution de l'allure des courbes contrainte-déformation nominale avec l'élévation de $\dot{\epsilon}$ est montrée sur les figures ci-dessous:

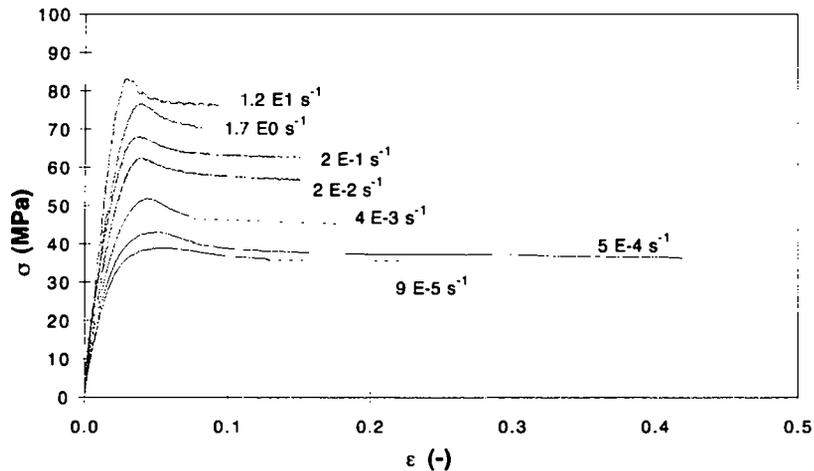


Figure 7-4: Courbes caractéristiques de la contrainte nominale σ en fonction de la déformation longitudinale ϵ sur 6 décades de vitesses de déformation du PMMA modifié par des particules 3L30.

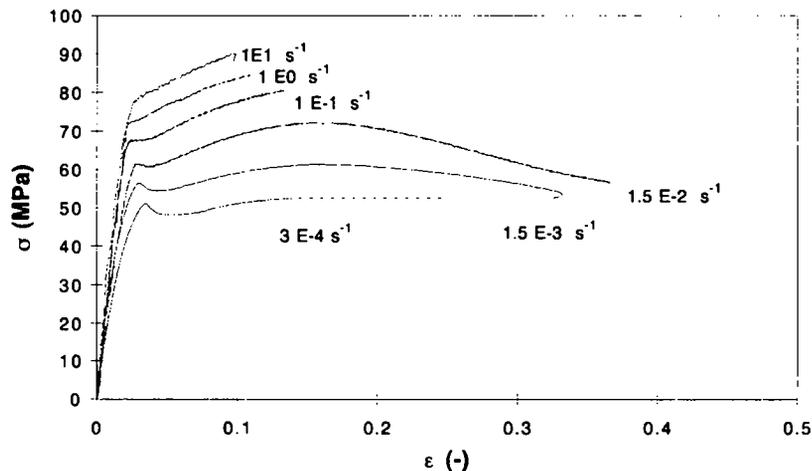


Figure 7-5: Courbes caractéristiques de la contrainte nominale σ en fonction de la déformation longitudinale ϵ de l'IPN.

A l'examen de ces courbes, il convient de relever les points suivants:

3L30:

- présente un seuil de plasticité marqué à toutes les vitesses, suivi d'une diminution de la contrainte nominale jusqu'au seuil d'écoulement plastique. Comme nous le verrons plus tard, cette diminution n'est pas le résultat d'un mécanisme localisé de striction, mais d'un mécanisme de déformation macroscopiquement homogène dans l'échantillon,
- le pic délimitant le seuil de plasticité devient de plus en plus étroit dans le domaine de la déformation à mesure que $\dot{\epsilon}$ augmente,
- une fois le seuil d'écoulement plastique atteint, σ reste pratiquement constant jusqu'à la rupture.

IPN:

- le seuil de plasticité est suivi d'un écoulement plastique seulement jusqu'à $\dot{\epsilon} \sim 1.5 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$. Aux vitesses supérieures, il ne se manifeste que par un changement de pente de la courbe $\sigma-\epsilon$,
- à toutes les vitesses un durcissement est observé après le seuil de plasticité,
- le seuil d'écoulement présent aux basses vitesses est suivi d'un durcissement puis d'un ramolissement se traduisant par une augmentation suivie d'une diminution de σ .

L'allongement à la rupture diminue de façon similaire pour les deux matériaux avec l'augmentation de la vitesse de déformation.

7.4.2. Module d'élasticité, E.

Les modules d'élasticité en traction sont estimés par l'ajustement d'une droite calculée par une régression linéaire sur la partie initiale élastique de la courbe $\sigma-\epsilon$.

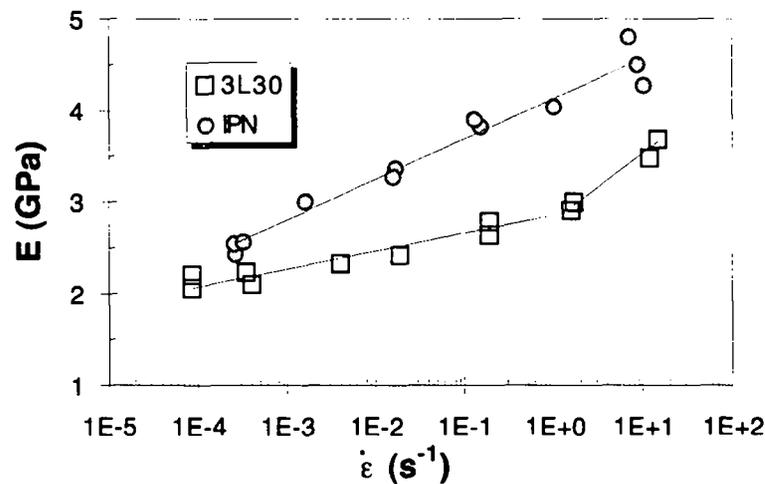


Figure 7-6: Module d'élasticité en traction E en fonction du log de la vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$

Comme le montre la figure Figure 7-6, le module d'élasticité augmente sensiblement à la température ambiante avec la vitesse de déformation. Pour l'IPN, E augmente linéairement avec le log de $\dot{\epsilon}$ de 0.44 GPa par décade de vitesse, passant de 2.5 à ~ 4.5 GPa. L'augmentation du 3L30 est plus modérée, de 0.2 GPa par décade mais semble plus marquée pour la dernière décade (0.5 GPa). Bien que comparable au 3L aux basses vitesses le module de l'IPN est sensiblement plus élevé aux vitesses intermédiaires.

7.4.3. Contrainte et allongement au seuil de plasticité.

La contrainte nominale au seuil de plasticité σ_y et la déformation au seuil de plasticité ϵ_y sont définies comme les premières valeurs mesurées au premier plateau stable en contrainte. Lorsque ce plateau est remplacé par un coude comme dans le cas de l'IPN à $\dot{\epsilon} > 0.1 \text{ s}^{-1}$, les valeurs sont identifiées à partir de deux droites tangentes ajustées de part et d'autre du coude sur les parties de la courbe $\sigma-\epsilon$. Les valeurs de σ_y et ϵ_y sont reportées à la Figure 7-7. Les valeurs de ϵ_y entourées par un trait pointillé sont estimées par cette procédure.

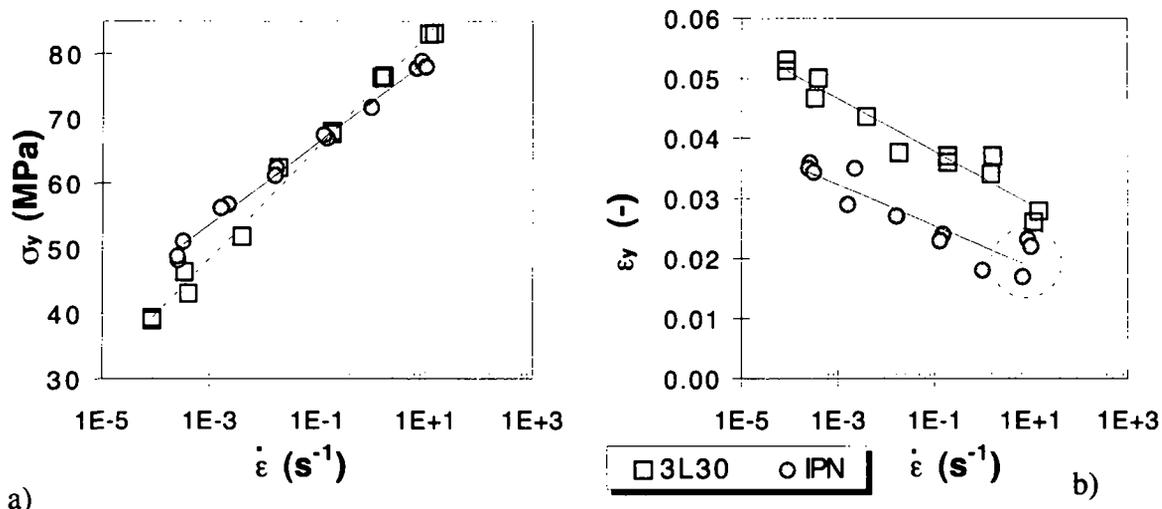


Figure 7-7: Contrainte nominale seuil de plasticité σ_y et déformation au seuil de plasticité ϵ_y en fonction de la vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ pour les PMMA 3L30 et IPN.

La contrainte seuil plastique du 3L30 augmente plus rapidement avec la vitesse que celle de l'IPN (8.5 MPa/décade et 6.3 MPa/décade respectivement). L'évolution ϵ_y est similaire pour les deux matériaux

Passé le seuil de plasticité, et selon la vitesse de déformation, l'IPN présente un ramollissement ou un durcissement. Cette particularité a été paramétrée par la différence entre la contrainte seuil, σ_y , et une contrainte post-seuil de plasticité appelée σ_p . Comme on le voit sur la Figure 7-4 la contrainte nominale du 3L30 n'augmente plus après la diminution qui suit le seuil de plasticité. En revanche, la contrainte nominale de l'IPN (Figure 7-5) forme un seuil d'écoulement aux faibles vitesses, qui disparaît aux vitesses élevées. Nous avons donc défini σ_p de la manière suivante: si la courbe σ - ϵ présente un seuil d'écoulement, σ_p est la valeur du seuil d'écoulement; si la courbe n'a pas de seuil établi, la contrainte à une valeur de déformation de deux fois l'allongement au seuil de plasticité est prise comme valeur de σ_p .

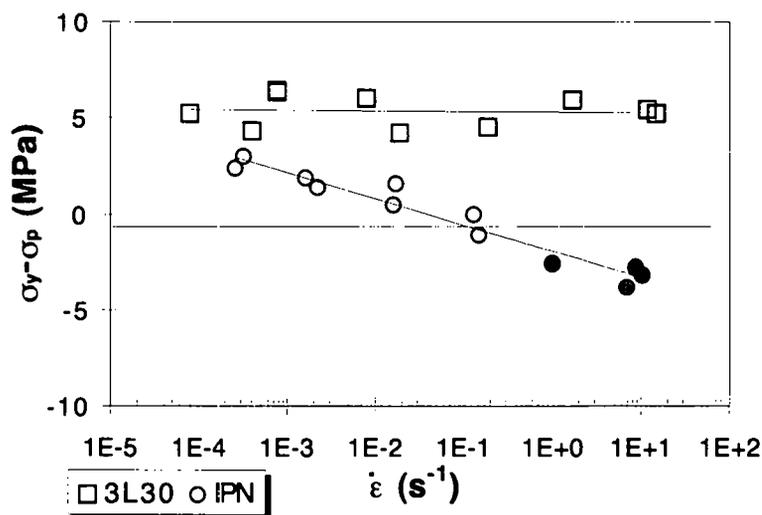


Figure 7-8: Amplitude de ramollissement, $(\sigma_y - \sigma_p)$ en fonction de la vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ pour les PMMA 3L30 et IPN.

Ainsi, les valeurs de $(\sigma_y - \sigma_p)$ portées à la Figure 7-8 montrent un ramollissement stable mesuré pour le 3L30 et une nette tendance au durcissement de l'IPN, lorsque $(\sigma_y - \sigma_p)$ devient négatif aux vitesses de déformation supérieures à $0.1s^{-1}$.

7.4.4. Mécanismes de blanchiment en traction

7.4.4.a) Le blanchiment

L'intérêt particulier des PMMA modifiés choc par rapport à la plupart des autres polymères renforcés au choc résulte du fait qu'à une déformation de l'ordre de 3%, ils présentent un blanchiment facilement observable à l'oeil nu en raison des bonnes propriétés optiques de la matrice. Ce blanchiment constitue ainsi un marqueur de la déformation utile à l'étude des propriétés de traction et de rupture.

Puisque le blanchiment est un phénomène facilement observable, cette propriété en fait un paramètre idéal de caractérisation de l'évolution de l'endommagement avec la vitesse de déformation. Comme nous l'avons démontré au chapitre 3, en situation de haute vitesse, les détecteurs optiques sont les plus appropriés en raison de l'absence de contact physique avec les éléments mobiles, conduisant ainsi à une réponse instantanée des capteurs. Nous avons donc développé une instrumentation optique de mesure du blanchiment *in-situ* schématisée à la Figure 7-9:

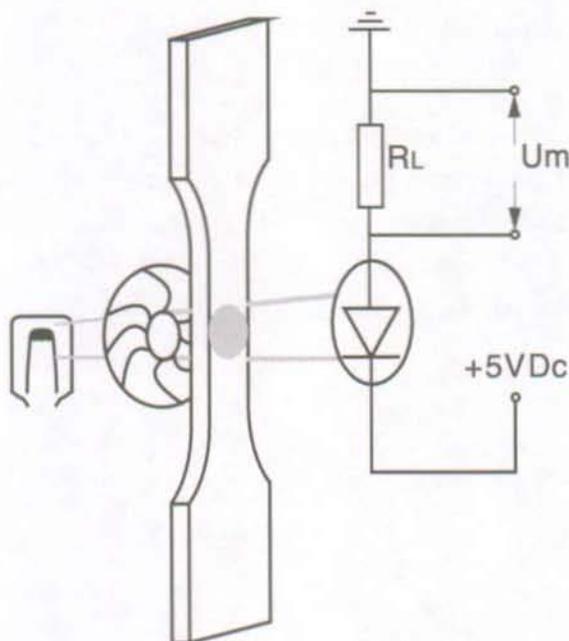


Figure 7-9: Représentation schématique du système de mesure du blanchiment *in-situ* par la mesure de la transmission lumineuse.

La réponse du détecteur est très rapide, et tout changement de l'intensité lumineuse transmise se traduit de façon quasi-instantanée par une variation de potentiel aux bornes du détecteur. La transmission relative d'une source blanche (ampoule halogène) a été enregistrée à toutes les vitesses de déformation pour le 3L30 et l'IPN. La Figure 7-10 montre un exemple de la variation de la transmission avec la déformation pour un 3L30.

100 % de T correspond à l'état initial des propriétés optiques, l'éprouvette étant déchargée. 0 % correspond à une opacification totale du fût de l'éprouvette. La mesure électronique s'avère

plus fine que l'observation par l'oeil humain. La diminution de la transmission lumineuse est perceptible par le détecteur à des déformations très faibles, avant que le blanchiment ne soit détectable par l'opérateur. A l'apparition du phénomène de blanchiment, entre ~1 et 3% de déformation, des figures de diffraction cruciformes sont observables en chambre noire. A des déformations proches du seuil de plasticité, et au delà, ces figures disparaissent. L'exploitation quantitative de ces figures pourrait s'avérer être un outil intéressant pour l'étude de l'amorçage du blanchiment.

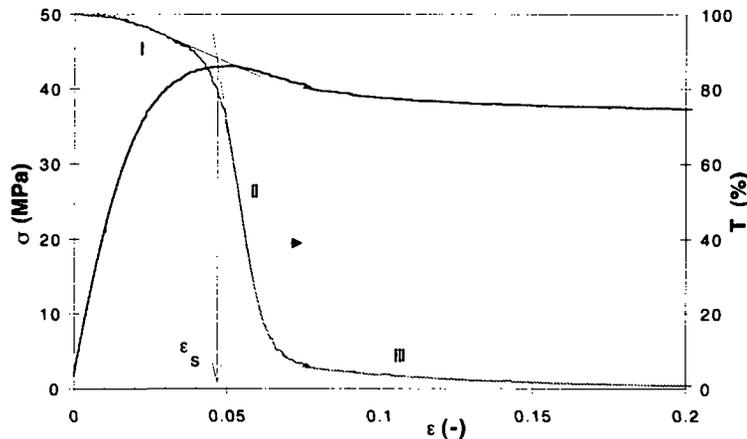


Figure 7-10: Courbe contrainte σ et transmission T en fonction de la déformation ϵ pour un 3L30 à une vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ de $4 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$

Des essais avec différentes sources de lumières, blanche à incandescence ou laser de 633 nm de longueur d'onde n'ont pas permis de mettre en évidence une sensibilité particulière à une longueur d'onde donnée. Les Figure 7-11 et Figure 7-12 montrent la variation de la transmission lumineuse T en fonction de la déformation ϵ pendant l'essai de traction à différentes vitesses de déformation, pour le 3L30 et l'IPN.

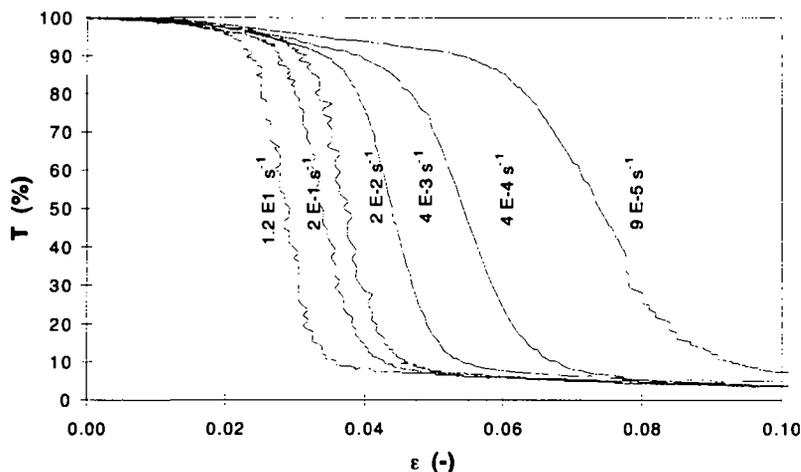


Figure 7-11: Variation de la transmission lumineuse T à travers les éprouvettes de 3L30 en fonction de la déformation appliquée ϵ à différentes vitesses de déformations.

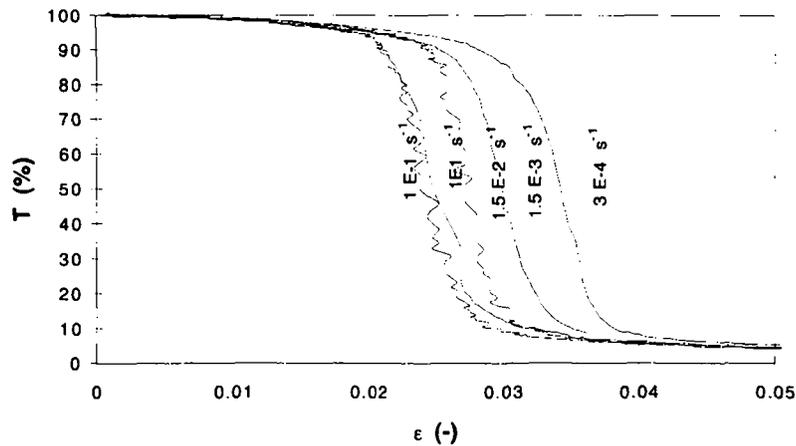


Figure 7-12: Variation de la transmission lumineuse T à travers les éprouvettes d'IPN en fonction de la déformation appliquée ϵ à différentes vitesses de déformations.

Comme le montre la Figure 7-10, la brusque décroissance de T est proche du seuil de plasticité. La comparaison du seuil d'initiation de la chute de transmission, ϵ_s , déterminée par l'intersection de tangentes à la courbe de transmission (voir la Figure 7-10), avec la valeur de la déformation au seuil de plasticité, ϵ_y , le confirme. Pour le 3L30 comme pour l'IPN, la déformation à l'apparition d'un blanchiment intense et homogène, ϵ_s , et le seuil de plasticité, ϵ_y , sont manifestement liés. Elles évoluent de la même manière avec, $\dot{\epsilon}$. La corrélation entre ϵ_y et ϵ_s , ressort clairement de la Figure 7-13.

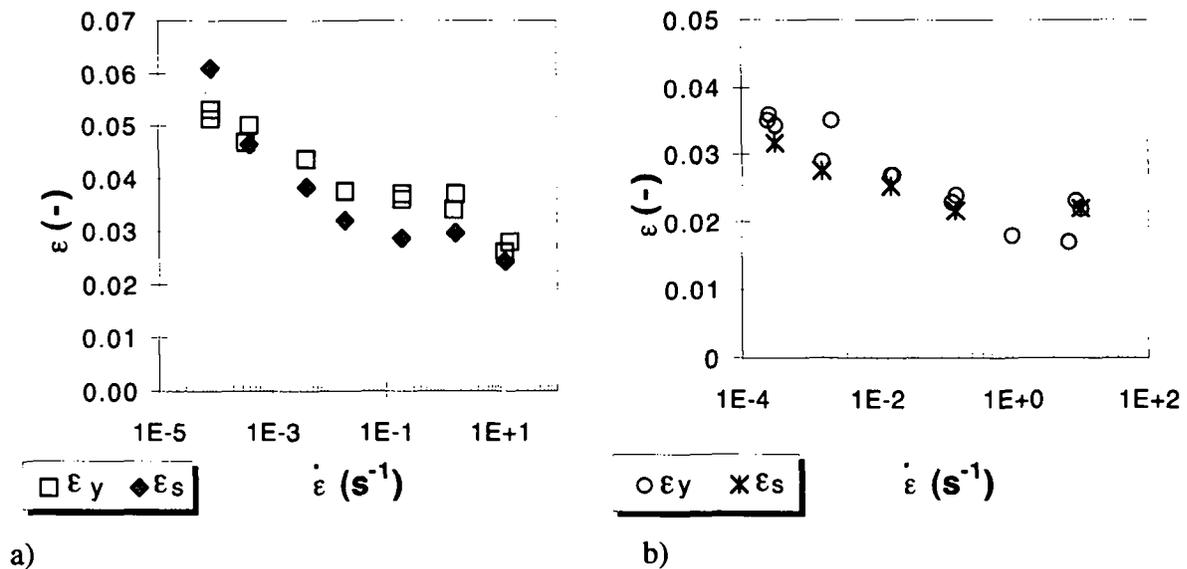


Figure 7-13: Valeurs de la déformation au début de la chute brusque de transmission lumineuse ϵ_s comparées au seuil de plasticité ϵ_y , en fonction de la vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ a) pour le 3L30, b) pour l'IPN.

Ainsi, la cinétique de blanchiment présente trois domaines distincts (notés sur la Figure 7-10):

- Domaine I: aux petites déformations, c'est-à-dire dans les zones linéaires et non-linéaires réversibles de la courbe σ - ϵ situés avant l'apparition du seuil de plasticité σ_y , la perte de transmission est faible (<10%) mais bien présente. Elle est accompagnée

d'une figure de diffraction en forme de croix, et par un blanchiment homogène. A ce stade, le matériau n'apparaît pas totalement opaque à l'oeil humain.

