1. INTRODUCTION	9
2. MODELE GEOMETRIQUE ET MATERIAUX	0
3. ANALYSE ELASTIQUE	1
3.1. Dépression hydrostatique pure6	1
3.2. Cisaillement pur	2
3.3. Traction uniaxiale	3
3.4. Sommet de fissure sollicitée en mode I6	3
4. CAS DE L'ECORCE D'ELASTOMERE SPHERIQUE AUTOUR D'UN	
CŒUR RIGIDE	5
4.1. Concentrations de contrainte et non-linéarité géométrique en élasticité6	5
4.2. Concentrations de contrainte en plasticité	7
5. INFLUENCE DE LA FORME SUR LA PLASTICITE DANS LA MATRICE.6	7
5.1. Inclusions de formes ellipsoïdales6	7
5.2. Inclusions sphériques à cœur rigide6	9
6. DISCUSSION	1
7. CONCLUSION	3
8. RÉFÉRENCES	3

DOMAINES D'ELASTOMERE DANS UNE MATRICE POLYMERE : CAVITATION ET PLASTICITE EN RELATION AVEC LA MORPHOLOGIE

C. Fond et R. Schirrer

<u>Résumé :</u> La contrainte hydrostatique dans des inclusions d'élastomère ellipsoïdales des matrices en polymère rigide est évaluée pour diverses formes, orientations et sollicitations. Il apparaît que les formes aplaties perpendiculaires à la direction de la plus grande contrainte principale sont soumises aux plus fortes contraintes hydrostatiques. Le cas des particules sphériques à cœur rigide et écorce souple est aussi analysé en élasto-plasticité. On montre qu'en pratique, les concentrations de dépressions hydrostatiques en traction uniaxiale sont telles que la cavitation a lieu avant que des non-linéarités géométriques apparaissent. L'étude de la progression de l'écoulement plastique pour différentes formes d'ellipsoïdes en traction uniaxiale indique que la forme sphérique est un bon compromis pour optimiser la dissipation plastique. Pour diverses lois de comportement envisagées et diverses formes d'ellipsoïdes, on montre qu'en première approximation on peut considérer que le rapport entre la contrainte hydrostatique dans l'inclusion et la trace de la sollicitation appliquée varie peu. On montre aussi qu'en traction uniaxiale une cavité sphérique est quasiment équivalente à une inclusion d'élastomère ou une particule cœur/écorce du point de vue de la progression de l'écoulement plastique dans la matrice.

1. INTRODUCTION

Le mécanisme de cavitation dans les polymères influence leur comportement mécanique. La cavitation permet notamment le développement d'écoulements plastiques par croissance de cavité. Considérant la résistance à la rupture, la cavitation permet donc d'augmenter la dissipation en sommet de fissure. De plus, la variation de volume induite par la présence de cavités modifie la répartition des contraintes en sommet de fissure et peut ainsi améliorer la ténacité par effet d'écran. La cavitation apparaît principalement dans les zones amorphes au-dessus de leur température de transition vitreuse. Elle est contrôlée par la part hydrostatique de la contrainte [1][2][3]. Des études ont montré qu'il est plus pertinent de relier cette contrainte hydrostatique à la contrainte macroscopique appliquée au matériau qu'à la déformation macroscopique [4]. Il a été établi que, pour les petits domaines d'élastomère, un critère basé sur un état de contrainte critique [3]. Cependant, les énergies mises en jeu sont elles-mêmes directement reliées aux contraintes. L'état de contrainte pilote donc la cavitation dans tous les cas et, pour les petits domaines, l'aspect dimensionnel intervient aussi dans le critère.