- Domaine II: aux déformations qui correspondent au seuil de plasticité de la courbe $\sigma-\varepsilon$ (domaine où la contrainte nominale augmente ou diminue très faiblement, voire pas du tout dans les cas où le matériau ne présente pas de seuil de ramollissement), la transmission lumineuse chute brusquement jusqu'à une valeur d'environ 10%. Dans ce domaine, le blanchiment s'intensifie rapidement de façon évidente pour l'observateur. La figure de diffraction disparaît.
- Domaine III: aux valeurs de ε correspondant à l'écoulement sur la courbe $\sigma-\varepsilon$, l'opacification paraît totale à l'oeil et la valeur mesurée par le détecteur ne varie plus beaucoup, elle tombe à 0 à une valeur d' ε d'environ 0.2.

7.4.4.b) *Interprétation des mesures de blanchiment.*

Le PMMA modifié par des particules sphériques à trois couches 3L30 et le PMMA coulé à réseaux co-continus IPN présentent exactement les mêmes propriétés de blanchiment homogène. Lorsque la matrice PMMA n'est pas modifiée, elle ne présente jamais de blanchiment à la température ambiante. Même si son origine n'est pas établie de façon précise, bien qu'il ait été mentionné par de nombreux auteurs, on peut affirmer que le blanchiment est lié aux processus d'endommagement. Il résulte de la modification de l'indice de réfraction local du matériau. Les causes possibles sont:

- Un étirement des domaines caoutchoutiques tel que leurs dimensions dans l'un des axes principaux devient plus grandes que la longueur d'onde de la lumière.
- L'apparition de cavités dans les domaines caoutchoutiques, ou aux interfaces des phases entraînant une diffusion de la lumière.
- La création de craquelures ou de tout autre type de cavité diffuses dans la matrice.

En se référant aux mesures de la transmission de la lumière reportées précédemment, il existe trois régimes d'endommagement qui pourraient résulter de trois mécanismes distincts. Il est possible que ces trois mécanismes correspondent précisément à ces trois causes potentielles de changement d'indice de réfraction.

Notre tentative pour déterminer un seuil d'endommagement précis par l'apparition d'un blanchiment à un seuil de contrainte ou de déformation déterminé a échoué. A la place, nous avons observé une augmentation graduelle de la diffusion de la lumière avant le seuil plastique. Lors de travaux récents sur un matériau identique au 3L30 (mais avec 40% de particules), qui ont été réalisés en même temps que les nôtres, Schirrer *et col.* [53] sont arrivés exactement aux mêmes conclusions. En comparant différentes méthodes de détection de l'endommagement telles que la transmission de la lumière, la diminution du module d'élasticité ou le changement de volume pendant l'essai de traction, ils ont montré que les méthodes optiques sont les plus sensibles. Quant à nous, nous concluons qu'il n'existe pas un seuil précis d'endommagement, mais que celui-ci intervient graduellement à partir de 1.5 à 2% de déformation. Toutefois, aux grandes vitesses de déformation nous pensons avoir observé une instabilité sur la courbe $\sigma-\varepsilon$ à une contrainte d'environ 50 MPa, qui suggère qu'un phénomène d'endommagement en avalanche est présent. Cependant une étude complémentaire serait nécessaire.

Lors de nos travaux [33, 34] nous avons constaté que le domaine I du blanchiment résulte partiellement de la déformation élastique car une fraction est immédiatement réversible lorsque

l'éprouvette est déchargée. Il est aussi partiellement réversible mais retardé lors d'un essai de relaxation à une contrainte inférieure au seuil de plasticité. De même, le domaine II du blanchiment peut être initié par un essai de fluage consécutif à un essai de traction interrompu juste avant σ_y . Ces observations montrent bien la nature viscoélastique des mécanismes responsables du blanchiment. En outre, il est totalement réversible lorsque les matériaux sont recuits à $T = T_g + 5K$ pendant environ 15 minutes. Cette remarque vaut pour l'IPN comme pour le 3L30. Par manque de place, ces aspects ne seront pas traités ici.

7.4.5. Séparation des processus de déformation

L'utilisation d'une double mesure extensométrique (latérale et longitudinale) permet l'observation du changement de volume pendant l'essai. Si ces mesures ne nous sont pas accessibles aux hautes vitesses car nous ne possédons pas d'extensométrie optique latérale, la manipulation est en revanche possible à basse vitesse. A ces vitesses, l'utilisation de palpeurs à noyaux inductifs permet des mesures de déformation latérale avec une précision de l'ordre du micron. Afin de dissocier les différents mécanismes de déformation nous avons utilisé l'approche proposée par Frank et Lehmann [40]. Cette approche permet de séparer les processus de déformation en:

- déformation élastique réversible à volume constant, $\varepsilon_{elast.}$
- déformation plastique en cisaillement à volume constant, ε_{shear}
- déformation cavitationnelle ou dilatationnelle permanente par changement de volume, $\varepsilon_{cav.}$

Nous avons appliqué cette approche au 3L30 et à l'IPN, à des vitesses de traverses de 2, 20 et 200 mm min⁻¹ ce qui correspond à des vitesses de déformation de $\sim 5 \times 10^{-4}$, 5×10^{-3} et 5×10^{-2} s⁻¹. La section calibrée des éprouvettes était respectivement de 2.9x10x50mm³ pour le 3L30, et de 4x9x50 mm³ pour l'IPN.

En émettant l'hypothèse d'une déformation affine dans le plan de la section rectangulaire des éprouvettes, l'expression de la contrainte vraie $\sigma_{eff.}$ s'exprime:

$$\sigma_{eff.} = \frac{F}{t_0 w_0 (1 + \varepsilon_{lat})^2} \quad (7-1)$$

avec F la force, et w_0 et t_0 , respectivement la largeur et l'épaisseur initiale de l'éprouvette.

Les Figure 7-14 et 7-15 montrent à titre comparatif les courbes de contrainte nominale, $\sigma - \varepsilon$, et de contrainte vraie, $\sigma_{eff.} - \varepsilon$, pour le 3L30 et l'IPN, à la température ambiante aux trois vitesses de déformation.

La différence est petite, et l'allure générale des courbes est peu modifiée par la représentation en contrainte vraie.

Heikens *et col.* [54] ont montré que la déformation élastique instantanée, $\varepsilon_{elast.}$, peut être approchée par le module de Young, E , en émettant l'hypothèse que celui-ci ne varie pas au long de l'essais.

$$\varepsilon_{elast.} = \frac{\sigma}{E}, \text{ avec } E = \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \frac{d\sigma}{d\varepsilon} \quad (7-2)$$

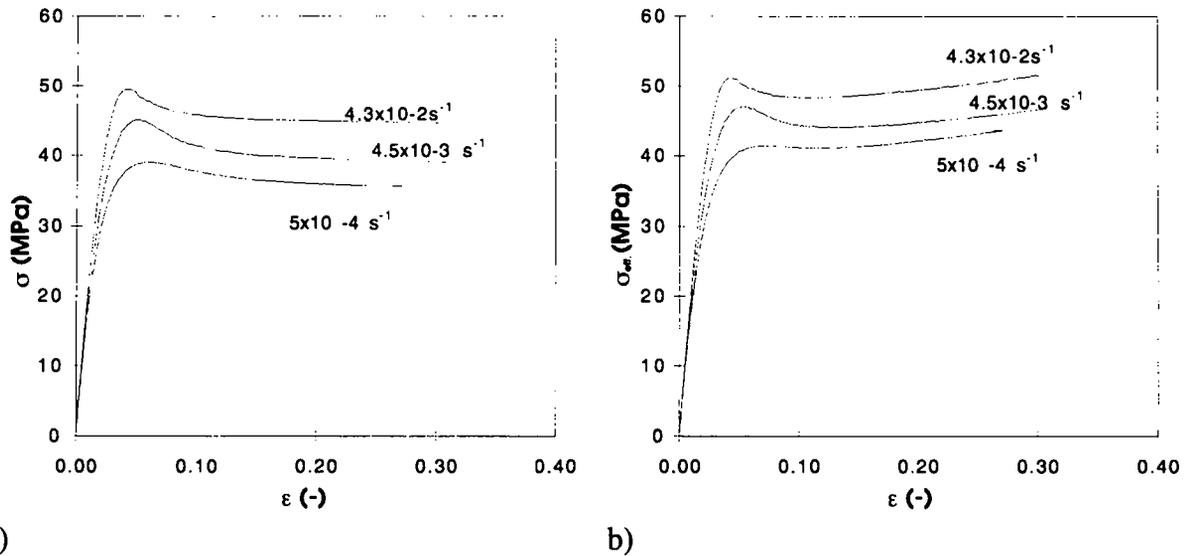


Figure 7-14: Comparaison des courbes a) contrainte nominale, σ , déformation, ϵ , et b) contrainte réelle, σ_{eff} , déformation, ϵ , pour le 3L30.

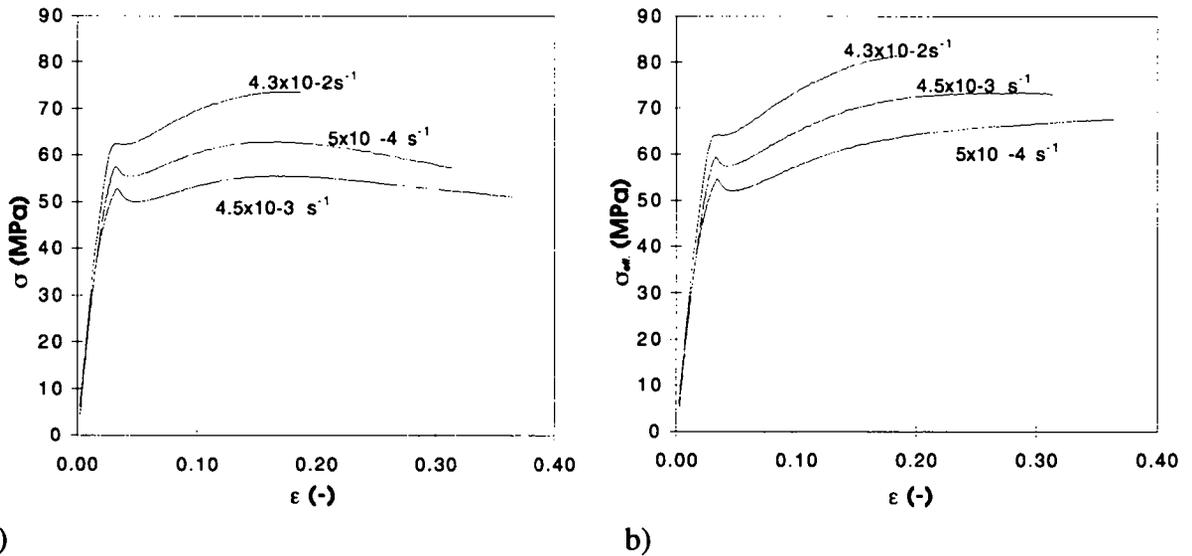


Figure 7-15: Comparaison des courbes a) contrainte nominale, σ , déformation, ϵ , et b) contrainte réelle, σ_{eff} , déformation, ϵ , pour l'IPN.

La valeur de $\epsilon_{elast.}$ estimée par cette méthode a été comparée avec une mesure de la déformation élastique par des cycles de charge et de décharge de l'éprouvette [40]. L'utilisation de cycles conduit à une surestimation notable de la déformation élastique en raison d'une contribution importante de la viscoélasticité du matériau. Même avec une vitesse de déchargement 100 fois plus rapide que celle de chargement, les effets viscoélastiques de la décharge sont encore importants. Schirrer et col. [53] ont caractérisé l'endommagement de matériaux du type 3L par la mesure du module de Young en pratiquant une décharge partielle en cours d'essai à une vitesse de 0.5 s^{-1} . Ils ont montré que l'endommagement maximum se situe aux environs du seuil de plasticité et que la diminution totale du module de Young n'excède pas 20%. Si l'on admet que cette méthode conduit également à une surestimation de la diminution du module par des effets de relaxation viscoélastique, on peut estimer que l'approche par l'équation (7-2) conduit à sous-évaluer la contribution élastique d'au maximum 10-15% dans le domaine plastique.

Avec, V , le volume instantané, et V_0 , le volume initial, la déformation volumique, ε_{vol} , est donnée par la relation:

$$\varepsilon_{vol.} = \frac{V - V_0}{V_0} = (1 + \varepsilon)(1 + \varepsilon_{lat.})^2 - 1 \quad (7-3)$$

L'hypothèse de déformation à volume constant ($\varepsilon_{vol}=0$) conduit à:

$$\varepsilon_{lat.} = -1 \pm \frac{1}{1 + \varepsilon} \quad (7-4)$$

seule la solution positive s'applique, car $-1 < \varepsilon_{lat.} < 0$.

La Figure 7-16 montre la déformation latérale mesurée, ε_{lat} , en fonction de la déformation longitudinale, ε , pour les deux matériaux. A titre comparatif, ε_{lat} à volume constant, calculé avec l'équation (7-4), à partir de ε mesuré à la plus grande vitesse de déformation est représenté sur chacun des graphes. En comparant la déformation latérale mesurée avec l'hypothèse d'une déformation à volume constant, il ressort nettement que le volume considéré change en cours d'essai, et qu'un accroissement de volume est présent aux grandes déformations pour les deux matériaux.

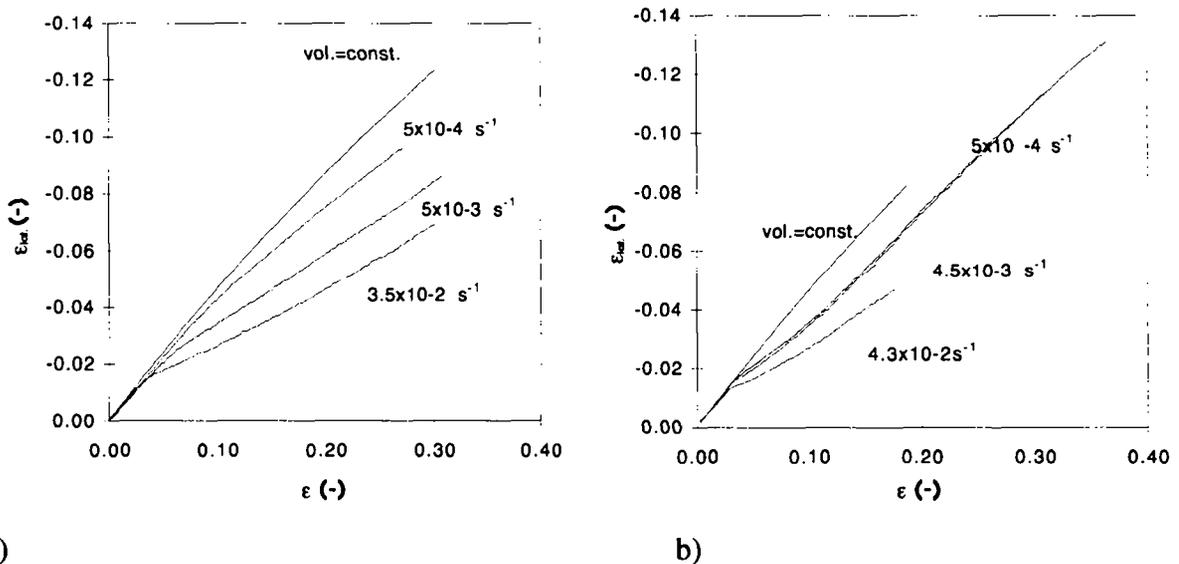


Figure 7-16: Déformation latérale, ε_{lat} en fonction de la déformation longitudinale, ε , pour a) le 3L30, et b) l'IPN.

La déformation volumique totale, $\varepsilon_{vol.}$, comprend une contribution plastique, $\varepsilon_{vol. pl.}$, et une contribution élastique, $\varepsilon_{vol. elast.}$, telle que:

$$\varepsilon_{vol.} = \varepsilon_{vol. plast.} + \varepsilon_{vol. elast.} \quad (7-5)$$

Etant donné la petite déformation élastique présente, on peut estimer que:

$$\varepsilon_{vol. elast.} = \varepsilon_{elast.} (1 - 2\nu_{elast.}) \quad (7-6)$$

$$\text{avec: } \nu_{elast.} = \lim_{\varepsilon \rightarrow 0} \frac{-\varepsilon_{lat.}}{\varepsilon} \quad (7-7)$$

Dans notre cas, $v_{elast.}$ a été calculé à partir des courbes de la figure Figure 7-16, par l'ajustement d'une régression linéaire, à l'origine des courbes $\varepsilon_{lat}-\varepsilon$.

Ainsi, la déformation cavitationnelle permanente, $\varepsilon_{cav.}$, est identique à la déformation volumique plastique, $\varepsilon_{vol.pl.}$, et peut-être calculée par:

$$\varepsilon_{cav.} = (1 + \varepsilon)(1 + \varepsilon_{lat})^2 - 1 - \varepsilon_{elast.}(1 - 2v_{elast.}) \quad (7-8)$$

La représentation de $\varepsilon_{cav.}$ en fonction de la déformation totale pour ces deux matériaux est très instructive. Elle est visible en Figure 7-17, et les graphiques comportent une droite représentant à titre comparatif la déformation en cavitation pure. Ces deux matériaux, l'un contenant des inclusions sphériques (3L30), l'autre contenant un réseau caoutchoutique de petite taille et de forme aléatoire cavitent de façon sensiblement similaire. La cavitation est initiée au seuil de plasticité. Plus la vitesse de déformation est élevée, plus la cavitation est importante. Mais, aux essais à 2 et à 20 mm min⁻¹, soit respectivement aux vitesses de déformation, $\dot{\varepsilon}$, de 5×10^{-4} et 4.5×10^{-3} s⁻¹ la déformation cavitationnelle de l'IPN est identique. Alors que la cavitation du 3L30 croît de façon continue avec la déformation, celle de l'IPN aux deux vitesses les plus basses se stabilise entre 0.1 et 0.15 de déformation longitudinale. Au-delà, l'accroissement de la déformation est réalisée au profit du cisaillement pure.

Par les équations (7-2) et (7-8), on peut calculer la déformation plastique excluant le changement de volume, soit principalement la contribution de cisaillement, ε_{shear} :

$$\varepsilon_{shear.} = \varepsilon - \varepsilon_{elast.} - \varepsilon_{cav.} \quad (7-9)$$

Nous pouvons ainsi représenter d'une façon dissociée les fractions des trois mécanismes de déformation, à savoir les fractions élastique, $\varepsilon_{elast}/\varepsilon$, de cavitation, $\varepsilon_{cav}/\varepsilon$, et de cisaillement $\varepsilon_{shear}/\varepsilon$, en fonction de la déformation totale, ε (Figure 7-18).

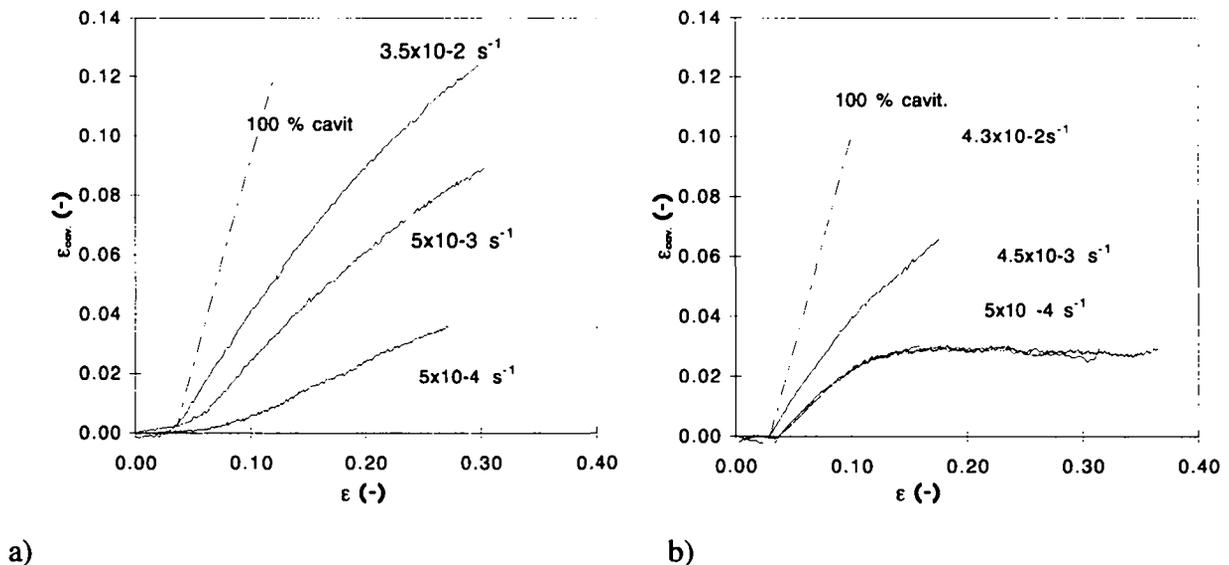


Figure 7-17: Déformation cavitationnelle ε_{cav} en fonction de la déformation longitudinale totale, ε , pour a) le 3L30, et b) l'IPN.

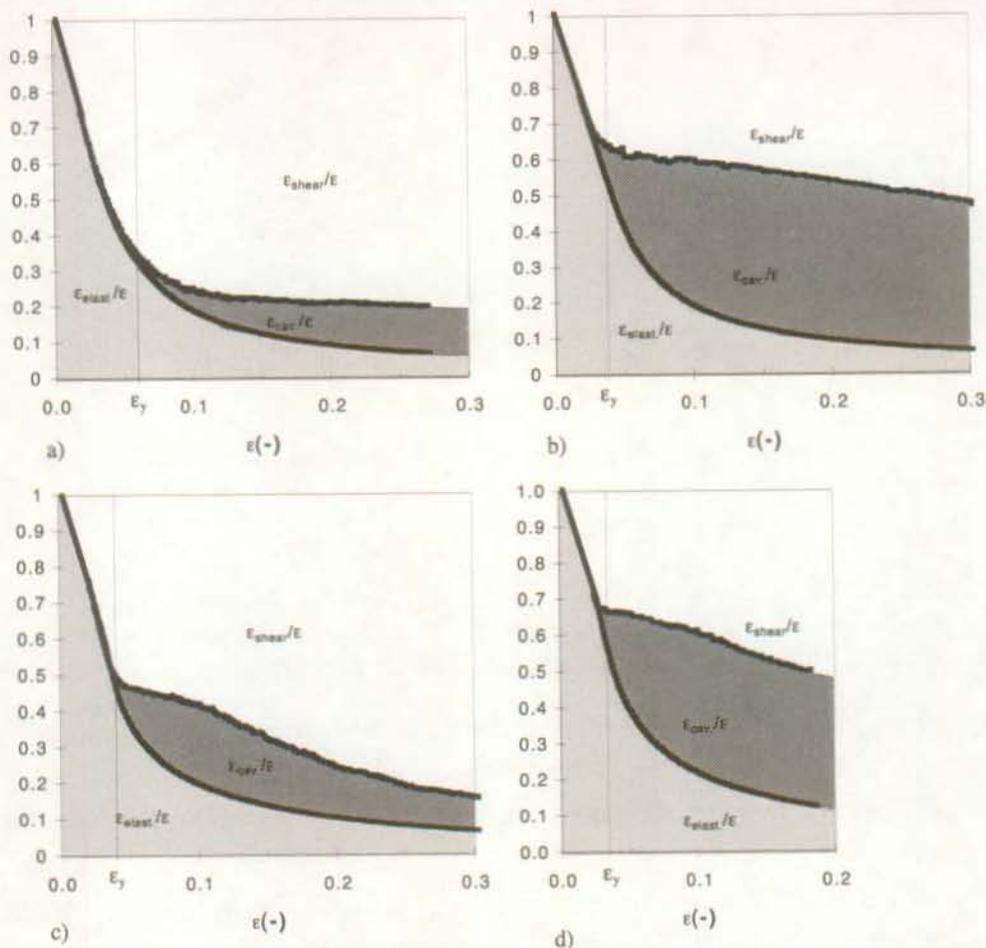


Figure 7-18: Contribution des fractions de déformation élastique, $\epsilon_{elast}/\epsilon$, de cavitation, ϵ_{cav}/ϵ , et de cisaillement $\epsilon_{shear}/\epsilon$, en fonction de la déformation totale ϵ .
 a) 3L30 à $\dot{\epsilon} = 5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ (2 mm min^{-1}), b) 3L30 à $\dot{\epsilon} = 3.5 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ (200 mm min^{-1})
 c) IPN à $\dot{\epsilon} = 5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ (2 mm min^{-1}), d) IPN à $\dot{\epsilon} = 4.3 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ (200 mm min^{-1}).