La sollicitation mécanique dans un domaine à l'état caoutchoutique est considérablement influencée par la forme et l'orientation de ce domaine. On observe en effet, dans des polymères semi-cristallins, que la cavitation apparaît préférentiellement dans des domaines allongés perpendiculairement à la direction de traction [5][6]. Dans des matériaux tels que les polymères renforcés au choc, et encore plus dans les polymères semi-cristallins, l'état de contrainte local est lié à la morphologie locale. On peut toutefois considérer qu'une inclusion d'une forme donnée est soumise à une sollicitation moyenne. Cette sollicitation moyenne peut-

être évaluée en considérant des modèles de type auto-cohérent. L'inclusion est isolée dans un milieu infini dont la réponse mécanique est la réponse moyennée du matériau multiphasé.

Certaines formes, comme une fine écorce sphérique autour d'un noyau rigide par exemple, peuvent générer des non-linéarités géométriques [7]. Dans ces cas, les tenseurs de localisation dépendent aussi de l'amplitude de la sollicitation appliquée, même en petites déformations globales. Ce cas particulier est examiné en détail dans le présent article.

2. MODELE GEOMETRIQUE ET MATERIAUX

On rencontre des polymères, incluant une phase amorphe au-dessus de sa température de transition vitreuse, pour lesquels la morphologie est plus complexe que de simples particules sphériques dans une matrice (Fig. 1) [8]. Pour les semi-cristallins, la phase amorphe est en général confinée entre des plaquettes cristallines dans les sphérolites ou entre les sphérolites et son épaisseur est en général de l'ordre de 10 nm. Dans ce cas, l'estimation des propriétés mécaniques de la phase amorphe "liée" est rendue difficile car on connaît mal l'influence du confinement physico-chimique. Pour les amorphes renforcés ou certains thermodurs, on utilise le plus souvent des particules. Celles ci peuvent être à cœur souple ou rigide, multicouches ou de type "salami". Enfin, il existe des polymères constitués de réseaux interpénétrés pour lesquels plusieurs phases peuvent être continues au sens de la morphologie. Devant l'impossibilité de traiter des morphologies complexes, on examine ici l'influence de la forme d'une phase en élastomère sur la localisation des contraintes hydrostatiques. Afin de disposer de solutions analytiques, au moins en élasticité linéaire de référence, on propose de considérer ellipsoïdale la particule d'élastomère.



Figure 1. Morphologies couramment rencontrées pour les domaines contenant de l'élastomère ou une phase amorphe au-dessus de sa température de transition vitreuse dans des matrices polymères.

En première approximation, considérons une inclusion d'élastomère ellipsoïdale isolée dans une matrice élastique infinie soumise à un chargement uniforme à l'infini [9][10]. On peut alors estimer analytiquement la dépression hydrostatique P_h dans l'élastomère. La Fig. 2 montre les différentes géométries obtenues selon les rapports des longueurs des axes principaux a_1 , a_2 et a_3 . Afin de se placer dans des configurations couramment rencontrées, on envisagera les champs de contraintes, appliqués à l'infini, de dépression équi-triaxiale, de cisaillement pur, de traction uniaxiale et ceux rencontrés en sommet de fissure en mode I dans les cas limites de déformations planes et de contraintes planes. Les modules d'Young et coefficients de Poisson retenus pour la matrice sont respectivement $E_m = 2$ GPa et $v_m = 0.37$

 $(K_m = 2.56 \text{ GPa et } \mu_m = 0.73 \text{ GPa})$, et pour l'élastomère $E_r = 1 \text{ MPa et } v_r = 0.4999167$ $(K_r = 2 \text{ GPa et } \mu_r = 0.33 \text{ MPa})$. La matrice est un peu moins compressible que l'élastomère. Il y a un fort contraste de module de cisaillement entre l'inclusion et la matrice.



Fig. 2. Configurations géométriques obtenues en fonctions des valeurs relatives des longueurs des axes principaux de l'ellipsoïde.

3. ANALYSE ELASTIQUE

3.1. DEPRESSION HYDROSTATIQUE PURE

Les isovaleurs du facteur de forme de la dépression hydrostatique dans un domaine d'élastomère ellipsoïdal, dans le cas d'une dépression hydrostatique pure appliquée à l'infini ($\sigma_{11} = \sigma$, $\sigma_{22} = \sigma$, $\sigma_{33} = \sigma$, $\sigma_{23} = 0$, $\sigma_{13} = 0$, $\sigma_{12} = 0$) montrent que celui-ci dépend peu de la forme du domaine (Fig. 3). La forme sphérique est celle qui entraîne la moindre dépression. La forme en "lentille" est la plus défavorable. D'une façon générale, on obtient une géométrie défavorable, vis à vis du risque de cavitation lorsqu'une dimension est petite devant les autres.



Fig. 3. Facteur de forme de la dépression hydrostatique dans un domaine d'élastomère ellipsoïdal, dans le cas d'une dépression hydrostatique pure appliquée à l'infini.

3.2. CISAILLEMENT PUR

On considère un cisaillement pur selon x_1x_2 à l'infini ($\sigma_{11} = 0$, $\sigma_{22} = 0$, $\sigma_{33} = 0$, $\sigma_{23} = 0$, $\sigma_{13} = 0$, $\sigma_{12} = \sigma$). On rappelle que ce cisaillement peut être vu comme la résultante d'une traction uniaxiale et d'une compression uniaxiale d'amplitudes σ , dans un repère tourné de 45° dans le plan x_1x_2 . Lorsque les axes de l'ellipsoïde sont confondus avec ceux du repère, la dépression engendrée dans l'élastomère est nulle. Néanmoins, certaines orientations (Fig. 4) rendent le domaine d'élastomère sensible au cisaillement, d'autant plus que celui-ci est aplati dans une direction (Fig. 5). Il apparaît ici la tendance, pour des domaines aplatis dans une direction, d'équilibrer la contrainte normale au plan ainsi défini. Notons que le signe de P_h change avec le signe du cisaillement mais aussi de l'angle θ . La pression dans une inclusion sphérique est insensible aux contraintes de cisaillement.



Fig. 4. Convention adoptée pour orienter un ellipsoïde en cordonnées sphériques : une rotation de φ autour de x_2 suivie d'une rotation de θ autour du nouvel axe x_3 .



Fig. 5 . Facteur de forme de la dépression hydrostatique dans un domaine d'élastomère ellipsoïdal, dans le cas d'un cisaillement pur appliqué à l'infini.

3.3. TRACTION UNIAXIALE

On considère une traction uniaxiale d'axe x_3 à l'infini ($\sigma_{11} = 0$, $\sigma_{22} = 0$, $\sigma_{33} = \sigma$, $\sigma_{23} = 0$, $\sigma_{13} = 0$, $\sigma_{12} = 0$). On confirme donc la tendance, pour des domaines aplatis dans une direction, à équilibrer la contrainte normale au plan ainsi défini (Fig. 6). La configuration la plus défavorable est donc celle d'une "lentille" perpendiculaire à l'axe de traction, qui tend à équilibrer la contrainte appliquée. La Fig. 7 montre en effet que, lorsque deux dimensions sont petites devant la troisième, la sensibilité à l'orientation du domaine est moindre que dans le cas où une dimension serait petite devant les deux autres.



Fig. 6 . Facteur de forme de la dépression hydrostatique dans un domaine d'élastomère ellipsoïdal, dans le cas d'une traction uniaxiale appliquée à l'infini.