Cette représentation montre bien l'évolution des mécanismes de déformation et surtout de l'occurrence de la cavitation. Elle permet de mettre en évidence que:

- les mécanismes de déformation sont de même nature et de même importance relative dans le matériau modifié par des particules sphériques (3L30) et le réseau interpénétré (IPN),
- l'apparition d'un changement de volume détectable par extensométrie est liée au seuil de plasticité, et correspond à des mécanismes de cavitation,
- la proportion de cavitation augmente beaucoup avec la vitesse de déformation pour ces deux matériaux.

La cavitation du 3L30 semble être un phénomène progressif s'initiant au détriment de la déformation en cisaillement, alors que celle de l'IPN apparaît plus soudainement par relâchement de la déformation élastique. Ainsi, le comportement global de ces matériaux, et leur dépendance à la vitesse de déformation est qualitativement équivalente.

A titre comparatif, nous avons soumis un PMMA non modifié, de $M_w = 4 \times 10^6$ (le PMMA GS 233 de Röhm) aux mêmes essais. Nous avons choisi un matériau de M_w élevée, et une basse vitesse de déformation ($4 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$) pour avoir la valeur de déformation à la rupture la plus élevée à température ambiante. Les résultats sont représentés à la Figure 7-19.

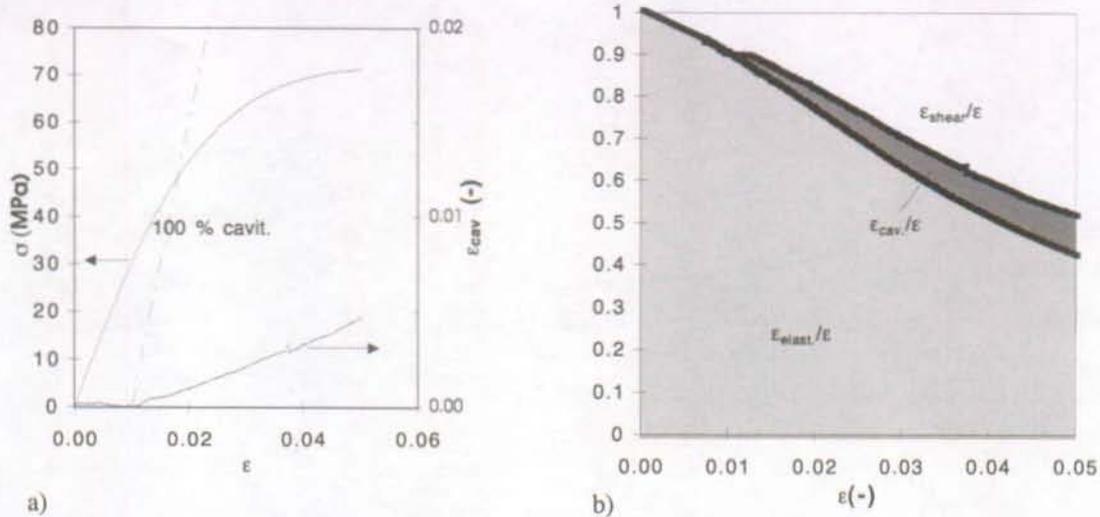


Figure 7-19: PMMA non modifié (GS 233). a) Courbe de traction σ - ϵ , et déformation cavitationnelle ϵ_{cav} . b) Contribution des fractions de déformation élastique, $\epsilon_{elast}/\epsilon$, de cavitation, ϵ_{cav}/ϵ , et de cisaillement $\epsilon_{shear}/\epsilon$, en fonction de la déformation totale ϵ .

La même technique de caractérisation appliquée au PMMA pur montre que ce dernier, bien qu'il se rompe au seuil de plasticité cavite également, mais dans une moindre mesure ($\sim 5\%$). La cavitation semble survenir soudainement vers 1.5% de déformation pour s'étendre quelque peu à mesure que le matériau diverge du comportement élastique. Aucun blanchiment n'est observable à l'oeil, et la mesure électronique de blanchiment ne montre qu'une perte de transmission lumineuse de 2%. Ces résultats sont en accord avec ceux de Frank & Lehmann [40].

7.4.6. Discussion

L'intensification des processus de cavitation avec la vitesse de déformation n'est pas une surprise car il s'agit d'un mécanisme typique des polymères modifiés (époxydes, polystyrènes, polyamides...). Dans le PMMA, elle a été mise en évidence par plusieurs auteurs [7, 40, 41, 53]. Il est généralement reconnu qu'à des vitesses très petites comme le fluage (ou aux températures élevées), il n'y a pas de cavitation dans le PMMA et le mécanisme prédominant est le cisaillement de la matrice. La surprise de notre étude en traction vient plutôt du fait que des mécanismes tout à fait similaires sont initiés dans l'IPN dans les mêmes conditions expérimentales.

Dans ce matériau, la plasticité résulte d'une cavitation aussi élevée que celle du 3L30. Tout comme lui, l'IPN est également capable d'engendrer ce de type mécanisme à grande vitesse de déformation. L'apparition de la cavitation dans le 3L30 est progressive, particulièrement aux basses vitesses de déformation. Dans l'IPN en revanche, l'apparition du changement de volume est assez soudaine. La courbe de la Figure 7-18 c donne l'impression d'un brusque relâchement de la déformation dilatationnelle de la phase caoutchoutique.

Un tel comportement de l'IPN a une importance, car certains chercheurs proposent des modèles d'initiation de la cavitation dans les matériaux modifiés par des particules sphériques. Ces modèles sont basés sur l'existence d'une contrainte hydrostatique critique, exercée par la

déformation de la matrice lors du processus de chargement. Comme la phase caoutchoutique est incompressible, la présence de particule engendre une concentration de contraintes triaxiales dans leur voisinage. Le degré d'interaction entre les particules est lié à la distance qui les séparent, donc à leur nombre et à leur taille. De nombreux auteurs avancent l'idée qu'une cavitation des particules est nécessaire, sous la forme d'une déchirure interne pour engendrer une amélioration significative de l'énergie de rupture au choc. Plusieurs raisons sont invoquées:

- i) l'initiation d'une cavité dans un caoutchouc est un processus qui consomme passablement d'énergie comparativement à son extension, et
- ii) la suppression de la contrainte hydrostatique locale engendrée par la cavitation des particules favorise l'activation des processus de déformation localisés dans la matrice par la réduction locale de la triaxialité des contraintes.

Les modèles récents proposés pour des nodules caoutchoutiques sphériques [53, 55-57] cherchent à définir un critère de cavitation à partir de la rupture de l'équilibre entre l'énergie de déformation élastique de la particule et l'énergie critique nécessaire pour engendrer une surface. Comme l'énergie de déformation stockée dans la particule dépend de sa taille, les critères de cavitations prévoient un diamètre critique en dessous duquel la cavitation ne peut pas avoir lieu. Ainsi, à partir des propriétés propres aux matériaux tels que les rapports des modules d'élasticité et de compressibilité, le coefficient de Poisson et la densité de réticulation du caoutchouc, on peut définir un diamètre critique nécessaire à la cavitation des particules. Pour des sphères à noyau caoutchoutique (de type 2L), les prévisions du diamètre critique varient selon les auteurs entre 50 nm et 140 nm, en fonction des modèles et des propriétés des matériaux en présence. Il convient de relever que la plupart de ces modèles ne tiennent pas compte des interactions entre les particules. C'est regrettable, car on imagine facilement que si la distance qui les sépare est petite, lors de la rupture d'un nodule l'énergie élastique stockée dans la matrice est reportée sur les nodules voisins. Le degré d'interaction entre les nodules lors de la cavitation est donc un paramètre important.

Lazzeri et Bucknall [57, 58] prennent en compte l'interaction des particules, et postulent un arrangement linéaire de particules qui cavitent selon une direction précise par rapport à la contrainte globale appliquée. Des bandes de cisaillement localisées dans la matrice relient l'alignement de particules rompues (Figure 7-20). Ils les appellent 'bandes de dilatation' (*dilatation bands*). Leur modèle est basé sur un critère de plasticité de la matrice sensible à la pression hydrostatique: le critère de Von Mises modifié décrit au Chapitre 1 (§1.5).

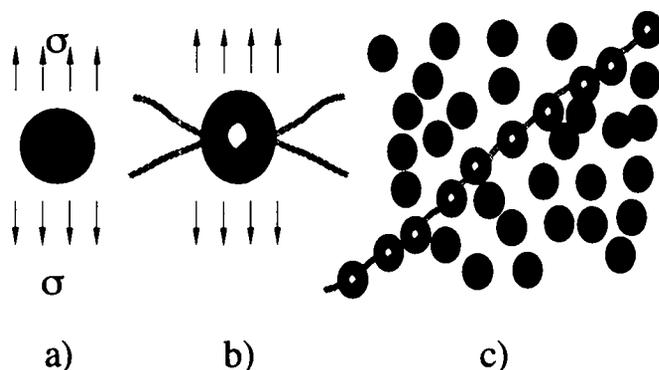


Figure 7-20: a) et b) Représentation schématique de la cavitation des nodules mous et c) arrangement sous la forme de bande de dilatation.

Si les particules 2L cavitent en leur centre, comme semblent le montrer les observations microscopiques qu'en est-il des particules 3L? Dans une étude des mécanismes de déformation en traction sur des films minces au MET [59], nous avons montré que les coquilles molles cavitent lorsqu'elles sont soumises à la déformation. Plusieurs cavités croissent simultanément dans la couronne caoutchoutique. Même dans les films minces, où l'état de contrainte est plan, les particules initient des craquelures dans la matrice, comme le montre la photo de la Figure 7-21b. La coalescence des craquelures développées par l'application de la déformation s'arrange spontanément selon un angle bien défini par rapport à la contrainte appliquée, comme le proposent Lazzeri et Bucknall pour les bandes de dilatation.

A ce stade, la nature des micromécanismes de déformation de l'IPN nous est encore inconnue. Nous avons vu que son comportement mécanique en traction est similaire à celui du 3L30. Une différence de comportement est toutefois à relever en ce qui concerne le comportement post-seuil de plasticité. Alors que le ramollissement enregistré après le seuil plastique du 3L30 est constant avec la vitesse, on enregistre au contraire un durcissement sur l'IPN (Figure 7-7). Nous voyons deux explications possible à ce comportement. Soit la déformation de la matrice provoque un durcissement croissant avec l'augmentation de la vitesse parce que les micromécanismes de déformation impliquent une orientation locale croissante des macromolécules, soit il s'agit d'une manifestation du comportement newtonien de la phase élastomère (viscosité augmentant avec la vitesse de déformation). Comme la réticulation de la matrice MMA de l'IPN est censée lui conférer une mobilité plus petite que celle du 3L30, nous retiendrons cette deuxième hypothèse.

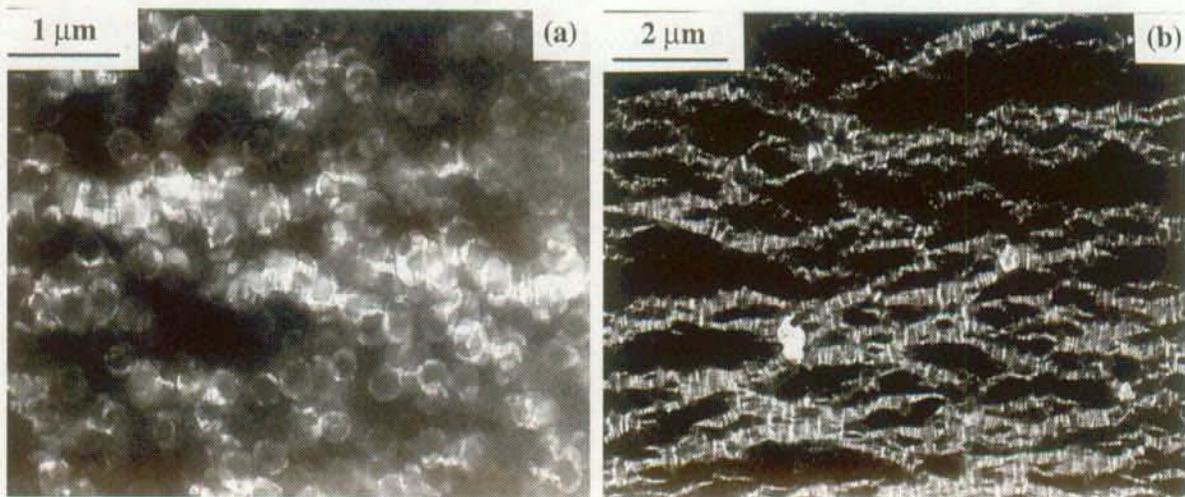


Figure 7-21: Observation en MET d'un film étiré de 300 nm de 3L30 . a) initiation de la cavitation, b) extension des craquelures aux grandes déformations.

Cette partie de notre étude prouve que l'initiation de mécanismes de cavitation dans les matrices PMMA n'est pas subordonnée à l'utilisation de particules sphériques du type 2L ou 3L, mais que le maillage caoutchoutique tridimensionnel d'un réseau interpénétré est tout aussi efficace à initier la cavitation. Nous avons ici affaire à des distances de matrice entre nodules (dans le 3L) et entre mailles (dans l'IPN) similaires. C'est vraisemblablement un paramètre important puisque les interactions en dépendent.

7.5. ETUDE DU COMPORTEMENT DES PMMA CHOC EN RUPTURE.

7.5.1. Préambule

La plupart des études mentionnées au § 7.2.4 ont porté sur le comportement en rupture des PMMA choc. Comme cette section constitue la synthèse de différents projets, les matériaux reportés ici n'ont pas été sélectionnés selon une stratégie de recherche planifiée. Ainsi, les paramètres morphologiques n'ont pas été variés de façon systématique. La variété des produits étudiés selon une même procédure et sur la même installation d'essais constitue néanmoins une source d'observation précieuse.

La méthode de caractérisation en rupture est celle décrite en détail au chapitre 4. Elle utilise les éprouvettes CT sollicitées à température ambiante, dans une plage de vitesse comprise entre 10^{-4} et 10^1 ms^{-1} . Les produits utilisés dans cette étude sont pour la plupart des matériaux commerciaux. Une partie des informations provient des producteurs, et nous avons procédé aux caractérisations manquantes (morphologie, M_w de la matrice,...). La dénomination des produits correspond à celle décrite au Tableau 7.1.

Au contraire des polymères à faible ténacité, et en particulier des PMMA non modifiés qui présentent un comportement force-déformation linéaire élastique, les PMMA modifiés choc peuvent présenter une non-linéarité de comportement avant la force maximale F_{max} . Dans un tel cas, la procédure d'analyse standardisée [60] prévoit que la valeur de la force à la rupture est choisie à l'intersection de la courbe force-déplacement mesurée, et d'une droite partant de l'origine et possédant une pente inférieure de 5% à celle de la partie linéaire de la courbe expérimentale. Cette procédure est arbitraire en ce sens qu'elle considère que la rupture commence à se propager à la valeur ainsi mesurée, et ne tient pas compte des mécanismes responsables de la non-linéarité du comportement. Ces mécanismes peuvent être de plusieurs natures:

- croissance de la fissure accompagnée d'un mécanisme de durcissement localisé en tête de fissure,
- endommagement sous forme de micro-fissuration diffuse en tête de fissure,
- visco-plasticité localisée en tête de fissure, ou généralisée du matériau.

Dans l'étude de la ténacité des matériaux renforcés au choc, il importe de les caractériser en prenant en compte les effets dissipatifs qui permettent de retarder la rupture, de quelque nature qu'ils soient. Il ne suffit donc pas de caractériser les conditions d'apparition du premier endommagement, il faut encore rendre compte de l'évolution de cet endommagement pendant le processus d'extension de la rupture. C'est l'approche qui a été suivie ici, raison pour laquelle la partie des résultats reportés, qui auraient été invalidés par une application stricte du protocole de l'E.S.I.S. est parfaitement exploitable lorsqu'il s'agit d'un travail de recherche.

L'épaisseur des plaques dans lesquelles les éprouvettes ont été découpées varie entre 4.5 et 10 mm. Nous avons vérifié avec le 3L30, qui développe la zone d'endommagement de la plus grande taille, que l'épaisseur n'influence pas les valeurs mesurées. Pour des éprouvettes de 6 mm et 10 mm d'épaisseur, les mesures de K et de G sont identiques, quelque soit l'épaisseur.

7.5.2. Pré-entaillage des éprouvettes

Lors de nos travaux avec Julien [37], nous avons étudié les différentes méthodes de pré-entaillage. Les méthodes produisant les ténacités les plus faibles ont été retenues. Il s'agit de la frappe d'une lame de 'cutter' neuve dans la pré-entaille usinée pour le PMMA non-modifié et les faibles fractions volumiques de particules (jusqu'à 15%). Cette procédure provoque la fissuration 'naturelle' du PMMA. Pour des fraction volumiques plus importantes conduisant à une ténacité élevée, il est préférable de glisser la lame au fond de la pré-entaille fraisée pour diminuer le rayon de fond d'entaille. L'observation de la pré-entaille par la photoélasticité et la méthode des caustiques a révélé l'existence de contraintes résiduelles importantes en tête de fissure si la lame est frappée comme dans les matériaux plus fragiles. De fait, même avec une fraction volumique de 30% de particules, la propagation d'une fissure (ou craquelure) dans la matrice PMMA est possible, mais les particules déformées ou déchaussées dans le plan de fissure ne retrouvent pas leur forme ou leur place lorsque la lame est retirée donnant lieu à des contraintes résiduelles. Les valeurs de ténacité obtenues selon cette méthode étaient plus grande que celles obtenues avec la lame glissée.

7.5.3. Comportement

Aux basses vitesses d'essai (vitesse de traverse de 10^{-4} à 10^{-3} ms⁻¹), tous les PMMA renforcés choc présentent une propagation stable de la fissure. Nous avons usiné et poli des coupes minces prélevées au milieu de l'épaisseur de spécimens dont le chargement a été interrompu à différents stades. Leur observation en microscopie optique à transmission en lumière polarisée, nous permet de mettre en évidence la phénoménologie responsable de la non-linéarité de la courbe de chargement. Cette démarche réalisée sur le 3L30 est représentée à la Figure 7-22

Le début du domaine du comportement non-linéaire coïncide avec l'initiation d'une zone d'endommagement en tête de la pré-fissure. Dans la partie non-linéaire qui précède P_{max} le rayon de fond d'entaille s'émousse (*crack tip blunting*) pour prendre sa taille intrinsèque (photo 1). Ensuite, cette zone s'étend conjointement avec l'avance d'une fissure stable au centre de la section (photos 2 et 3). Une fois que la zone endommagée est pleinement développée et que la fissuration stable, initialement située au milieu de l'épaisseur s'est développée dans toute de l'épaisseur, la force commence à décroître par la propagation conjointe de la fissure et de la zone endommagée. Le développement de la fissure correspondant à ces étapes est montré schématiquement à la Figure 7-23. Le contraste optique de la zone endommagée en tête de fissure résulte du phénomène de blanchiment, exploité en traction à la section précédente. Il s'agit des mêmes mécanismes de déformation, résultant ici de la concentration de contrainte associé à la présence de la fissure.

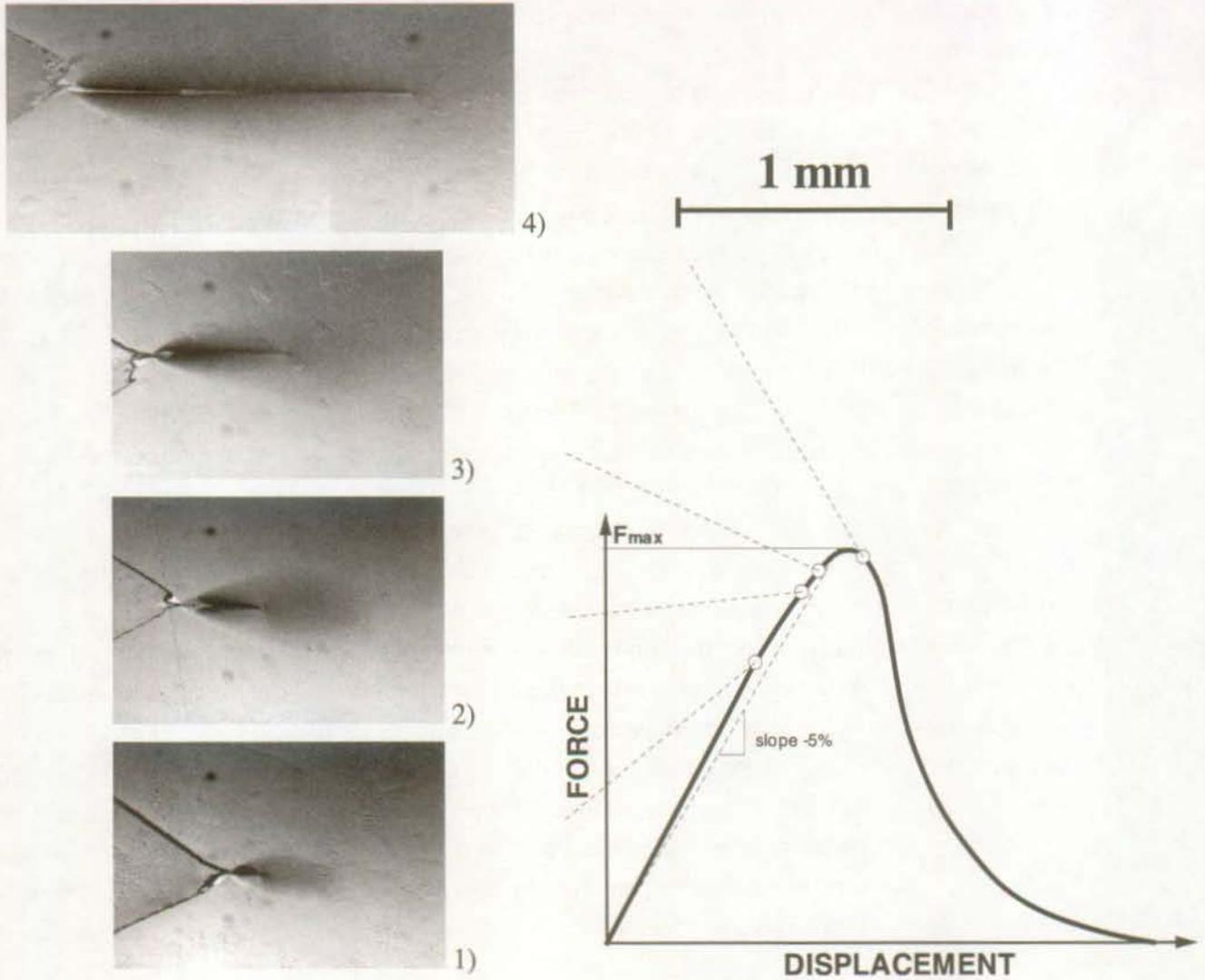


Figure 7-22: Représentation de la courbe force-déplacement d'un 3L30, et photographies des coupes observées en lumière transmise à différents stades de la courbe de chargement.

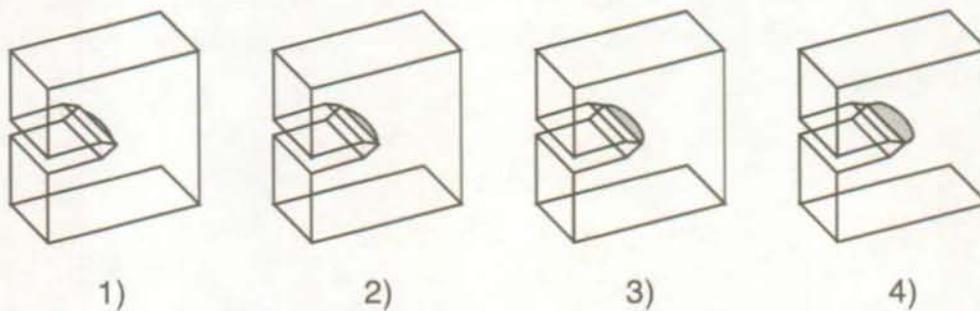


Figure 7-23: Représentation schématique de l'ajustement de la forme du front de la fissure. Les numéros correspondent aux photos de

Lorsque la vitesse de chargement est accrue, le comportement stable de la rupture est interrompu après le maximum de force pour se terminer de façon instable. Si la vitesse est

augmentée encore, la propagation devient instable dans le domaine non-linéaire ou au plateau de la force, mais une portion de propagation stable subsiste. Enfin, pour les produits les moins tenaces que nous avons testé, un comportement fragile très similaire à celui de la matrice pure est observé, soit un comportement totalement instable à des vitesses plus petites ou égales à 10 ms^{-1} qui est la vitesse maximale utilisée.

La propagation stable de la fracture donne lieu à un blanchiment de la surface de rupture, qui disparaît lors de la rupture instable. Elle peut s'arrêter avant la rupture totale du ligament (dans la zone charnière) ou alors se propager de façon instable sur la totalité du ligament. Dans un tel cas, l'énergie cinétique de l'éprouvette cassée n'est pas nulle. La vitesse de propagation de la fissure a été mesurée par la méthode de la jauge au graphite [61] sur les 2L0, 2L15 et 2L30 sollicités à 1 ms^{-1} . La fissure n'accélère pas, elle atteint instantanément ($< 0.5 \mu\text{s}$) sa vitesse maximale qui est de 120 m^{-1} pour le PMMA pur (2L0) et de 540 et 550 m/s pour le 2L15 et le 2L30 respectivement. La vitesse de la fissure diminue à mesure que la rupture s'étend par la consommation de l'énergie élastique stockée.

Tous les PMMA modifiés choc étudiés, se comportent qualitativement de la même façon lorsque la vitesse de chargement est augmentée à la température ambiante. Ces différences de comportement sont séparées par des transitions que nous avons définies comme suit:

- *Transition s-u*: séparation du comportement complètement stable à partiellement instable. Avant cette transition la surface de rupture est totalement blanchie. Au delà, elle ne l'est que partiellement.
- *Transition d-sb*: séparation du domaine où la rupture instable intervient après le plateau de force maximale de celui où elle intervient avant. Dans ce cas seule une petite partie du ligament est blanchie, en tête de la pré-entaille. La zone endommagée n'est pas complètement développée dans son volume lorsque la rupture instable se produit. Par ce fait, l'énergie d'initiation diminue au passage de cette transition.
- *Transition sb-b*: au delà de cette transition, la rupture est totalement instable et aucun blanchiment n'est visible. L'énergie d'initiation est minimale, égale, voire inférieure à celle de la matrice pure.

L'allure des courbes force-déplacement, le blanchiment associé et les différentes transitions sont résumés à la Figure 7-24. Ces transitions n'ont pas toutes été observées sur tous les PMMA choc. Seules les moins tenaces sont affectés aux grandes vitesses d'essai par ces trois transitions. A la température ambiante, les plus tenaces se comportent de façon stable sur toute la plage de vitesse.

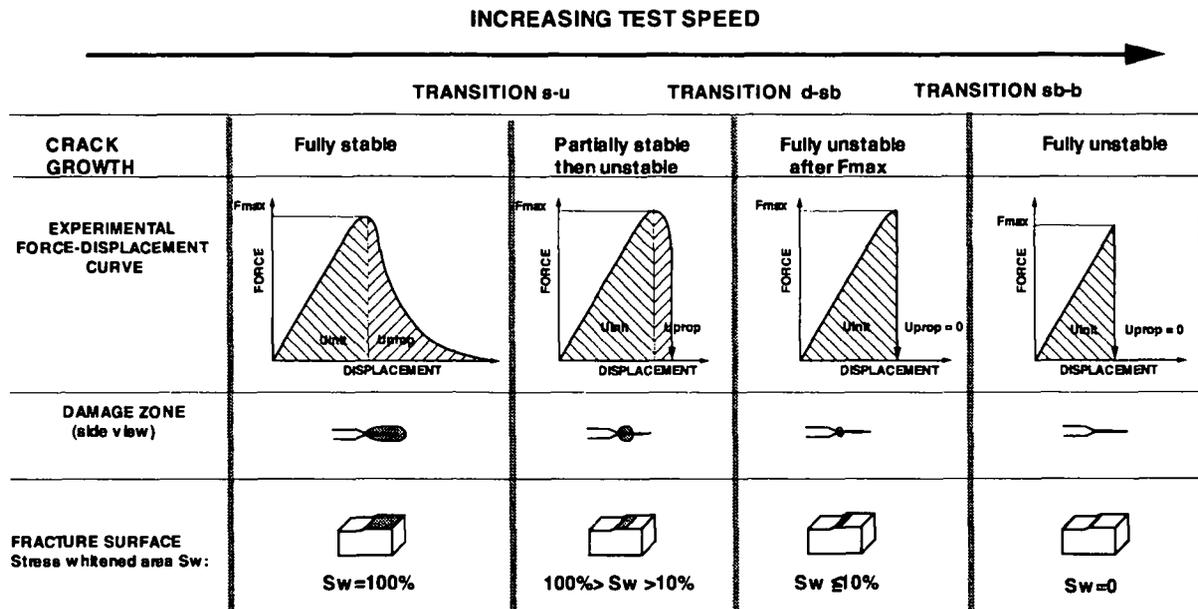


Figure 7-24: Représentation schématique des courbes force-déplacement, des transitions de comportement et du blanchiment des PMMA modifiés.

7.5.4. Résultats expérimentaux des PMMA choc

7.5.4.a) Comparaison de matériaux modifiés par des fractions différentes de nodules de même taille de type 2L.

L'objectif de l'étude entreprise avec O. Julien visait à mettre en évidence l'influence de la fraction modificatrice sur les propriétés de rupture. Les particules étaient de type 2L (à noyau mou), et les fractions volumiques de particules de 25% (2L15), 30% (2L30) et 45% (2L45). La matrice PMMA non modifiée (2L0) a également été incluse dans l'étude. Les résultats du facteur d'intensité des contraintes, $K_{I_{max}}$, mesurés à partir de la force maximale atteinte (F_{max} sur les diagrammes de la Figure 7-24) sont représentés en fonction de la vitesse de chargement du front de fissure, dK/dt , à la Figure 7-25. L'échelle indicative de la vitesse de chargement est représentée en haut du diagramme. L'énergie d'initiation critique, G_{IC} , calculée à partir de l'intégration de la courbe force-déplacement jusqu'à la valeur de F_{max} considérée pour le calcul de $K_{I_{max}}$, est reportée en fonction de la vitesse d'ouverture de la pré-fissure (vitesse de déplacement de la goupille mobile), v , à la figure Figure 7-26.

Pour toutes les fractions de nodule, $K_{I_{max}}$ chute dramatiquement dans le domaine compris entre 1 et 10 ms^{-1} . Les valeurs de ténacité sont relativement équivalentes aux basses vitesses, et le 2L15 est affecté à partir de 0.1 ms^{-1} déjà. Sa ténacité à grande vitesse tombe en dessous de celle de la matrice non modifiée.

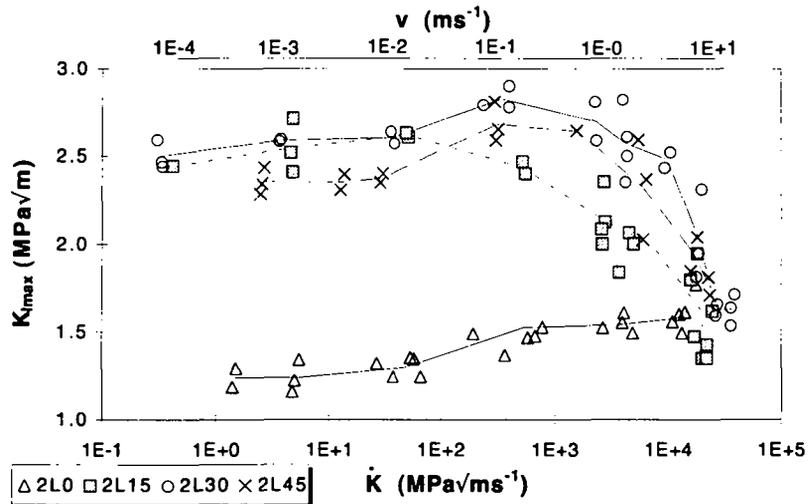


Figure 7-25: Influence de la fraction volumique de particules du type 2L de 160 nm de coeur sur le facteur d'intensité des contraintes à la force maximale, K_{max} , en fonction de la vitesse de mise en charge du front de fissure, \dot{K} . Contenu en fraction volumique de nodules: 2L0: 0%, 2L 15: 15%, ...

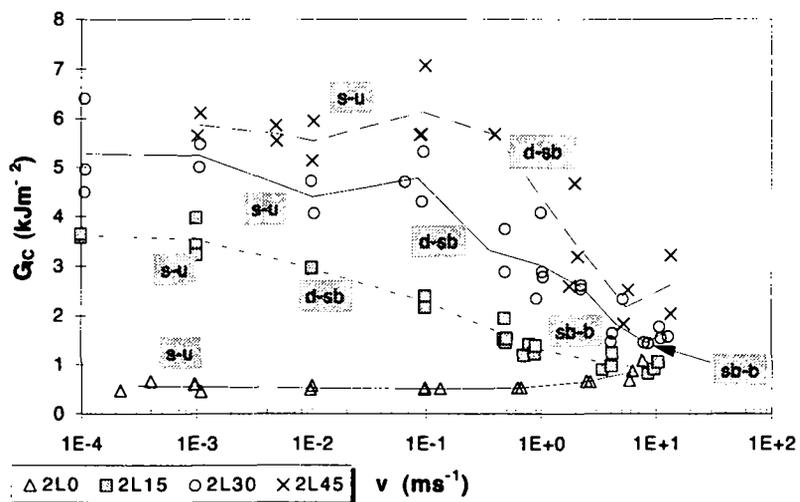


Figure 7-26: Influence de la fraction volumique de particules du type 2L de 160 nm de coeur sur le taux de restitution critique de l'énergie de la déchirure, G_{IC} , en fonction de la vitesse d'essai, v . Contenu en fraction volumique de nodules: 2L0: 0%, 2L 15: 15%, ...

L'énergie dissipée à l'initiation, G_{IC} , dépend sensiblement de la fraction de nodule, y compris à basse vitesse. Pour les trois matériaux modifiés, G_{IC} diminue sensiblement avec la vitesse. La diminution du 2L15 est progressive et continue avec l'augmentation de la vitesse; ce matériau se comporte de façon totalement fragile à 10 ms^{-1} , et son énergie de rupture est inférieure à celle de la matrice pure. Bien qu'affectées à des vitesses plus élevées, les valeurs du 2L30 et du 2L45 chutent de plus de 50% aux grandes vitesses.

Les transitions de comportement correspondant au tableau de la Figure 7-24 sont représentées à la Figure 7-26. Elles sont déterminées par la comparaison de l'énergie de rupture et de la partie blanchie de la surface du ligament rompu. Nous ne reviendrons pas ici sur la

méthode de détermination de ces transitions, qui figure en détail dans les références [14, 37, 38].

Ces essais montrent bien à la fois l'intérêt et la complexité d'une approche comme la notre, par la variation de la vitesse d'essais sur plusieurs décades, et par la mesure de K et de G . Si l'expérimentateur n'utilise que deux vitesses pour la caractérisation en rupture: une basse (par exemple $1 \times 10^{-3} \text{ ms}^{-1}$) et une élevée (3 ms^{-1}), ses conclusions dépendront selon qu'il s'intéresse à K ou à G . La ténacité, K , elle est la plus élevée à toutes les vitesses pour 30% de nodules (2L30). De plus, les valeurs de K sont pratiquement identiques pour ce matériau à 10^{-3} ms^{-1} et à 3 ms^{-1} . En revanche, si l'analyse porte sur l'énergie, G , le 45% (2L45) présente des valeurs plus élevée que le 30%, mais elles diminuent sensiblement aux grandes vitesses. Cet exemple met en évidence l'intérêt de faire varier la vitesse de sollicitation sur une gamme étendue, et d'utiliser à la fois une approche de type K qui rend compte de la résistance à la rupture, et une approche énergétique par G ou J , qui rend compte de la capacité du matériau à dissiper l'énergie pendant la rupture.

7.5.4.b) Différentes morphologies de la phase incluse

L'évolution des paramètres de rupture de matériaux possédant des morphologies différentes de la phase élastomère est également intéressante. Les propriétés de rupture des matériaux étudiés en traction au § 7.4. sont ici étudiées en rupture. Il s'agit du 3L30 composé de 30% de particules de 250 nm à noyau dur de 200 nm, et du réseau interpénétré PU-PMMA (IPN). Pour comparaison avec le 3L30, nous avons représenté les mesures obtenues sur un matériau modifié par 45% de nodules mous de diamètre de 250 nm, le 2LB.

La Figure 7-27 montre l'évolution de la ténacité $K_{I,max}$. Elle augmente de manière significative avec la vitesse. Les valeurs du 3L30 et de l'IPN sont pratiquement parallèles sur toute la plage de vitesse, l'IPN possédant une ténacité d'environ $0.5 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ inférieure au 3L30. La propagation de la rupture dans l'IPN est stable sur toute la gamme de vitesse. Ainsi, il ne présente aucune transition de comportement. Pour le 3L30, l'épaisseur de la zone blanchie associée à la propagation est relativement importante à basse vitesse (voir l'annexe A2). mais très petite à basse vitesse. Sur l'IPN rompu à grande vitesse, le blanchiment existe mais il est difficilement observable.

Tout autre est le comportement du 2LB dont la ténacité diminue de façon constante avec l'augmentation de la vitesse. A grande vitesse ($>1 \text{ ms}^{-1}$) la perte de ténacité est conséquente, et elle est même inférieure à celle de la matrice de masse moléculaire équivalente non modifiée (c.f Figure 7-25).

La Figure 7-28 montre que G_{IC} du 3L30 est très élevé et diminue d'environ 25% seulement aux vitesses supérieures à 1 ms^{-1} . L'augmentation apparente à 10 ms^{-1} est due à un artefact consécutif à l'importante énergie cinétique des éprouvettes cassées. L'énergie de rupture du 2LB, presque identique à 10^{-4} ms^{-1} à celle du 3L30, diminue continuellement en passant par les trois transitions de comportement qui sont reportées sur le diagramme. A grande vitesse, elle est environ trois fois plus faible que celle du 3L30, qui possède pourtant des nodules de même diamètre et en fraction inférieure (30% contre 45% pour le 2LB).

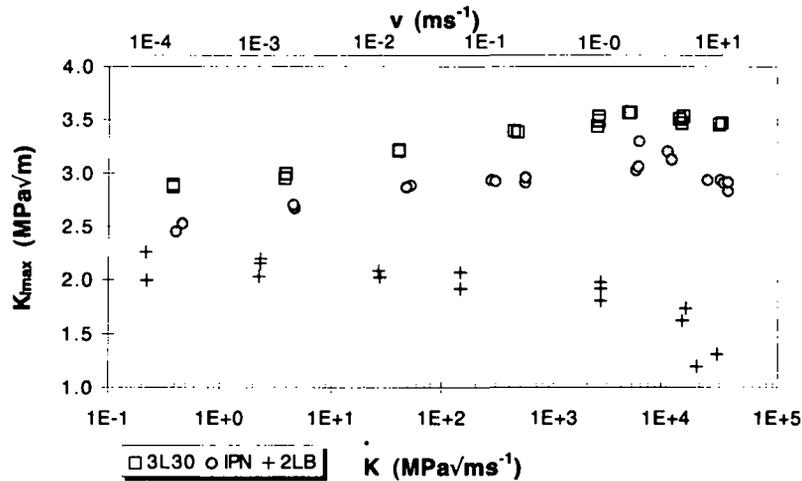


Figure 7-27: Facteur d'intensité des contraintes à la force maximale, K_{max} , en fonction de la vitesse de mise en charge du front de fissure, K . Trois morphologies différentes de la phase caoutchoutique: en couronne (3L), en noyau (2L), en réseaux interpénétrés (IPN)

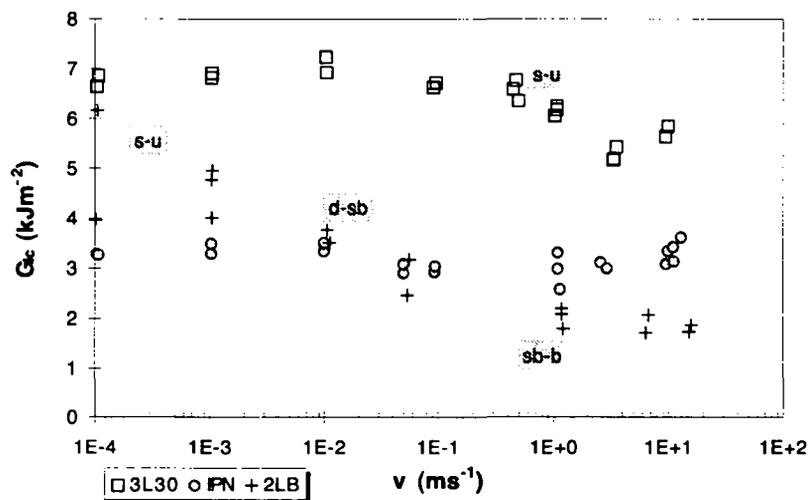


Figure 7-28: Taux de restitution critique de l'énergie de la déchirure, G_{ic} , en fonction de la vitesse d'essai, v . Trois morphologies différentes de la phase caoutchoutique: en couronne (3L), en noyau (2L), en réseaux interpénétrés (IPN)

En terme énergétique, le comportement de l'IPN est intermédiaire entre celui du 3L30 et celui du 2LB. G_{ic} est pratiquement constant sur toute la plage de vitesse, ce que traduit bien l'absence de transition de comportement. En revanche, son énergie de rupture est de l'ordre de moitié de celle du 3L30. Ses capacités dissipatives plus faibles correspondent bien à l'existence d'une zone blanchie plus limitée en tête de fissure pendant la propagation, ainsi que sur les surfaces de rupture. L'intérêt de ce matériau est double:

- Du point de vue de l'ingénieur, bien que possédant une énergie de rupture moyenne à supérieure, il possède des propriétés de rupture exceptionnellement stables sur une gamme étendue de vitesse sollicitation. Selon notre expérience, cette propriété est suffisamment rare dans les polymères pour qu'elle mérite d'être relevée.

- Du point de vue de la recherche, il prouve que contrairement à certaines hypothèses émises, la phase modificatrice incluse ne doit pas forcément posséder une morphologie sphérique pour contribuer efficacement à l'élévation de la ténacité au choc.

Ces essais confirment bien l'efficacité plus grande du renforcement de la matrice PMMA par des nodules de type 3L, comparativement aux 2L. De plus, les propriétés statiques du 3L30 sont meilleures que celles du 2LB, puisqu'il ne comporte que ~15% d'élastomère en volume, alors que le 2LB en comprend 45%.

7.5.4.c) Comparaison de matériaux modifiés par des nodules de type 3L.

Dans le cadre du projet de collaboration avec le RIAM, nous avons caractérisé en rupture quatre matériaux:

- deux matrices PMMA non-modifiées, l'une extrudée (EU), l'autre coulée (CM)
- deux matrices PMMA modifiées par des particules du type 3L, l'une extrudée (EM20), l'autre pressé (PM40)

Le EM20 possède 20% en poids de particules à noyau dur de 180 nm de diamètre et à écorce molle de diamètre de 230 nm. Le PM40 est modifié à raison de 40% en poids de particules. Il n'est pas produit commercialement en plaque extrudées, c'est la raison pour laquelle les plaques sont moulées par le producteur de la matière. Nous avons mesuré des diamètres de particules de 230 nm de diamètre pour le noyau dur et de 300 nm pour l'écorce molle (3L). Pourtant, selon le producteur des matériaux EM20 et PM40, il s'agirait de matrices modifiées par des particules identiques. La cause de la différence mesurée des diamètres des particules nous est inconnue. Le procédé de mise en oeuvre aurait-il une influence sur le diamètre apparent des particules après l'élaboration des plaques (nous n'en voyons aucune raison), ou bien l'information selon laquelle il s'agit des mêmes particules est-elle erronée?

A titre comparatif, nous avons porté sur les diagrammes les résultats du 3L30. En première approximation, on peut considérer que la taille et la morphologie des particules de renforcement sont les mêmes pour les deux produits extrudés (3L30: 250/200nm et EM20: 230/180 nm).

Comme le montre la Figure 7-29, le K_{max} croît de façon similaire pour les trois produits modifiés jusqu'à une vitesse de l'ordre de 2 ms^{-1} . Au delà, la ténacité est stable pour le 3L30 et le PM40. Le EM20 par contre est en pleine transition de comportement *sd-b* entre 5 et 13 ms^{-1} . Ainsi il semble bien que la présence d'une transition de comportement dans ce domaine de vitesse est liée à la fraction de particules. Pour les fraction supérieures à 20%, les matériaux conservent leur ténacité à grande vitesse. Malheureusement, il nous est difficile de conclure d'une manière totalement rigoureuse, étant donné que nous avons à faire à des diamètres de particules et à des procédés de mise en oeuvre légèrement différents.

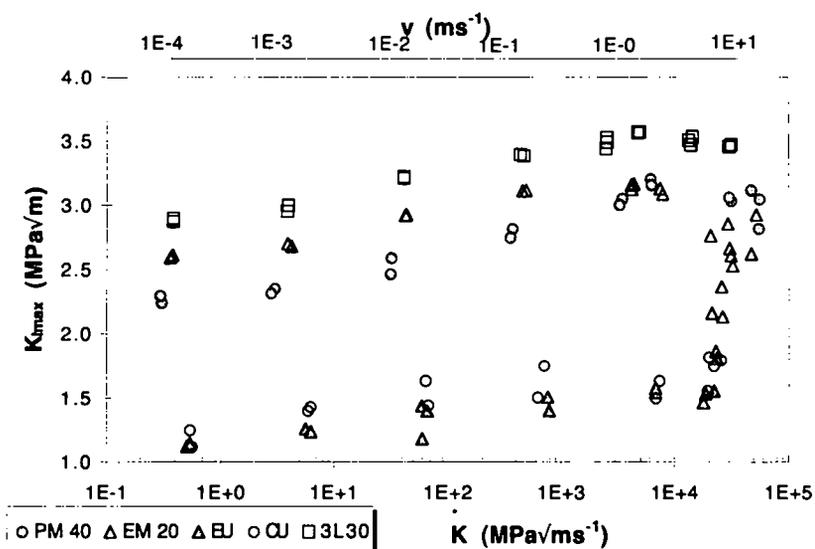


Figure 7-29: Facteur d'intensité des contraintes à la force maximale, $K_{I_{max}}$, en fonction de la vitesse de mise en charge du front de fissure, K . Matériaux coulés (C), pressée (P) et extrudés (E), modifiés (M) ou non-modifiés (U) choc, étudiés dans le cadre de l'étude avec le RIAM.