Fig. 7 . Facteur d'orientation de la dépression hydrostatique dans un domaine d'élastomère ellipsoïdal en forme de "lentille" ou de "cigare", dans le cas d'une traction uniaxiale d'axe σ_{33} appliquée à l'infini

3.4. Sommet de fissure sollicitee en mode I

Considérons un domaine d'élastomère situé en sommet d'une fissure sollicitée en mode I, suffisamment petit pour que l'on puisse considérer le champ uniforme et appliqué à l'infini. Le cas des déformations planes $(\sigma_{11} = K_I / (2\pi r)^{1/2}, \sigma_{22} = K_I / (2\pi r)^{1/2}, \sigma_{33} = 2\nu K_I / (2\pi r)^{1/2}, \sigma_{23} = 0, \sigma_{13} = 0, \sigma_{12} = 0, où K_I$ est le facteur d'intensité des contraintes et r la distance au sommet de fissure) est analogue à celui de la dépression hydrostatique pure : peu de sensibilité à la forme et à l'orientation (Fig. 8 et 9 de gauche). En revanche, dans le cas de la bi-traction, en contraintes planes ($\sigma_{11} = K_I / (2\pi r)^{1/2}, \sigma_{22} = K_I / (2\pi r)^{1/2}, \sigma_{33} = 0, \sigma_{13} = 0, \sigma_{12} = 0$), la dépression P_h peut être considérablement réduite selon la forme ou l'orientation (Fig. 8 et 9 de gauche). Pour les sphères, le cas de la déformation plane est bien sûr plus propice à la cavitation que celui de la contrainte plane, comme constaté dans [11].



Fig. 8. Facteur de forme de la dépression hydrostatique dans un domaine d'élastomère ellipsoïdal situé en sommet d'une fissure sollicitée en mode I.

Fig. 9. Facteur d'orientation de la dépression hydrostatique dans un domaine d'élastomère ellipsoïdal en forme de "lentille" ou de "cigare", situé en sommet d'une fissure sollicitée en mode I.

4. CAS DE L'ECORCE D'ELASTOMERE SPHERIQUE AUTOUR D'UN CŒUR RIGIDE

4.1. CONCENTRATIONS DE CONTRAINTE ET NON-LINEARITE GEOMETRIQUE EN ELASTICITE

Pour beaucoup, les nodules de renfort au choc des polymères sont des particules sphériques, de rayon a, qui contiennent une sphère rigide et dont l'écorce, d'épaisseur e, est souple. En élasticité linéaire et avec l'hypothèse des petites perturbations, on peut toujours décomposer la sollicitation comme une superposition de tractions uniaxiales dans le repère principal. Considérant donc une traction uniaxiale et une inclusion isolée cette géométrie induit une forte concentration des contraintes dans l'élastomère aux pôles de la particule, les pôles étant alignés dans la direction de traction. La Fig. 10 montre l'évolution des dépressions engendrées aux pôles et à l'équateur, ainsi que la dépression moyenne dans l'écorce, en fonction de la fraction volumique, v_r, d'élastomère. Notons que v_r = $1 - (1 - e / a)^3$. Ces résultats sont issus de modèles par éléments finis (E. F.), pour les mêmes modules élastiques que dans les sections précédentes. Les cellules considérées sont représentées en Fig. 11. Elles sont axisymétriques et constituent un volume élémentaire représentatif (V. E. R.) pour un milieu dilué - 2.5% en volume d'inclusions. Les valeurs aux pôles et à l'équateur sont les moyennes des dépressions sur les éléments de l'écorce qui jouxtent les axes de symétrie. Quoique la quasi-incompressibilité de l'élastomère subisse un traitement numérique différent dans les deux logiciels CASTEM2000© - "méthode de projection des déformations" [12] [13] et ABAQUS© - "éléments hybrides" - les résultats obtenus sont quasiment identiques. Les valeurs obtenues aux pôles concordent avec celles fournies en [14] pour une analyse élastique linéaire. En effet, les effets de non-linéarité géométrique constatés pour les calculs par E. F. ne sont pas significatifs pour $v_r \ge 10$ % et en deçà de 1.5 % de déformation.

Fig. 10. Evolution des dépressions, normées par la trace du tenseur des contraintes moyennes, dans l'écorce d'élastomère, en fonction de la fraction volumique d'élastomère dans l'inclusion.