L'énergie de rupture est reportée à la Figure 7-30. Les valeurs mesurées sur les deux produits extrudée, EM20 et 3L30 évoluent d'une façon similaire. Celui qui comporte la plus grande fraction de nodules (30% pour le 3L30 contre 20% pour le EM20) est le plus dissipatif. La diminution de G_{IC} du EM20 est liée à la présence des transitions de comportement reportées sur le diagramme.

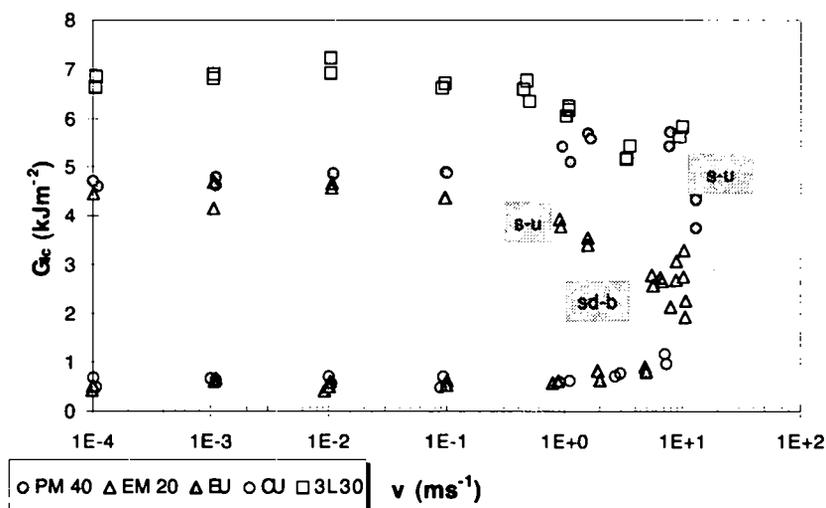


Figure 7-30: Taux de restitution critique de l'énergie de la déchirure, G_{IC} , en fonction de la vitesse d'essai, v . Matériaux coulés (C), pressée (P) et extrudés (E), modifiés (M) ou non-modifiés (U) choc, étudiés dans le cadre de l'étude avec le RIAM.

De façon surprenante, G_{IC} du PM40 augmente quelque peu entre 1 et 7 ms^{-1} avant de diminuer à nouveau. Bien qu'il compte 40% de nodules, soit une plus grande fraction que le 3L30, son énergie de rupture à basse vitesse est plus petite. Sur ce matériau, le blanchiment est moins marqué que sur le 3L30, et il n'est nettement visible sur la surface de rupture que jusqu'à

10^{-2} ms^{-1} . Au delà, le blanchiment de la rupture est peu marqué, bien que la propagation de la rupture soit stable, comme pour l'IPN.

7.5.4.d) Etude fractographique

Si les résultats des tests mécaniques sont précieux en regard des propriétés des matériaux à grande vitesse, l'observation microscopique des zones endommagées est le plus sûr moyen d'accéder à des informations capitales pour caractériser la nature des micromécanismes de déformation. Aussi, y avons nous accordé une grande importance dans cette étude. Nous présentons ici une sélection des résultats de nos observations fractographiques.

La microscopie optique en lumière polarisée sur des lames minces (5 à 10 μm) prélevées au front de fissure donne une bonne idée de la taille et de la nature de la zone endommagée. Pour cela, les éprouvettes doivent être déchargées avant la rupture. Aux petites vitesses de sollicitation lorsque la rupture est stable, il n'y a aucun problème pour décharger l'éprouvette. En revanche, cette manipulation est impossible lorsque la rupture est instable. Il faut donc décharger le plus rapidement possible les éprouvettes sollicitées aux grandes vitesses à un état de déformation le plus proche possible de leur rupture. Nous avons imaginé le système 'des jumeaux' qui est représenté à la Figure 7-31. Deux éprouvettes sont sollicitées en série. Bien que la contrainte soit identique dans les deux échantillons, l'un se rompt avant l'autre. Lorsque la rupture se propage dans un des spécimen à plusieurs centaines de ms^{-1} , son jumeau est déchargé quasi-instantanément. Si les longueurs de pré-fissures sont les mêmes, l'éprouvette non rompue conserve les mécanismes de déformation en tête de fissure figés tels qu'ils étaient juste avant la rupture, au déchargement élastique près. On peut ensuite les observer en découpant les éprouvettes selon le plan présenté à la Figure 7-31.

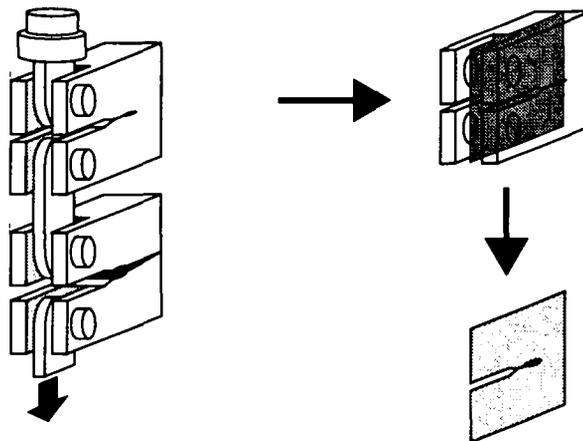


Figure 7-31: Système de déchargement rapide dit 'des jumeaux'.

Cette procédure fonctionne bien jusqu'à $\sim 2 - 3 \text{ ms}^{-1}$. Au delà, les deux éprouvettes peuvent être amenées à se rompre simultanément, car la somme de l'énergie élastique stockée et de l'énergie cinétique est suffisante pour amener le jumeau à la rupture avant sa décharge. Dans les photos de la Figure 7-32, les éprouvettes sollicitées à 1 ms^{-1} (à droite) ont été déchargées selon cette méthode.

Ces photos montrent bien la disparition aux grandes vitesses (1 ms^{-1}) de la zone blanchie (flamme noire) qui accompagne la propagation stable de la rupture aux petites vitesses (10^{-5} et 10^{-4} ms^{-1}). Sur les deux matériaux modifiés (2L45 et 3L30), plus aucune zone endommagée

n'est visible à cette échelle de grossissement à 1ms^{-1} . Toutefois, même à cette vitesse, et bien que les micromécanismes de déformation soient confinés dans un volume très petit autour de la surface de rupture, la fissure continue à croître de manière stable avant la rupture rapide. Comme le montre la photo du haut, même à basse vitesse aucun blanchiment n'accompagne la propagation de la rupture dans le PMMA non modifié (2L0).

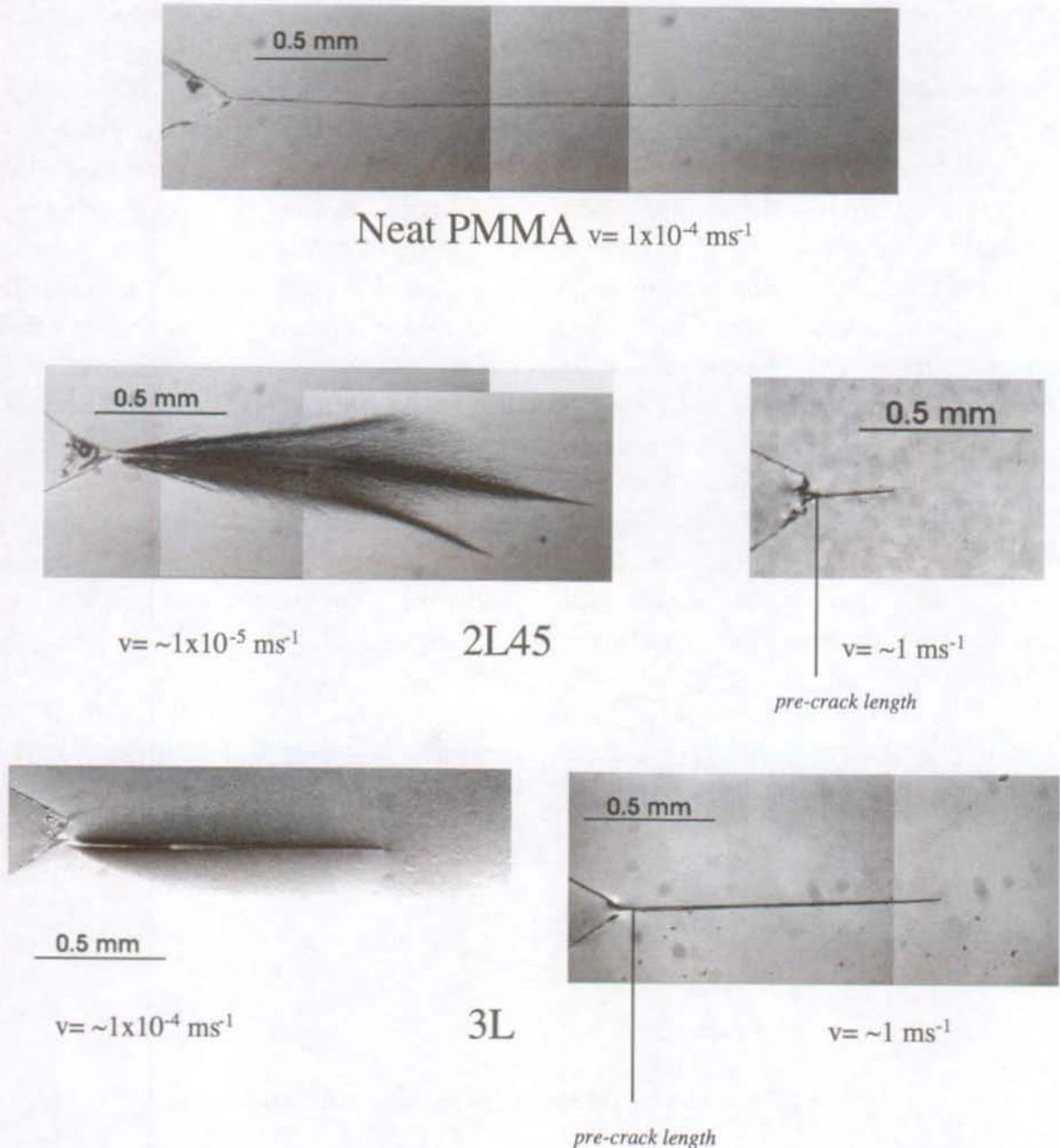


Figure 7-32: Observation de coupes minces en microscopie optique en lumière polarisée. Matériaux: 2L0, 2L45 et 3L. A 1ms^{-1} les éprouvettes ont été déchargées par la méthode des jumeaux.

L'utilisation de la microscopie électronique à balayage permet d'observer à fort grossissement les plans de rupture *post mortem*. Malheureusement l'observation en MEB ne donne pas de contraste entre les matériaux constituant la surface. Il n'est donc pas possible de

distinguer la matrice des particules. Les photos de la Figure 7-33 réalisées au Jeol 6300 montrent la surface de rupture d'un 3L30 rompu à 1ms^{-1} . La photo a) montre la zone de croissance stable de la fissure, la b) la croissance instable, et la c), la zone intermédiaire. L'état tourmenté des surfaces de rupture montre que les particules sont encore à l'état caoutchoutique à la vitesse de la propagation de la rupture ($400\text{-}500\text{ms}^{-1}$). Elles possèdent encore à ces vitesses la faculté d'engendrer une microplasticité localisée non négligeable. Des cavités sont clairement visibles autour des particules (en particulier sur la photo b).

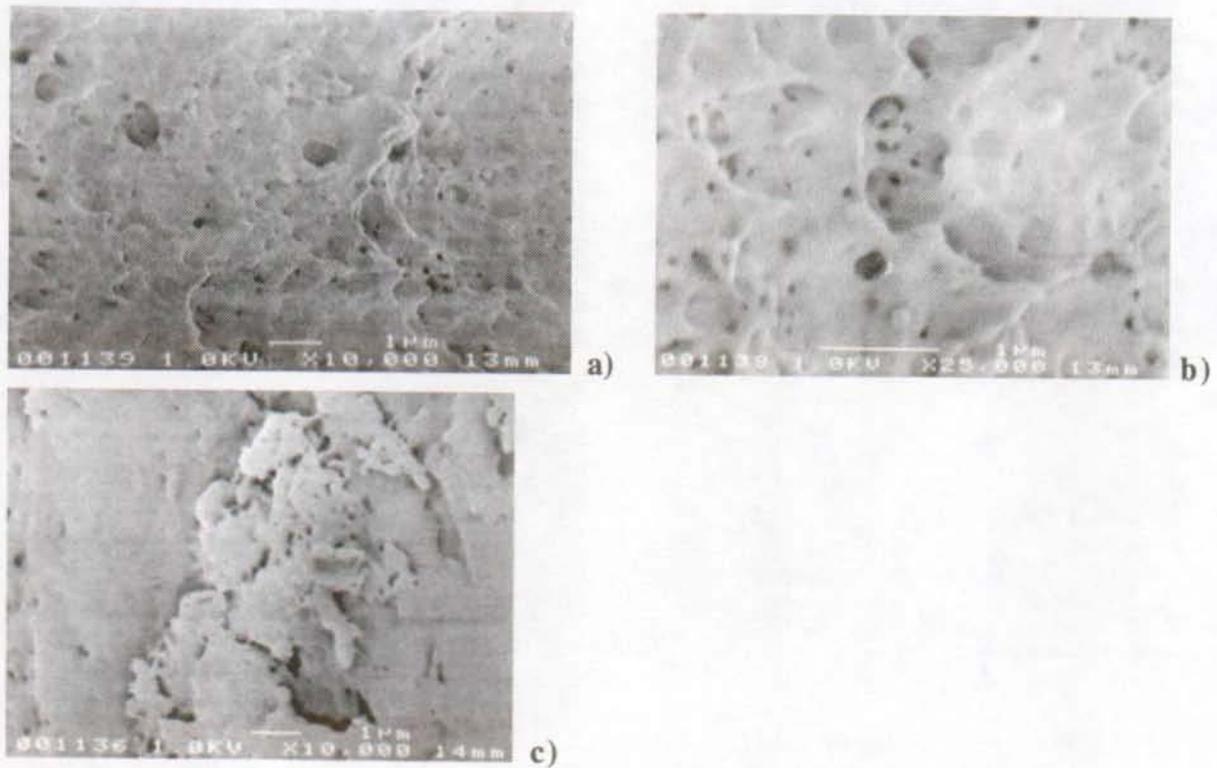


Figure 7-33: Surface de rupture du 3L30. Vitesse d'essai: 1ms^{-1} . Observation au MEB Jeol 6300, 1kV. a) région stable
b) région instable, c) zone intermédiaire

Les photos de la Figure 7-34 qui concernent le EM20, rompu dans les mêmes conditions conduisent aux mêmes conclusions.

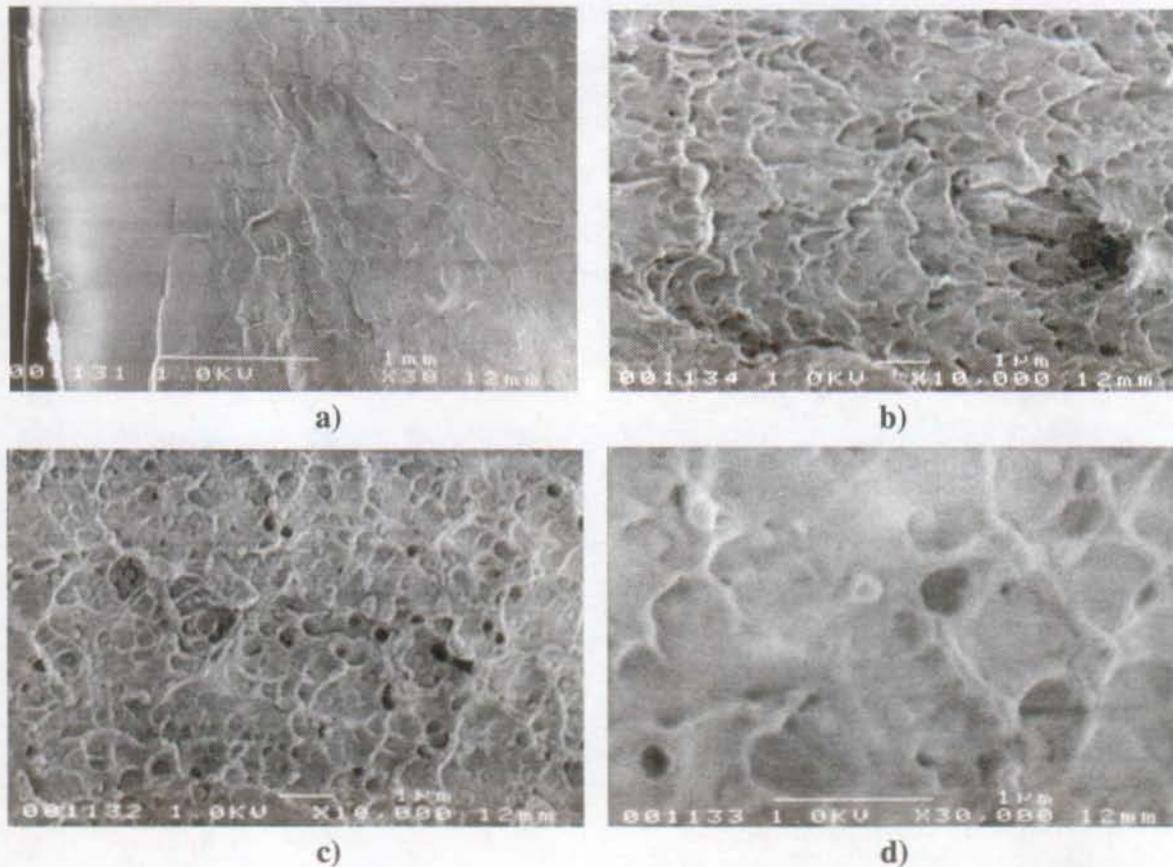


Figure 7-34: Surface de rupture du EM. Vitesse d'essai: 1ms^{-1} . Observation au MEB Jeol 6300, 1kV. a) propagation stable à gauche et instable à droite, b) région stable, c) région instable, d) détail de c)

D'une approche plus difficile, la microscopie électronique à transmission nécessite une préparation délicate et fastidieuse des échantillons à observer, mais donne plus d'information sur les mécanismes de déformation. A ce titre, les photos de la Figure 7-35 sont précieuses, puisqu'à notre connaissance elles sont parmi les seules qui montrent les mécanismes de déformation dans un PMMA modifié au choc. Elles ont été réalisées sur une coupe de 100 nm d'épaisseur, prélevée au centre d'un échantillon massif de EM20 dont la fissure a été préalablement propagée de façon stable. Le contrastage entre la phase caoutchoutique (en noire) et la matrice (claire) est obtenu par l'exposition du matériau au RuO_4 . En raison des manipulations nécessaires à la préparation de l'éprouvette pour le MET, il ne nous est pas possible d'associer une vitesse de sollicitation exacte. Nous retiendrons qu'il s'agit d'une vitesse moyenne ($\sim 10^{-3}\text{ms}^{-1}$). La découpe du film à la température ambiante par ultramicrotomie à couteau de diamant n'a pas causé de dégâts visibles (c'est évident dans les parties non déformées du film).

Il s'agit donc ici de l'observation des mécanismes de déformation aux abords de la tête de la fissure se propageant dans un matériau plein (état de contrainte triaxial). Il est particulièrement intéressant d'observer un front de fissure, car la concentration des contraintes présente engendre

un gradient de déformation qui permet d'observer tous les stades des mécanismes de déformation, depuis le matériau à l'état non déformé, jusqu'à la rupture par dépassement de la déformation admissible. La photo a) de la Figure 7-35 montre bien l'ensemble de ces différents stades de déformation. En parcourant les photos b) à f), on voit tous les mécanismes de déformation de leur initiation à leur rupture:

Photo b): apparition des craquelures dans la matrice. Les particules situées en haut à gauche de la photo ne sont pas contrastées parce qu'elles ne sont pas liées au réseau de craquelure de la zone endommagée. Le RuO_4 n'a donc pas pu diffuser jusqu'à elles. La frontière entre les particules dont la couronne a cavité et celles qui n'ont pas cavité est nette. Pratiquement toutes les particules de la première rangée qui ont cavité, possèdent déjà une craquelure de part et d'autre de leur équateur. Il est difficile de distinguer si la cavitation intervient avant l'initiation des craquelures, ou en même temps. Quoi qu'il en soit, si les deux mécanismes ne sont pas simultanés, ils en sont très proches.

Photo c): Les craquelures s'ouvrent par étirement des réseaux de fibrilles qui sont clairement visibles sur la photo. En même temps, les craquelures s'étendent dans la matrice.

Photo d): Les craquelures continuent à s'ouvrir et à s'étendre dans la matrice. A ce stade, tous les nodules sont interconnectés par le réseau de craquelure. Les couronnes caoutchoutiques des nodules sont plus déformées à leurs pôles et comportent des cavités séparées par des fibrilles de grande épaisseur.

Photos e) et f): Les craquelures continuent à s'étendre dans la matrice, et elles sont presque toutes séparées en deux dans leur progression (branchement de craquelure). De nouvelles craquelures naissent, de ou vers les nodules selon une direction particulière, à $\sim 45^\circ$ par rapport aux craquelures initiales. Les craquelures ne partent plus, ou ne tendent plus vers l'équateur mais plutôt vers les pôles des particules. La raison probable de ce changement graduel de la direction des craquelure est une redistribution de l'état de contrainte global en tête de fissure par les mécanismes de déformation en développement.

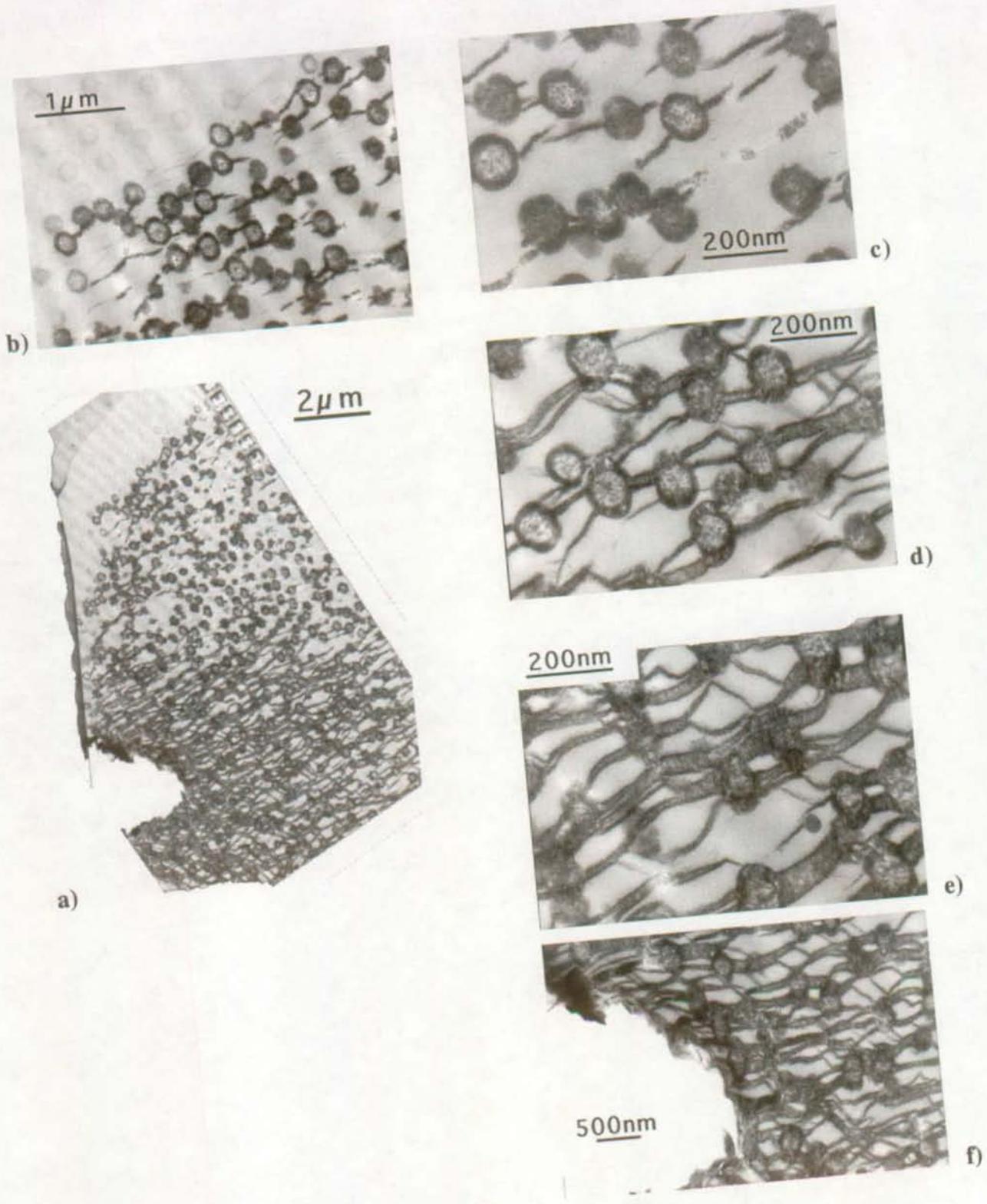


Figure 7-35: Micromécanismes de déformation en tête d'une fissure dans le EM.
 Coupes de 100 nm d'épaisseur, prélevées à l'ultramicrotome.
 Contrastage au RuO₄. Observation au MET Philips EM 300, 100 kV

Tout se passe comme si entre l'initiation des premières craquelures et leur rupture, la direction des déformations principales tournait d'environ 45°. Pour nous, il s'agit du résultat d'un changement de l'état des contraintes et des déformations globales dans la zone d'endommagement. La zone endommagée passe d'un état plan de déformation prédominant à un état plan de contrainte prédominant. Si de telles observations sont confirmées ultérieurement, il pourrait s'agir à notre avis de l'un des mécanismes déterminants de renforcement des matériaux modifiés choc.

Nous avons réalisé une approche microscopique en tout point similaire à celle du EM20 ci-dessus, sur l'IPN. L'observation du réseau PU s'est avérée plus délicate en raison de sa sensibilité au faisceau d'électrons. Les photos de la Figure 7-36 montrent les micromécanismes de déformation en tête de fissure dans l'IPN. Ici le PU apparaît en clair car la solution de contrastage n'a pas pu diffuser dans le matériau. Comme dans le cas du EM20, nous avons contrasté l'échantillon dans la solution de RuO₄ avant la coupe. Le contrastage n'a donc pénétré que sur une profondeur de quelques dizaines de nanomètres. Ceci prouve que les cavités observables dans l'IPN (photo b) ne sont pas interconnectées comme le sont les craquelures présentes dans le EM20.

Les déformations sont concentrées dans la phase PU. On n'observe pas de craquelures dans la matrice, et seule la phase caoutchoutique cavite. Là où elles s'initient, les zones déformées sont orientées perpendiculairement à la contrainte appliquée. La même remarque que précédemment est valable: proche du front de la fissure, la direction des déformations change et s'oriente selon un angle pour donner lieu à un maillage déformé. Les îlots de matrice prisonniers au sein du réseau déformé sont sollicités en cisaillement. La photo a) donne l'impression que la fissure traverse la zone endommagée par écoulement du matériau le long de sa surface. L'échelle des mécanismes de déformation est similaire à celle observée sur le EM20.

Des cavités similaires en taille et en nombre à celles observées à la Figure 7-36 b) sont visibles sur la surface de rupture de l'IPN. La Figure 7-37 montre la surface en MEB d'une rupture stable propagée à 1ms⁻¹. La ligne verticale au centre de l'image correspond à la séparation entre la préfissure et la rupture. La zone d'initiation comporte un taux de cavités plus élevées, arrangées selon une ligne.

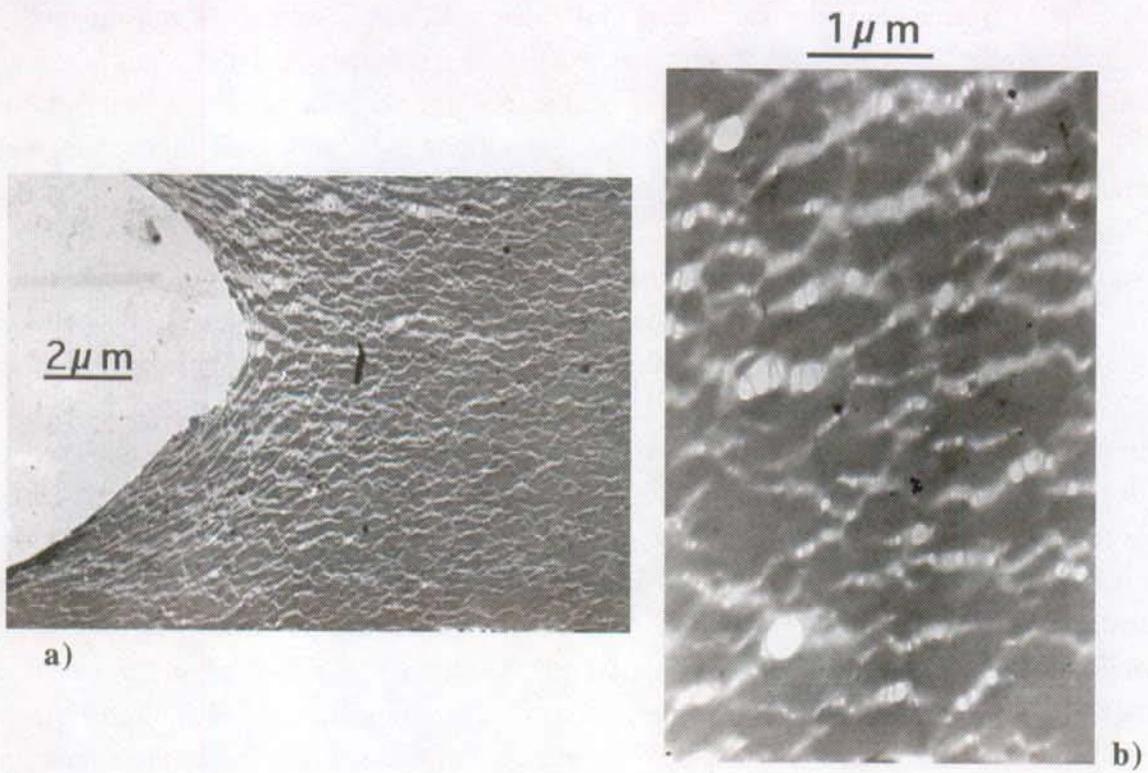


Figure 7-36: Micromécanismes de déformation en tête d'une fissure dans l'IPN. Coupes de 100 nm d'épaisseur, prélevées à l'ultramicrotome. Contrastage au RuO₄. Observation au MET Philips EM 300, 100 kV.

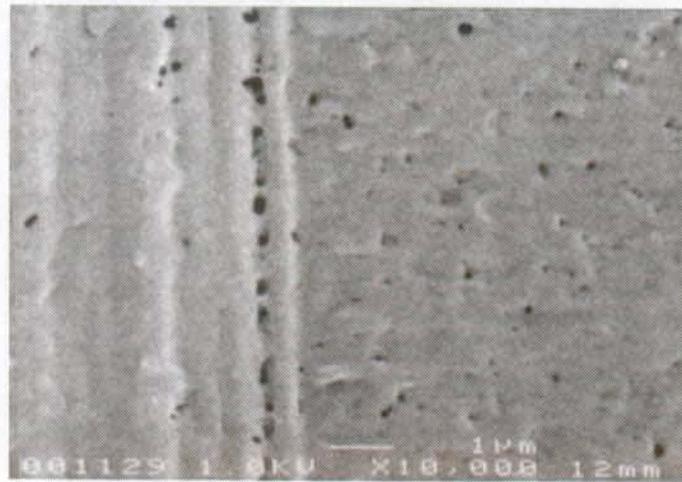


Figure 7-37: Surface de rupture de l'IPN. De gauche à droite: pré-fissure, zone intermédiaire et zone de propagation stable. Vitesse d'essai: 1ms-1. Observation au MEB Jeol 6300, 1kV

7.5.5. Discussion

7.5.5.a) Résultats.

K_{lmax}

D'une manière incontestable nos mesures montrent que, tant au niveau de la ténacité que de l'énergie de rupture, les particules à noyau vitreux et à écorce caoutchoutique (3L) procurent la meilleure modification au choc du PMMA que nous ayons étudié. Ces résultats confirment ceux d'autres groupes de recherche [42,13]. Cette morphologie permet de combiner des propriétés statiques tout à fait acceptables avec une excellente ténacité sur une large gamme de vitesse de sollicitation.

Lorsque la fraction volumique, v_f , est variée, et que le diamètre des particules n'est pas modifié, le degré d'interaction entre les particules change. En effet, l'interaction est caractérisé par le rapport de la distance entre particules, τ , et leur diamètre extérieur, D , qui est exprimé par:

$$\frac{\tau}{D} = \left(\frac{\pi}{6v_f} \right)^{\frac{1}{3}}$$

Nous avons vu par les essais du 2L15-2L45 que la distance d'interaction joue un grand rôle dans la position en vitesse des transitions de comportement. Plus la distance d'interaction est petite (v_f élevé) plus les transitions sont décalées vers les hautes vitesses. Si la distance interparticule et le diamètre des nodules jouent un rôle important, comme le suggère Wu [62], il ne sont certainement pas les seuls paramètres à prendre en compte pour l'établissement d'un modèle de ténacité. Nos résultats montrent que la morphologie de la phase modificatrice est également un paramètre déterminant.

Les résultats de l'IPN prouvent qu'une morphologie sphérique de la phase modificatrice n'est pas une condition nécessaire à l'augmentation de K_{lmax} . D'un point de vue phénoménologique, la propagation stable de la rupture à toutes les vitesses est un facteur capital. Il résulte d'un équilibre entre la vitesse de rupture et le développement de la plasticité localisée en tête de la déchirure. Son blanchiment au voisinage de la rupture est moins marqué que celui des produits mis en oeuvre par élévation de la température.

G_{IC}

Nos résultats montrent l'importance du rôle joué par la morphologie de la phase modificatrice. Ainsi, l'énergie de rupture ne dépend pas directement de la fraction de caoutchouc incluse en valeur absolue. Toutefois, pour une morphologie donnée il semble bien que l'énergie de rupture s'accroît lorsque le contenu en particule augmente. L'IPN est l'exception puisque selon Heim *et coll.* [6] sa ténacité est la plus élevée pour un contenu de PU de 5-6%.

Bien que l'on ne considère que l'énergie d'initiation, il est paradoxal de constater que G commence à diminuer pour tous les matériaux lorsque la transition stable-instable est passée, alors que K continue à augmenter après cette transition. On peut expliquer cela: bien que tous les mécanismes d'endommagement soient développés à F_{max} , les processus de relaxation nécessaire à la translation de la zone endommagée avec la croissance de la fissure ne peuvent avoir lieu. Le

processus de relaxation en cause pourrait être la stabilisation de la contrainte dans les fibrilles des craquelures lors de leur extension, décrite au chapitre 1. L'IPN qui ne présente ni transition **s-u**, ni craquelures présente une énergie de rupture constante sur toute la gamme de vitesse. Comme le montre la Figure 7-24, la diminution drastique de l'énergie d'initiation au passage des transitions **d-sd** et **sb-b** résulte de la disparition progressive du blanchiment et des mécanismes qui lui sont associés

7.5.5.b) Mécanismes de déformation en rupture.

Energétiquement parlant, il est plus difficile de créer une cavité d'une taille significative dans la matrice en regard des mécanismes de déformation qui lui sont propres, que d'assurer l'extension de cette cavité par des mécanismes d'écoulement moléculaires de la matière qui l'entoure. Revenons encore sur le fait que la cavitation des particules semble bien être l'événement déterminant. La cavité, une fois initiée reporte sur la matrice avoisinante l'incrément de déformation libéré lors de sa création. La plasticité locale de la matrice est alors déclenchée, et se propage par des mécanismes qui lui sont propres.

Nous avons déjà discuté assez longuement la nature de ces mécanismes tels qu'ils ont été observés dans le PMMA. Nous référant aux mécanismes observés sur le EM20 entre la naissance des premiers endommagements dans les particules et la rupture, on peut les classer en trois étapes successives correspondant chacune à un mécanisme de déformation:

- I) Cavitation des particules et initiation des craquelures à l'équateur des nodules
- II) Ouverture des craquelures par étirement des fibrilles, propagation des craquelures
- III) Branchement des craquelures et densification du réseau craquelé, déformation en cisaillement de la matrice (écoulement) au passage de la rupture

La Figure 7-38 représente schématiquement ces mécanismes et les contraintes en tête de fissure qui correspondent à ces mécanismes.

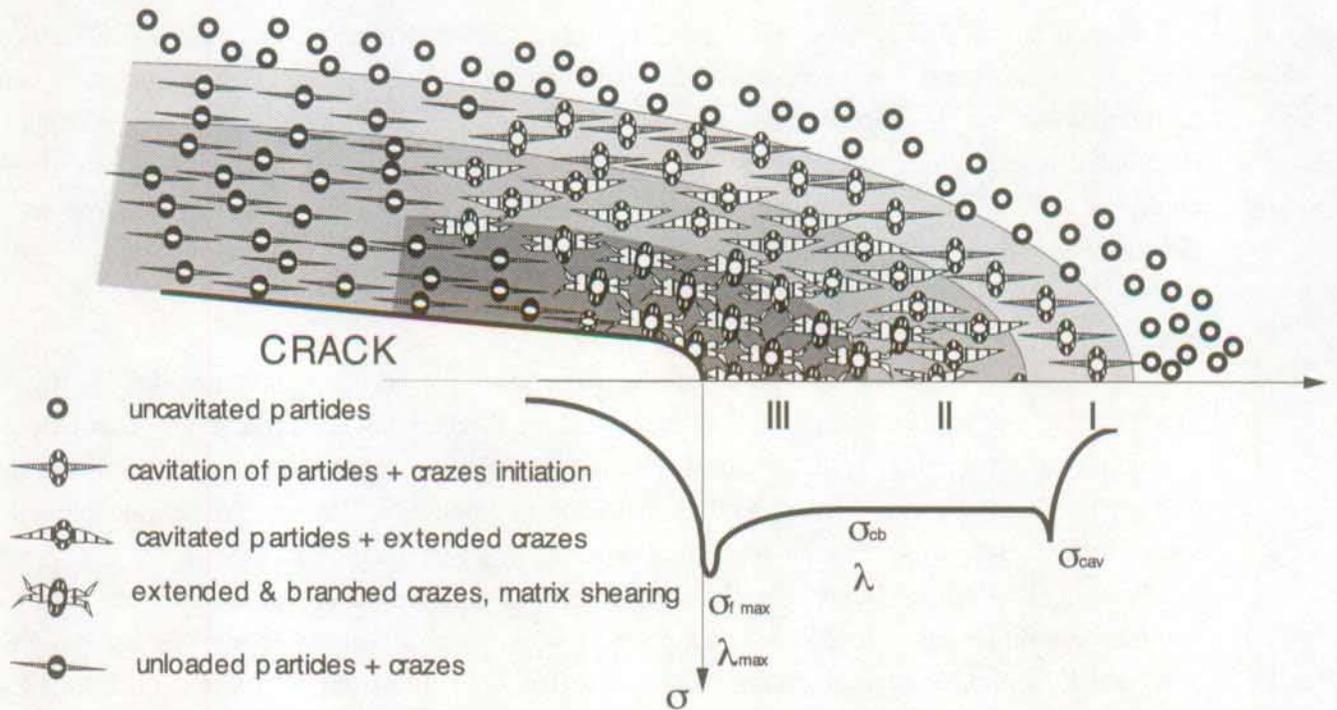


Figure 7-38: Représentation schématisée des mécanismes de déformation en tête de fissure d'un PMMA modifié par des particules 3L et des contraintes associées.

Pour les époxydes modifiées, Huang et Kinloch [63] ainsi que Tohdoh *et coll.* [64] proposent un modèle mécanique basé sur l'existence de trois mécanismes d'endommagement répartis en tête de fissure en trois domaines superposés, d'une façon similaire à ce que nous proposons ici. Au lieu de baser leurs analyses sur un champ élastique uniforme en tête de fissure, ils différencient les comportements mécaniques locaux de la zone endommagée en leur affectant des propriétés distinctes selon leur type d'endommagement. La nature des micromécanismes de déformation dans le PMMA est différente de ceux rencontrés dans les matrices époxydes, en particulier par le fait qu'elles ne forment pas de craquelures. Malgré tout, c'est ce genre de modèle qu'il convient d'appliquer aux PMMA modifiés.

7.6. CONCLUSIONS

L'initiation de la cavitation de la phase caoutchoutique et l'extension des craquelures jusqu'à leur coalescence sont deux processus distincts qui possèdent chacun leur cinétique propre. Si tel est le cas, on conçoit aisément que l'existence de l'un, de l'autre ou des deux processus soit lié à la vitesse de déformation. Bucknall [7] a montré qu'en fluage le PMMA choc ne présente pas de déformation cavitationnelle, mais que la plastification de la matrice en cisaillement permet d'atteindre des déformations importantes. Dans nos essais en traction, dans le 3L comme dans l'IPN, c'est la cavitation initiale de la phase caoutchoutique qui engendre la plasticité de la matrice par une extension massive de la cavitation et du cisaillement de la matrice. Celle-ci s'accompagne d'un blanchiment important. La vitesse maximale de déformation en traction utilisée n'a pas permis d'atteindre une transition ductile-fragile.

Selon nous, le développement des craquelures suit immédiatement la rupture de l'écorce d'élastomère. Ainsi, pour engendrer une plasticité diffuse dans la matrice, l'initiation de la cavitation dans la phase caoutchoutique doit intervenir à un seuil d'énergie d'activation plus bas que celui qui est nécessaire à la rupture de la matrice.

En mécanique de la rupture, des comportements semi-fragiles et fragiles ont été observés sur certains mélanges. La transition ductile-fragile résulte du fait qu'ils sont incapables de propager à grande distance les mécanismes qu'ils ont initié, en raison de la faible mobilité moléculaire à la vitesse de déformation imposée. La Figure 7-39 montre les différents domaines formant la zone blanchie en tête de fissure. Elle comporte des diagrammes représentant schématiquement la sollicitation en traction σ - ϵ équivalente aux mécanismes de déformation locaux (a-c).

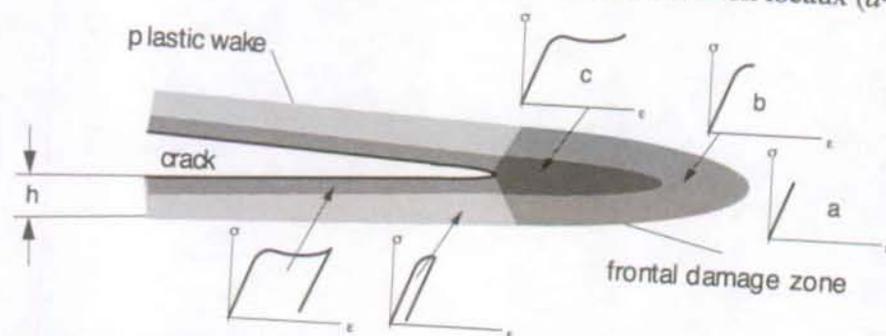


Figure 7-39: Schéma des différents domaines impliqués dans la formation de la zone blanchie en rupture.

Tant que le matériau possède un comportement du type c , la zone blanchie est présente et l'énergie de rupture est élevée. L'élévation de la vitesse de déformation provoque la transition ductile-fragile du matériau en le faisant évoluer du comportement c vers le comportement a . En conséquence, la zone blanchie qui nécessite pour sa formation l'existence des comportements c et b , disparaît progressivement avec l'élévation de la vitesse.

De la même façon, si certains mélanges se comportent de façon totalement fragile à grande vitesse, c'est peut-être en raison de leur incapacité à développer des sites d'endommagement de la phase caoutchoutique. A fortiori, aucune plasticité de la matrice n'est possible dans un tel scénario.

7.7. ENGLISH CAPTIONS

Table 7-1: Summary of the influence of the modifying parameters on the mechanical properties of modified PMMA.

Table 7-2: Summary the PMMA studied.

Figure 7-1: The chemical structure of PMMA.

Figure 7-1: Morphology of the modifying particles a) two layers with soft core, b) three layers with hard core and soft shell. c) Chemical structure of the rubbery phase.

Figure 7-2: Principle of the simultaneous synthesis of the interpenetrating polymers networks PU-PMMA [6].

Figure 7-3: Morphology of the mains impact PMMA studied. Thin cuts of 100-300 nm microtomed from the plain materials. Stained in a RuO_4 solution. Observation in TEM Philips EM 300, 100 kV.

Figure 7-4: Rubber toughened PMMA 3L30: Typical stress, σ , versus strain, ϵ , curves over 6 decades of strain rates.

Figure 7-5: IPN: Typical stress, σ , versus strain, ϵ , curves over 6 decades of strain rates.

Figure 7-6: 3L30 and IPN: the tensile modulus, E , versus the log of the strain rate, $\dot{\epsilon}$.

Figure 7-7: 3L30 and IPN: the engineering yield stress, σ_y , and the yield strain, ϵ_y , versus the log of the strain rate, $\dot{\epsilon}$.

Figure 7-8: 3L30 and IPN: the amplitude of the post yield stress hardening, $(\sigma_y - \sigma_p)$ versus the log of the strain rate, $\dot{\epsilon}$.

Figure 7-9: Schematic representation of the optical detector used to measure the stress whitening in-situ.

Figure 7-10: Example of stress, σ , and optical transmission, T , versus strain, ϵ , measurement in a 3L30. Strain rate: $4 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$.

Figure 7-11: 3L30: changes in the optical transmission, T , versus the strain, ϵ , at different strain rates.

Figure 7-12: IPN: changes in the optical transmission, T , versus the strain, ϵ , at different strain rates.

Figure 7-13: Comparison between the yield strain, ϵ_y , and the threshold of strain at which the rapid loss of transparency begins, ϵ_s , plotted versus the log of the strain rate, $\dot{\epsilon}$. a) 3L30, b) IPN.

Figure 7-14: 3L30: Comparison between a) the engineering stress, σ , and b) the true stress, σ_{eff} , plotted versus the strain, ϵ .

Figure 7-15: IPN: Comparison between a) the engineering stress, σ , and b) the true stress, σ_{eff} , plotted versus the strain, ϵ .

Figure 7-16: Lateral strain, ϵ_{lat} , plotted versus the longitudinal strain, ϵ , for a) the 3L30, and b) the IPN.

Figure 7-17: Cavitation strain, ϵ_{cav} , plotted versus the total longitudinal strain, ϵ , for a) the 3L30, and b) the IPN.

Figure 7-18: Separation of the different contributions to the total strain: ratio of the elastic strain, ϵ_{elas}/ϵ , of the cavitation strain, ϵ_{cav}/ϵ , and of the shear strain, $\epsilon_{shear}/\epsilon$, over the total strain, plotted versus the total strain, ϵ . a) 3L30 at $\dot{\epsilon} = 5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ (2 mm min^{-1}), b) 3L30 at $\dot{\epsilon} = 3.5 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ (200 mm min^{-1}), c) IPN at $\dot{\epsilon} = 5 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ (2 mm min^{-1}), d) IPN at $\dot{\epsilon} = 4.3 \times 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ (200 mm min^{-1}).

Figure 7-19: Unmodified high molecular weights PMMA (GS 233): a) The tensile stress, σ , - strain, ϵ , behaviour and the cavitation strain, ϵ_{cav} . b) Separation of the different contributions to the total strain: ratio of the elastic strain, ϵ_{elas}/ϵ , of the cavitation strain, ϵ_{cav}/ϵ , and of the shear strain, $\epsilon_{shear}/\epsilon$, over the total strain, plotted versus the total strain, ϵ .

Figure 7-20: a) Soft core particle b) cavitation under stress, and c) dilatation bands arranged in arrays. After Lazzeri and Bucknall [57, 58].

Figure 7-21: TEM observations in a stretched film of 3L30. a) deformation onset, and b) large deformation. The microtomed film was 300 nm thick, (unstained).

Figure 7-22: Typical force versus displacement behaviour in a CT specimen of 3L30, and optical microscopic observations of the crack front are shown at different stages of the loading. Thin sections were removed from the centre of the specimen and polished for observation.

Figure 7-23: Schematic representation of the crack shape adjustment. The numbers correspond to the pictures in Figure 7-22.

Figure 7-24: Typical force versus displacement plots associated with damaged zone growth, and the transitions of behaviour.

Figure 7-25: Influence of the fraction of 2L type particles (160 nm in diameter) on the stress intensity factor measured at the maximum of force, K_{Imax} , plotted versus the crack tip loading rate, \dot{K} . Contents in volumic fraction of particles: 2L0: 0%, 2L 15: 15%, ...

Figure 7-26: Influence of the fraction of 2L type particles (160 nm in diameter) on the critical energy release rate, G_{IC} , plotted versus the testing speed, v . Contents in volumic fraction of particles: 2L0: 0%, 2L 15: 15%, ...

Figure 7-27: Stress intensity factor measured at the maximum of force, $K_{I_{max}}$, plotted versus the crack tip loading rate, K . Three different morphologies of the rubbery phase are shown: core-shell (3L), core (2L), and interpenetrating network (IPN).

Figure 7-28: Energy release rate, G_{IC} , plotted versus the testing speed, v . Three different morphologies of the rubbery phase are shown: core-shell (3L), core (2L), and interpenetrating network (IPN).

Figure 7-29: Stress intensity factor measured at the maximum of force, $K_{I_{max}}$, plotted versus the crack tip loading rate, K . Cast (C), and extruded (E) materials, modified (M), and unmodified (U) are represented. These were investigated in the joint project with RIAM.

Figure 7-30: Energy release rate, G_{IC} , plotted versus the testing speed, v . Cast (C), and extruded (E) materials, modified (M), and unmodified (U) are represented. These were investigated in the joint project with RIAM.

Figure 7-31: The so-called 'Twin' method, used for rapid unloading.

Figure 7-32: Polished thin sections removed from the crack tip, and observed by optical microscopy in polarised light. Materials: 2L0, 2L45 and 3L30. At 1 ms^{-1} , the specimens have been unloaded by the 'Twin' method.

Figure 7-33: Post mortem fracture surface of a 3L30 observed in SEM Jeol 6300, 1kV. a) stable crack propagation zone, b) unstable crack propagation zone, and c) intermediate zone. The testing speed was 1 ms^{-1} .

Figure 7-34: Post mortem fracture surface of a 3L30 observed in SEM Jeol 6300, 1kV. a) stable crack propagation zone to the left and unstable crack propagation zone to the right of the picture, b) stable propagation zone, c) unstable propagation zone, d) higher magnification of c). The testing speed was 1 ms^{-1} .

Figure 7-35: Micromechanisms of deformation at a crack tip of a EM. Cuts of 100 nm microtomed in the centre of the specimen. Stained in a RuO_4 solution. Observation in TEM Philips EM 300, 100 kV.

Figure 7-36: Micromechanisms of deformation at a crack tip of an IPN. Cuts of 100 nm microtomed in the centre of the specimen. Stained in a RuO_4 solution. Observation in TEM Philips EM 300, 100 kV.

Figure 7-37: Post mortem fracture surface of an IPN observed in SEM Jeol 6300, 1kV. The testing speed was 1 ms^{-1} . The precracked zone is at left, the stable crack propagation zone at right, the middle of the picture shows the process zone.

Figure 7-38: Schematic representation of the deformation mechanisms and the related stress state ahead of the crack tip in a PMMA modified by core-shell type particles (3L).

Figure 7-39: Schematic representation of the different stages involved in the formation of the stress-whitened zone and the plastic wake, in a fracture.

7.8. REFERENCES

- 1 Echte A., Rubber Toughened Plastics. *Advances in Chemistry Series 222*, K. Riew ed., ACS Washington, (1989), pp. 15-64
- 2 Kinloch A. J., Rubber Toughened Plastics. *Advances in Chemistry Series 222*, K. Riew ed., ACS Washington, (1989), pp. 67-91
- 3 Pearson R. A., Thèse de doctorat, (1990), University of Michigan
- 4 Donald A. M., Kramer E. J.. *J. Mat. Sci.* **17**, (1982), p. 1765
- 5 Lee Z.J., Lovell P.A., Rochanapon B., Young R.J, Yusof Z.A.M., *Proceedings of the American Chemical Society*, Division of Polymeric Materials: Science and Engineering, (1994), Spring Meeting San-Diego (CA), p. 157
- 6 Heim Ph., Wrotecki C., Avenel M., Gaillard P., IPN, *Polymer* **34**, (1993) 8, p. 1653
- 7 Bucknall C. B., Partridge I. K., Ward M. V., *J. Mat. Sci.* **19**, (1984), p. 2064
- 8 Milios J.G., Papanicolaou G.C., Young R.J, *Engineering Applications of New Composites* (1988), Omega Scientific, ed. Paipetis S.A., Papanicolaou G.C., p.353.
- 9 Mauzac O, Schirrer R., *J. Mat. Sci.* **25** (1990), pp. 5125-5133
- 10 Gloagen J. M., Steer P., Gaillard P., Wrotecki C., Lefebvre J.M., *Polymer Engineering and Science* **33** (1993), 12, pp. 48-753
- 11 Gloagen J. M., Lefebvre J.M., Wrotecki C., *Polymer* **34** (1993), 2, pp. 443-445
- 12 Lovell P.A., McDonald J., Saunders D.E.J., Sherratt M.N., Young R.J., Toughened Plastics I, *Advances in Chemistry Series 233*, K. Riew and Kinloch A.J.ed., ACS Washington, (1993), pp. 61-77
- 13 Archer A.C., Lovell P.A., McDonald J., Sherratt M.N., Young R.J., *Proceedings of the American Chemical Society*, Division of Polymeric Materials: Science and Engineering, (1994), Spring Meeting San-Diego (CA), p 153
- 14 O. Julien, *Thèse de doctorat*, Université Pierre et Marie Curie (Paris VI) (1995).
- 15 Mauzac O., Schirrer R., *Journal of Applied Polymer Science* **38** (1989), pp. 2289-2302
- 16 Wrotecki C., Heim P., Gaillard P., *Pol. Eng. and Sc.* **31**, (1991), 4., p. 213
- 17 Imperial Chemical Industries Ltd., Brevet Br. 965,786 (1964)
- 18 Imperial Chemical Industries Ltd., Brevet Br. 1,093, (1967)
- 19 Röhm and Haas, Brevet Br. 1,340,025 (1973)
- 20 Röhm and Haas, Brevet Br. 1,414,187 (1975)
- 21 Wrotecki C., Heim P., Gaillard P., *Polymer Engineering and Science* **31** (1991), 4 p. 213
- 22 Yang J., Soo Lee M., Cho K., *Proceedings of the American Chemical Society, Division of Polymeric Materials: Science and Engineering*, (1994), Spring Meeting San-Diego (CA), p.145
- 23 Frisch H.L., Klempner D., Frisch K, *Journal of Polymer Science Part B* **7**, (1969), p. 775
- 24 Sperling L.H., Friedman D.W, *Journal of Polymer Science Part A2* **7**, (1969), p. 425
- 25 Sperling L.H., *Interpenetrating Polymer Networks and Related Materials*, Plenum Press New York (1981)
- 26 Sperling L.H., Interpenetrating Polymer Networks, *Advances in Chemistry Series 239*, Klempner D., Sperling L.H, Ultracki L.A. ed., ACS Washington, (1994), pp. 3-38

- 27 Jin S. R., Meyer G.C., *Polymer* **27** (1986), p. 592
- 28 Jin S. R., Widmaier J.M., Meyer G.C., *Polymer* **29** (1988), p. 346
- 29 Heim Ph, *SFC'94*, Division Matériaux Polymères et Elastomères, Lyon (1994)
- 30 Mishra V., Sperling L.H., *Polymer* **36**, (1995), 18, pp. 3593-3595
- 31 ESIS, TC4, 4th Round Robin on rtPMMA, Summary, May-October 1992
- 32 Gäumann M., *Projet de semestre DMX 7*, février 1994
- 33 Robert G., *Projet de semestre DMX 7*, février 1995
- 34 Gregory A., *rapport interne*, août 1995
- 35 Tohdoh M, Takahashi K., Béguelin Ph., Kausch H.H., soumis à *Journal of The Society of Materials, Japan* (1995)
- 36 Wrotecki C., Heim P., Gaillard P., *Polymer Engineering and Science* **31**, (1991), 4., p.218
- 37 Béguelin Ph, Julien O., Monnerie L., Kausch H.H., *Proceedings of the American Chemical Society, Division of Polymeric Materials: Science and Engineering*, (1994), Spring Meeting San-Diego (CA), p 147
- 38 Julien O., Béguelin Ph, Monnerie L., Kausch H.H., à paraître dans '*Toughened Plastics II*', *Advances in Chemistry Series*, K. Riew and Kinloch A.J. ed., (1996)
- 39 Schirrer R., Fond C., communication personnelle, Lausanne (1995)
- 40 Frank O., Lehmann J., *Colloid and Polymer Science* **264**, (1986), pp. 473-481
- 41 François P, Gloaguen J. M., Hue B., Lefebvre J. M., *Journal de Physique III France* **4**, (1994), pp 321-329
- 42 Hooley C.J., Moore D.R., Whale M., Williams M.J., *Plastics and Rubber Processing and Applications* **1**, (1981), pp. 345-349
- 43 Lovell P.A., Ryan A.J., Sherratt M.N., Young R.J., *Proceedings of the American Chemical Society, Division of Polymeric Materials: Science and Engineering*, (1994), Spring Meeting San-Diego (CA), p 155
- 44 Allen G., Bowden M.J., Blundell D.J, Jeffs G.M, Vyvoda J., Hutchinson F.G., *Polymer* **14** (1973), pp. 597-603.
- 45 Allen G., Bowden M.J., Blundell D.J, Jeffs G.M, Vyvoda J., White T, *Polymer* **14** (1973), pp. 604-616.
- 46 Allen G., Bowden M.J., Lewis G., Blundell D.J, Jeffs G.M, *Polymer* **15** (1974), pp. 13-18.
- 47 Allen G., Bowden M.J., Lewis G., Blundell D.J, Jeffs G.M, Vyvoda J., *Polymer* **15** (1974), pp. 19-27.
- 48 Allen G., Bowden M.J., Todd M., Blundell D.J, Jeffs G.M, Davies W.E, *Polymer* **15** (1974), pp. 28-32.
- 49 Blundell D.J., Longman G.W, Wignall G.D, Bowden M.J., *Polymer* **15** (1974), pp. 33-36.
- 50 Hur T, Manson J.A., Hertzberg R.W., Sperling L.H, *Journal of Applied Polymer Science* **39**, (1990), pp. 1933-1947
- 51 Akay M, Rollins S.N., Riordan E, *Polymer* **29**, (1988), pp. 37-42
- 52 Hermant I., Meyer G., *Eur. Polym. Journal* **20**, (1984), pp. 85
- 53 Schirrer R., Fond C., Lobrecht A, soumis à *J. Mat. Sci.* (1996)
- 54 Heihens D., Sjoerdsma S.D., Coumans W.J., *J. Mat. Sci.* **16**, (1981), p.429
- 55 Bucknall C.B., Karpodinis A, Zhang XC, *J. Mat. Sci.* **29** (1994), pp. 3377-3383
- 56 Dompas D., Groeninckx G., *Polymer* **35** (1994) 22, pp. 4743-4749
- 57 Lazzeri A., Bucknall C.B., *Polymer* **36** (1995) 15, pp. 2895-2902
- 58 Lazzeri A., Bucknall C.B., *Polymer* **36** (1995) 15, p. 2895

- 59 Plummer C.J.G, Béguelin Ph, Kausch H.H., *Polymer*, **37**, (1996), p.7
- 60 ESIS Technical Committee 4, 'A Linear Elastic Fracture Mechanics (LEFM) Standard for Determining K_{Ic} and G_{Ic} for Plastics -Testing Protocol 1990-'
- 61 Stalder B., Béguelin Ph., Roulin A-C., Kausch H.H., *J. Mat. Sc.* **24**, (1987), pp. 2262
- 62 Wu S., *J. of App. Pol. Sc.*, **35** (1988), p. 549
- 63 Huang Y., Kinloch A.J., *J. Mat. Sci.*, **27**, (1992), p. 2753
- 64 Tohdoh M., Chaturvedi S.K., Sierakowski R.L., *Int. J. Fract.*, **75**, (1996), p.285

CHAPITRE 8

8. CONCLUSIONS.

8.1. TECHNIQUES EXPERIMENTALES PROPOSEES.

La mesure de l'influence de la vitesse de sollicitation sur les propriétés mécaniques des polymères nécessite des techniques expérimentales fiables. Le développement de procédures permettant d'accroître progressivement la vitesse des essais de traction et de rupture, constitue une partie importante de ce travail. L'étude des conséquences des importantes accélérations auxquels sont soumises les structures testées (et les dispositifs de mesure) dans les essais de choc, a montré qu'elles sont la cause d'imprécisions importantes.

Notre approche est originale, parce qu'elle vise à réduire les effets dynamiques par une accélération plus modérée des éprouvettes testées. Par là, les conditions expérimentales aux grandes vitesses d'essais restent les mêmes qu'aux basses vitesses. La nature dynamique des essais est supprimée, mais les temps de sollicitations courts, et les vitesses de déformation élevées sont conservées. Une analyse statique des mesures est justifiée parce que le mode de chargement est quasi-statique. Cette méthode permet d'accéder au comportement des polymères sollicités aux hautes vitesses de déformation (strictement, il convient de parler de vitesses intermédiaires, les hautes vitesses étant réservées aux essais balistiques).

8.1.1. Essais de traction.

8.1.1.a) Méthode.

L'application de la méthode proposée aux essais de traction ne pose pas de problèmes particuliers, pour autant que l'on soit capable de mesurer la déformation du fût de l'éprouvette. Pour cela, le développement et l'utilisation d'un extensomètre optique apparaît comme un élément important. Pour les vitesses élevées, une telle instrumentation est indispensable aux grandes déformations. Lorsque les déformations à la rupture sont petites (<6%), on pourrait recourir à l'application de jauges de contraintes (déformation est un terme plus approprié). Toutefois, la procédure de collage et de calibration est fastidieuse, et ne conduit pas toujours à de bons résultats. En particulier le collage de jauges sur les polymères pose problème, en raison de la mauvaise adhésion de ceux-ci, et des problèmes de compatibilité entre les adhésifs et les matériaux testés.

Même avec notre instrumentation, les grandes vitesses de traction ($\sim 10\text{ms}^{-1}$) sont difficiles pour les essais des polymères à comportement très fragile, comme par exemple les résines époxydes non modifiées. Comme le temps à la rupture est très court, et que la contrainte (mesurée par le biais du capteur de force) et la déformation (mesurée optiquement) ne sont pas mesurés aux mêmes endroits sur l'éprouvette, il en résulte un décalage temporel entre les signaux des deux capteurs. Le temps de propagation de la déformation dans le fût ne peut plus être négligé et le recalage de ces signaux n'est pas évident. Malgré tout, de bons résultats peuvent être obtenus jusqu'à $\sim 5\text{ms}^{-1}$ sur ces matériaux.

8.1.1.b) Interprétation des résultats.

On pourrait penser que la mesure d'un module d'élasticité tangent à l'origine de la courbe contrainte-déformation est faussée par l'accroissement progressif de la vitesse d'essai, en raison de l'utilisation d'un amortisseur. Dans la pratique, il n'en est rien, et nous n'avons encore pas rencontré de matériau possédant une inflexion positive de la courbe contrainte-déformation à sa base, ce qui indiquerait un tel problème. Probablement faut-il en conclure que la vitesse de déformation n'influence pas les propriétés des polymères à un tel point. De fait, dans les polymères à l'état vitreux, les mécanismes viscoélastiques responsables de la variation des propriétés des polymères dans le temps interviennent à des contraintes généralement plus élevées, lorsque la force motrice responsable des mouvements visqueux est suffisante. C'est la raison pour laquelle le module d'élasticité n'évolue généralement que très peu avec la vitesse. La situation est différente pour les polymères dont une partie importante de la structure est à l'état caoutchoutique (en dessus de T_g). Dans un tel cas, et en particulier pour les élastomères, le module dépend davantage de la vitesse.

Pour les matériaux qui présentent une plasticité élevée aux grandes vitesses de déformation, il ne faut pas perdre de vue qu'une élévation de température quasi-adiabatique intervient presque toujours après le seuil plastique. Les temps à la rupture sont courts (< 10 ms) et la dissipation d'énergie importante. Aussi, l'élévation de température atteint facilement plusieurs dizaines de degrés, et peut par là modifier les mécanismes de déformation en jeu.

8.1.1.c) Perspectives.

Nous considérons l'objectif initial, qui était l'accès aux grandes vitesses de déformation par des méthodes de quasi-routine comme atteint. La procédure d'essai est complètement développée bien que certaines améliorations de détail peuvent encore être apportées. En particulier, l'utilisation de l'extensométrie optique dans l'enceinte thermique pose encore quelques problèmes. Comme les détecteurs optiques doivent être gardés à l'extérieur de l'enceinte, et qu'ils se trouvent à grande distance de l'échantillon (~800mm), il n'est pas aisé d'avoir une intensité lumineuse suffisante à la sortie des fibres optiques.

De même, disposer d'un second extensomètre optique pour la mesure de la déformation latérale des échantillons, permettrait d'appliquer l'approche de la séparation des processus de déformation décrite dans le chapitre 7 aux déformations à grande vitesse.

La méthode développée ici suscite un grand intérêt de la part des milieux industriels, car les applications dans ce domaine de vitesse sont nombreuses. En particulier, nous avons collaboré à des projets industriels portant sur les applications des polymères dans l'automobile. Plusieurs de ces projets étaient reliés à l'utilisation de l'air-bag dans les véhicules. Comme le délai entre l'impact sur la carrosserie de la voiture et le moment où l'air-bag doit être pleinement déployé est d'environ 8 ms, les propriétés des matériaux sollicités dans cet intervalle de temps sont particulièrement importantes.

La vitesse du vérin de notre installation est limitée à 10 ms^{-1} , pourtant les domaines d'applications jusqu'à $20\text{-}30 \text{ ms}^{-1}$ sont également nombreux. Mais il n'est pas certain que la méthode proposée ici soit applicable à ces vitesses, car notre expérience nous montre que les

problèmes à résoudre augmentent rapidement avec la vitesse. D'un point de vue pratique, l'augmentation d'une décade de vitesse (de 1 à 10 ms⁻¹) est difficile. Ainsi, on peut conclure en guise de boutade en postulant qu'il se pourrait bien que les difficultés s'accroissent avec le carré de la vitesse, comme c'est le cas pour les forces d'inertie...

8.1.2. Essais de rupture.

8.1.2.a) Méthode.

Nous avons montré que les lois de la mécanique rendent impossible l'application d'une vitesse de sollicitation élevée et constante dès le début et pendant toute la durée de l'essai de rupture. Il faut donc choisir entre des vitesses d'essai transitoires qui découlent du matériau à tester et de la longueur de la préfissure des échantillons, et une vitesse contrôlée par l'amortisseur additionnel.

Nous proposons cette dernière solution parce qu'elle permet une approche statique de la rupture aux vitesses élevées, et évite les considérations dynamiques transitoires liées à la taille et à la forme des géométries testées. La mesure en continu du déplacement réel imposé au matériau constitue une avancée importante, par rapport à l'approche classique où l'hypothèse d'un mouvement uniforme basé sur la vitesse de l'impacteur et le temps est émise.

La mesure de la réaction extérieure sur la goupille stationnaire des éprouvettes CT, et la détection de la force de rupture sont aisées. La comparaison entre la force et le déplacement imposé, par le biais d'une hypothèse statique est excellente. La procédure proposée est fiable jusqu'à ~8 ms⁻¹. Elle peut être étendue jusqu'à ~10ms⁻¹ tout en étant conscient que la déviation de la fissure aux grandes vitesses par rapport au plan médian de l'échantillon est due à l'apparition progressive de mode II de sollicitation. Cette complication résulte du déplacement d'une seule goupille, l'autre étant stationnaire. Nous ne voyons pas de possibilité expérimentale d'appliquer la déformation simultanément aux deux goupilles, en raison des problèmes de synchronisation des mouvements.

Ainsi, pour des vitesses plus élevées que 10 ms⁻¹, l'essai de flexion en trois points est préférable, car il ne pose pas ce problème. Toutefois il convient d'abord de circonvier les restrictions expérimentales évoquées au Chapitre 4: perte de contact avec l'impacteur, inertie importante de l'échantillon en raison de sa forme allongée, ...

8.1.2.b) Interprétation des résultats.

Nos résultats ont montré qu'une approche par la variation continue de la vitesse de sollicitation permet une étude fine des transitions ductile-fragile et met en évidence les changements induits aux mécanismes de déformation.

Par ailleurs, les études que nous avons conduit à température ambiante selon cette méthode montrent que le comportement en rupture de plusieurs de polymères tend vers une valeur limite, d'énergie de rupture de l'ordre de 0.5 kJm⁻². Il ne s'agit pas d'une règle, mais d'une tendance. Cela confirme bien la fragilisation des polymères par la diminution du temps alloués aux mécanismes de relaxation moléculaires pendant l'essai. Toutefois, l'énergie de rupture reste largement en dessus de la seule énergie de surface, γ_s . On tend de plus en plus à attribuer cette

divergence à la présence d'un important échauffement adiabatique en tête des fissures se propagent aux grandes vitesses. Il est toutefois difficile de prédire son effet sur les mécanismes moléculaires, car on ne connaît ni l'intensité de l'élévation de température locale, ni la taille de la zone qu'elle affecte.

Aux grandes vitesses de sollicitation, lorsque les ruptures sont instables, l'énergie élastique stockée dans l'éprouvette avant le départ de la fissure est en excès, et la mesure de G est surestimée par notre incapacité à quantifier l'énergie cinétique dans le bilan énergétique. Il convient de souligner qu'à notre avis, l'approche par la variation de la complaisance (par le biais du changement de la longueur de la préfissure) décrite au §4.1.2 corrige l'erreur éventuellement commise par l'excès d'énergie cinétique. Ainsi, cette approche qui date de plus de 20 ans garde toute son acuité. Elle est tout à fait applicable à notre géométrie.

8.1.2.c) Perspectives.

Là encore, nous considérons le développement comme achevée, et conforme aux objectifs fixés. Nous avons montré qu'il n'est pas souhaitable d'utiliser ce type d'approche au delà de $\sim 10 \text{ ms}^{-1}$, en raison de la mixité des modes de sollicitation engendrée. En dessous de cette limite, la méthode est parfaitement opérationnelle. Elle nous a déjà apporté de nombreuses collaborations dans le cadre de projets de recherche académiques ou industriels, qui continueront.

De même, l'utilisation de cette technique dans l'enceinte climatique, en voie d'achèvement renforcera encore l'intérêt industriel porté à cette méthode pour le développement de nouveaux matériaux.

8.2. APPLICATION A L'ETUDE DES POM ET DES PMMA CHOC.

Nos études portant sur l'influence de la vitesse de traction sur les propriétés des POM et des PMMA modifiés choc ont montré que le déclenchement de la plasticité, voire la nature des mécanismes de déformation sont sensibles à la vitesse de déformation. Dans le cadre des essais en traction, la vitesse maximale utilisée, de 10 ms^{-1} , ne nous a pas permis de mettre en évidence des transitions ductile-fragile à température ambiante pour ces matériaux. Toutefois, les résultats obtenus en traction sont une aide précieuse à la compréhension des propriétés et des mécanismes de rupture.

8.2.1. Le POM.

Comme nous l'avons vu par les cycles de charge-décharge en traction, les mécanismes de déformation des POM sont complexes, et impliquent à la fois de la cavitation à petite échelle, et du cisaillement interlamellaire. Leurs propriétés de rupture dépendent de ces mêmes micro-mécanismes de déformation confinés dans la zone d'endommagement en tête de fissure. Ces mécanismes, probablement localisés dans les zones amorphes, sont continuellement affectés par l'augmentation de la vitesse. Parce que la déformation ultime qu'ils sont susceptibles d'atteindre augmente avec la masse moléculaire, la ténacité des POM de poids moléculaire les plus élevés est la plus grande. De même, lorsque le degré d'ordre de la structure augmente par le biais d'une

température de cristallisation plus haute, la ténacité diminue. Ces deux constatations montrent que la rupture par la seule défaillance des chaînes situées dans le plan de la rupture n'est pas crédible. D'une manière ou d'une autre, un mécanisme d'interactions à grande distance moléculaire est impliqué dans le processus de rupture. Cette distance d'interaction diminue lorsque la vitesse de sollicitation augmente, et affecte ainsi la ténacité au choc des POM.

Une thèse en cours au laboratoire des polymères apportera certainement des éclaircissements importants sur la nature exacte de ces interactions.

8.2.2. Les PMMA modifiés choc.

L'étude en parallèle de systèmes de modification aussi différents que des particules à morphologies sphériques et d'un réseau interpénétré de PU dans le PMMA (IPN) est intéressante à plusieurs égards.

En traction, nous avons montré que les deux systèmes de modification provoquent une cavitation généralisée qui s'accompagne d'une opacification du matériau (blanchiment). L'existence d'une morphologie sphérique de la phase modificatrice n'est pas une condition nécessaire à la cavitation. Celle-ci semble plutôt liée aux interactions mécaniques entre les phases, donc à une taille déterminée de la distance séparant les domaines caoutchoutiques dans la matrice.

Nos études microscopiques ont montré qu'au contraire des matériaux modifiés par des particules sphériques dont la matrice est sujette au développement de craquelures diffuses entre les particules, la matrice de l'IPN ne forme pas de craquelures. Dans ce matériau, les cavités sont initiées et propagées dans la phase caoutchoutique seule. Du point de vue de la ténacité, les résultats obtenus sur l'IPN et sur les meilleurs PMMA renforcés par des nodules 3L sont relativement similaires. Cela signifie que la capacité de ces matériaux à accommoder les concentrations de contraintes par des déformations localisées en tête de fissure est très similaire. Du point de vue de l'énergie de rupture en revanche, la seule cavitation de la phase caoutchoutique de l'IPN est moins dissipatrice d'énergie que la création de craquelures dans le PMMA à l'état vitreux, comme dans les 3L. Il n'est dès lors pas étonnant que les valeurs de G mesurées sur l'IPN soient passablement inférieures à celles des 3L. L'IPN possède néanmoins une énergie de rupture remarquablement stable sur toute la gamme de vitesse. Ceci est cohérent, si l'on attribue principalement les capacités dissipatrices de l'IPN à la transition α de sa phase caoutchoutique, vers -40°C . De même, si l'on attribue celles du 3L pour une grande part aux craquelures, il n'est pas étonnant que l'énergie de rupture diminue avec la vitesse par le blocage progressif des mécanismes de type β de la matrice (la transition β du PMMA s'étend entre -20°C et $+50^{\circ}\text{C}$).

L'étude par MET sur les matériaux renforcés par les particules montre que la cavitation de l'écorce des particules à noyau dur et écorce molle (3L) précède légèrement, ou intervient en même temps que la croissance des craquelures dans la matrice, à partir de l'équateur des particules. L'importante capacité des PMMA modifiés par des particules à dissiper l'énergie, et par les 3L en particulier, est attribuée au phénomène de branchement des craquelures observé en MET. Leur initiation reflète la transition de l'état de déformation local, qui évolue de la déformation plane vers la contrainte plane, ce qui permet une sollicitation en cisaillement des îlots de matrice localisés entre les particules. Nos observations sont récentes, et cette théorie

nouvelle. Elles nécessitent donc une étude plus approfondie, que nous ne manquerons de réaliser dans le futur.

ANNEXES

A1. VITESSE DE MISE EN CHARGE DU FRONT DE FISSURE

Pour l'expression des résultats de la mécanique de la rupture, nous utilisons souvent la vitesse de mise en charge au front de fissure, \dot{K} (ou dK/dt), comme variable expérimentale, à la place de la vitesse d'essai. Nous pensons que cette variable est plus fiable que la vitesse, en particulier lorsque la longueur de la fissure, a , varie.

Partant d'une hypothèse élastique, la relation contrainte, σ , déformation, ε , pour un matériau isotrope homogène s'écrit:

$$\begin{bmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{xz} \\ \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{yy} & \varepsilon_{yz} \\ \varepsilon_{xz} & \varepsilon_{yz} & \varepsilon_{zz} \end{bmatrix} = \frac{1+\nu}{E} \begin{bmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} & \sigma_{xz} \\ \sigma_{xy} & \sigma_{yy} & \sigma_{yz} \\ \sigma_{xz} & \sigma_{yz} & \sigma_{zz} \end{bmatrix} - \frac{\nu}{E} \begin{bmatrix} \sigma_{xx} + \sigma_{yy} + \sigma_{zz} & 0 & 0 \\ 0 & \sigma_{xx} + \sigma_{yy} + \sigma_{zz} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{xx} + \sigma_{yy} + \sigma_{zz} \end{bmatrix} \quad (A1-1)$$

ou encore:

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1}{E} \left[(1+\nu)\sigma_{ij} - \nu\sigma_{kk}\delta_{ij} \right] \quad (A1-2)$$

Considérant une singularité en mode I en tête de fissure, on remplace le tenseur des contraintes σ_{ij} par le facteur d'intensité des contraintes, K_I , tel que:

$$\sigma_{ij} = K_I \frac{f_{ij}^I(\theta)}{\sqrt{2\pi r}} \quad (A1-3)$$

avec $f_{ij}^I(\theta)$, le facteur définit dans le tableau 2.1:

Ainsi:

$$\varepsilon_{ij} = K_I \frac{1}{E\sqrt{2\pi r}} \left[(1+\nu)f_{ij}^I(\theta) - \nu f_{kk}^I(\theta)\delta_{ij} \right] \quad (A1-4)$$

K_I peut être exprimé en fonction du déplacement sur la ligne de chargement, u , et de la complaisance adimensionnelle sur la ligne de chargement, Z_{LL} :

$$K_I = u \frac{f(a/W)E}{Z_{LL}(a/W)\sqrt{W}} \quad (A1-5)$$

Pour la géométrie CT les facteurs de calibration, f , et Z_{LL} valent:

$$f = \frac{2 + \frac{a}{W}}{\left(1 - \frac{a}{W}\right)^{3/2}} \left[0.886 + 4.64\left(\frac{a}{W}\right) - 13.32\left(\frac{a}{W}\right)^2 + 14.72\left(\frac{a}{W}\right)^3 - 5.60\left(\frac{a}{W}\right)^4 \right] \quad (A1-6)$$

et

$$Z_{LL} = \left(\frac{1 + \frac{a}{W}}{1 - \frac{a}{W}} \right)^2 \left[2.163 + 12.219 \left(\frac{a}{W} \right) - 20.65 \left(\frac{a}{W} \right)^2 - 0.9925 \left(\frac{a}{W} \right)^3 \right] + 20.609 \left(\frac{a}{W} \right)^4 + 9.9314 \left(\frac{a}{W} \right)^5 \quad (A1-7)$$

En remplaçant (A1-5) dans l'équation (A1-4):

$$\varepsilon_{ij} = u \frac{f\left(\frac{a}{W}\right)}{Z_{LL}\left(\frac{a}{W}\right) \sqrt{W2\pi r}} \left[(1 + \nu) f'_{ij}(\theta) - \nu f'_{kk}(\theta) \delta_{ij} \right] \quad (A1-8)$$

En dérivant les équations (A1-4) et (A1-8), pour obtenir la vitesse de déformation tensorielle, $\dot{\varepsilon}_{ij}$:

$$\dot{\varepsilon}_{ij} = K_I \frac{1}{E \sqrt{2\pi r}} \left[(1 + \nu) f'_{ij}(\theta) - \nu f'_{kk}(\theta) \delta_{ij} \right] \quad (A1-9)$$

$$\dot{\varepsilon}_{ij} = \dot{u} \frac{f\left(\frac{a}{W}\right)}{Z_{LL}\left(\frac{a}{W}\right) \sqrt{W2\pi r}} \left[(1 + \nu) f'_{ij}(\theta) - \nu f'_{kk}(\theta) \delta_{ij} \right] \quad (A1-10)$$

Dans le plan de fissure, $\theta=0$:

$$\dot{\varepsilon}_{xx} = \dot{\varepsilon}_{yy} = K_I \frac{1}{E \sqrt{2\pi r}} \quad (A1-11)$$

et

$$\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = \dot{u} \frac{f\left(\frac{a}{W}\right)}{Z_{LL}\left(\frac{a}{W}\right) \sqrt{W2\pi r}} \quad (A1-12)$$

Il est important de noter que la vitesse de déformation en tête de fissure en mode I (expression A1-11) ne dépend pas directement de la géométrie, lorsqu'elle est exprimée en fonction de \dot{K} . Lorsqu'elle est exprimée en fonction de la vitesse d'ouverture de la ligne de chargement, \dot{u} , (expression A1-12) la taille de la géométrie intervient par sa dimension caractéristique, W , et par sa longueur de fissure relative, a/W . Toutefois, dans l'expression (A1-11) l'influence de la taille de la géométrie peut être répercutée sur le module, E . En réalité, le module augmente lui-même avec la vitesse de déformation.

En revanche, dans la mesure expérimentale de \dot{K} , il est facile et prend en compte une éventuelle dépendance de E avec la vitesse de déformation. Partant du diagramme de chargement, force-temps, tel que représenté à la Figure A1-1 on peut définir un \dot{K} moyen dans l'intervalle t_0 à t_f , par:

$$\dot{K} = \frac{F}{t_f - t_0} \frac{f\left(\frac{a}{W}\right)}{B \sqrt{W}} \quad (A1-13)$$

ou un K dans la partie linéaire de la courbe de chargement, tel que:

$$K = F \frac{f(a/W)}{B \cdot W} \quad (A1-14)$$

C'est cette dernière approche que nous utilisons habituellement.

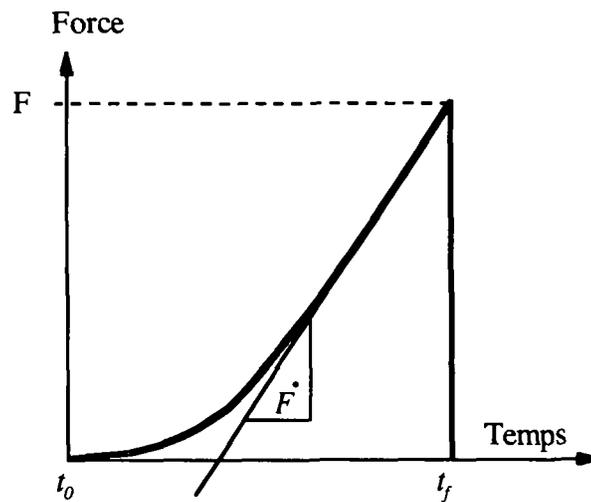


Figure A1-1: Représentation schématique du diagramme force-temps d'un essai CT amorti.

A2. MECANIQUE DE LA RUPTURE ET PLASTICITE DANS LES PMMA MODIFIES AU CHOC.

De tous les PMMA choc étudiés, c'est le 3L30 qui présente le développement d'une zone endommagée la plus importante aux petites vitesses de sollicitation.

La taille de la zone blanchie en tête de fissure est relativement importante à 10^{-4} ms^{-1} puisque son épaisseur totale est de l'ordre de 1.5 mm. Nous avons calculé le facteur d'intensité des contraintes corrigé pour la zone plastique selon l'approche d'Irwin et celle de la zone de cohésion, discutée au Chapitre 2, §2.2.8. Les calculs résultent de deux itérations successives en estimant $a_{\text{eff}}=a+r_y$, par les équations (2-23) et (2-25). Les résultats sont présentés à la Figure A2-1. Ils montrent que les corrections apportées à K par les deux modèles sont équivalentes. En valeur relative, les corrections de K sont importantes puisqu'elles peuvent atteindre 25% du K calculé selon l'hypothèse élastique. Néanmoins, il convient d'apporter les remarques suivantes:

- L'estimation de r_y nécessite la connaissance de la contrainte au seuil de plasticité, σ_y . Pour cela nous avons utilisé les valeurs du § 7.4.3. En réalité la vitesse de déformation dans la zone d'endommagement nous est inconnue. Elle devrait être considérablement plus élevée que celle que nous avons utilisée. En ce sens là, la taille de la zone endommagée pourrait avoir été passablement surestimée.
- Nous avons utilisé une approche en déformation plane, ce qui correspond à la réponse du matériau en absence de zone plastique. Si la zone endommagée consiste en craquelures, cette hypothèse n'est pas correcte. L'utilisation d'une hypothèse de contrainte plane conduirait à réduire r_y d'un facteur 3.
- La correction apportée à K est pratiquement constante sur toute la plage de vitesse. L'évaluation de l'influence de la vitesse sur K ne nécessite donc pas de correction.

Selon les deux premières remarques, il faut considérer le facteur de correction calculé aux basses vitesses pour le 3L30 comme la valeur maximale d'erreur possible, sur l'ensemble des matériaux étudiés au Chapitre 7. Une estimation identique pour l'IPN a conduit à des corrections maximales de 6% sur K .

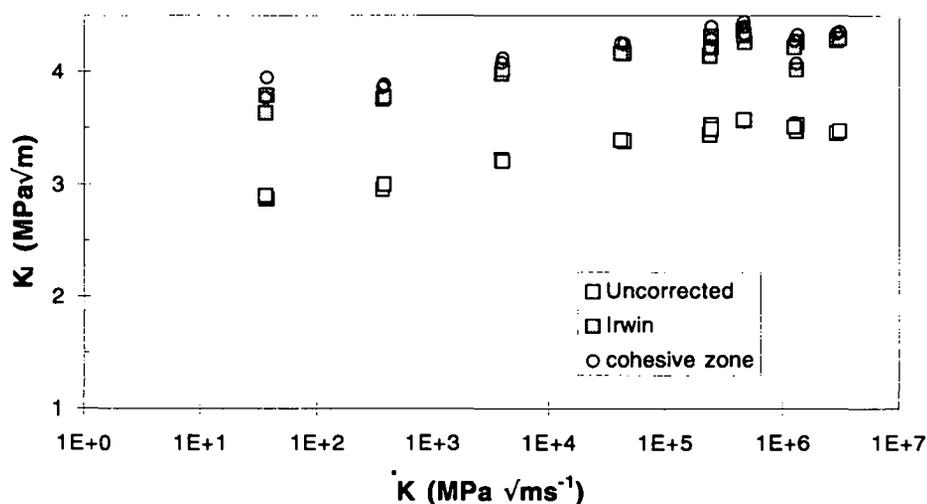


Figure A2-1: Facteur d'intensité des contraintes, K , corrigés pour la zone plastique, en fonction de la vitesse de mise en charge au front de fissure, \dot{K} , pour le PMMA 3L30.

Puisque nous considérons le blanchiment comme un marqueur de la déformation plastique (ou de l'endommagement), il est intéressant de comparer l'épaisseur totale du blanchiment avec l'estimation de r_y obtenue par l'approche d'Irwin. Nous avons ainsi mesuré l'épaisseur de blanchiment, t , par microscopie optique. Bien que subjective, une telle mesure donne une bonne idée de l'évolution de la taille de la zone endommagée avec la vitesse. Ces mesures sont comparées avec les calculs de r_y à la Figure A2-2. La corrélation est bonne pour les petites vitesses, mais elle ne l'est pas pour les grandes.

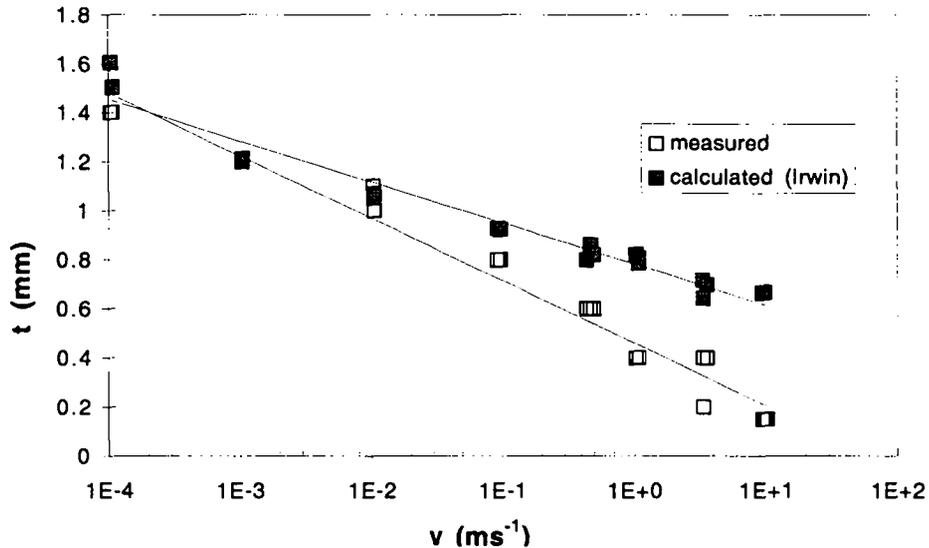


Figure A2-2: Epaisseur totale de la zone plastique, t , en fonction de la vitesse d'essai, v , pour le PMMA 3L30. Comparaison entre les valeurs d'épaisseur de la zone blanchie, mesurées par microscopie optique et celles calculées par l'approche d'Irwin.

Ces méthodes de correction rendent compte de l'influence de la vitesse seulement par le biais de l'évolution de σ_y . Or, la nature même des mécanismes de déformation peut dépendre de la vitesse par le blocage des mécanismes de relaxation à temps courts. Il n'est dès lors pas étonnant que les approches proposées au Chapitre 2 ne conduisent pas à une estimation satisfaisante de l'évolution de la taille de la zone plastique avec la vitesse, puisqu'elles ne prennent pas en compte la nature de ces mécanismes.

Comme l'étude de l'évolution des micromécanismes de déformation avec la vitesse est précisément le but de notre recherche, nous avons préféré ne pas appliquer systématiquement de telles corrections au Chapitre 7 qui auraient pu conduire à des conclusions erronées.

CURRICULUM VITAE

Philippe Béguelin

né le 23 décembre 1953 à Tramelan

Marié, 2 enfant

4, Ch. des Fougères, 1007 Lausanne.

FORMATION

1973-1976 || Ecole d'ingénieurs de St-Imier, section mécanique.
1990 || Inscription au registre A des Ingénieurs et Architectes

EXPERIENCE PROFESSIONNELLE

1976-1978 || Applied Research Laboratories (ARL)
1978-1979 || Control Data Corporation
1979- || EPFL, laboratoire de polymères, DMX,
-Ingénieur ETS (1979-1986)
-Collaborateur technique (1986-1990)
-Collaborateur scientifique (1991-)
1989- || Membre de la chambre d'experts de l'Union Technique Suisse (UTS)
-rupture et déformation des polymères

PUBLICATIONS RECENTES

Mechanical characterization of polymers and composites with a servohydraulic high-speed tensile tester .
Ph. Béguelin, M. Barbezat, H.H. Kausch., J. Physique III, October 1991

Tensile Impact Testing. Ph. Béguelin, in *Impact Fracture of Polymers*, Fukuoka Japan, July 1991,
edited by K. Takahashi and A.F. Yee (Kyushu University Press, 1992) p. 291-302.

The loading rate dependence of the fracture toughness of Rubber Modified Poly(methyl methacrylate). Ph.
Béguelin, O. Julien, L. Monnerie, H.H. Kausch, 4th Internat. Symp. on "Toughened Plastics: Science
and Engineering", American Chemical Society, San Diego, CA, USA, March 13-18. 1994 .

The effect of the loading rate on the fracture toughness of PMMA, POM, PEEK and mPVC, Ph.
Béguelin, H.H. Kausch, *Journal of Materials Science* 29 (1994) 91-98.

A Technique for Studying the Fracture of Polymers from Low to High Loading Rates. Ph. Béguelin,
H.H. Kausch, in 'Impact and Dynamic Fracture of Polymers and Composite', Williams J.G. and Pavan
A. ed., 1995, Mechanical Engineering Publications, London, p. 3-19.

The Temperature and Strain-Rate Dependence of Mechanical Properties in Polyoxymethylene. C.J.G.
Plummer, Ph. Béguelin, H.H. Kausch, in 'Impact and Dynamic Fracture of Polymers and Composite',
Williams J.G. and Pavan A. ed., 1995, Mechanical Engineering Publications, London, p. 3-19.

Loading rate dependence of mode I fracture toughness of rubber toughened PMMA, Tohdoh M.,
Takahashi K., Béguelin Ph., Kausch. H.H, submitted to *Journal of the Society of Materials Science*,
Japan (1995).

The loading rate dependence of the fracture toughness of Rubber Modified Poly(methyl methacrylate). O.
Julien, Ph. Béguelin, L. Monnerie, H.H. Kausch, in '*Toughened Plastics II*', Riew C.K. and Kinloch
A.J. ed., 1996, *Advanced in Chemistry Series*, ACS, Washington DC

*On the influence of particle morphology on microdeformation in rubber modified poly(methyl
methacrylate)*, Plummer C.J.G., Béguelin Ph., Kausch H.H, *Polymer* 37, (1996), 1, p. 7-10

On the influence of the inertial effects on the fracture mode of rapidly loaded compact tension specimens,
Béguelin Ph., Fond C., Kausch H.H., to be submitted to *Int. Journal of Fracture*