Le cas d'une écorce sphérique, d'épaisseur e petite devant le rayon a de la sphère, typiquement e / a < 0.1, peut présenter des non-linéarités géométriques. En effet, un modèle approché [7, Annexe 2] permet de mettre en évidence l'écrasement de l'écorce à l'équateur, en traction uniaxiale. Ce modèle élastique est principalement basé sur des considérations géométriques et suppose seulement $K_r \approx K_m$ et $\mu_r \ll K_r$. Du fait de sa simplicité, ce modèle ne fournit que la dépression moyenne dans l'écorce. Cependant l'écart entre la dépression moyenne calculée par E. F., fournie en Fig. 10, et celle estimée par ce modèle est inférieur à 1.2 %, dans tous les cas. La Fig. 12 illustre ce phénomène de non-linéarité géométrique en reportant les taux d'élongation aux pôles et à l'équateur en fonction de la déformation imposée. On s'aperçoit qu'il existe un seuil au-delà duquel la déformation à l'équateur est considérablement amplifiée, d'autant plus que la fraction volumique d'élastomère dans l'inclusion, v_r, est petite. Cependant, si l'on considère une dépression critique, P_h, de typiquement 30 MPa pour la cavitation, on constate que, pour v_r au-delà de 5%, les élongations limites à l'équateur ne sont pas encore atteintes. La Fig. 12 montre que, par exemple, pour $v_r = 10$ % les taux d'étirement sont inférieurs à deux. Il semble donc qu'en pratique la migration de matière de l'équateur vers le pôle de l'inclusion n'est pas bloquée par l'écrasement de l'élastomère à l'équateur avant la cavitation.

Fig. 12. (bas) Taux d'élongation aux pôles et à l'équateur d'une particule cœur-écorce en fonction de la déformation imposée à l'infini, pour fractions différentes volumiques d'élastomère dans l'inclusion. (haut) Fraction volumique d'élastomère dans l'inclusion en fonction de la déformation pour obtenir une dépression de 30 MPa dans l'écorce,

à l'équateur.

4.2. CONCENTRATIONS DE CONTRAINTE EN PLASTICITE

Considérons une matrice à comportement élastique plastique parfait, la contrainte d'écoulement valant 50 MPa. Le cœur rigide de l'inclusion a le même comportement que la matrice. Il faut remarquer que les calculs par E. F. divergent rapidement avec les caractéristiques des matériaux jusqu'ici adoptées. La raison est, qu'au pôle, la part sphérique de l'énergie de déformation est tellement grande devant la part déviatorique que le retournement des éléments devient insensible au calcul par E. F., pour peu que le volume soit "numériquement" conservé. Un autre jeu de paramètres est ici adopté pour permettre de palier à cette insensibilité : $E_m = 2$ GPa et $v_m = 0.37$, $E_r = 10$ MPa et $K_r = 2$ GPa. L'élastomère est légèrement plus rigide que dans les sections précédentes et est supposé avoir un comportement néo-hookéen (loi de Mooney), défini classiquement par $C_1 = E_r / 6$.

Les travaux de S. Géhant [4] ont montré que, dans le cas d'une particule sphérique, l'apparition de la plasticité correspond à une saturation du niveau de dépression dans l'élastomère. Ceci vaut pour diverses lois d'écoulement plastique. Dans le cas élastique plastique parfait, la Fig. 13 montre qu'il en est de même pour la dépression aux pôles d'une particule cœur-écorce. Si l'élastomère n'a pas subit de cavitation pendant la montée en charge quasi-élastique, il est peu probable que le développement des écoulements plastiques conduira à la cavitation, du moins en absence d'interactions mécaniques désordonnées entre inclusions. Pour ce jeu de paramètre, la dépression limite pouvant être atteinte vaut environ trois fois la contrainte d'écoulement de la matrice. L'écoulement plastique, visualisé en Fig. 14, démarre à l'équateur puis se concentre dans un cône qui relie l'équateur au coin de la cellule.

Fig. 13. Dépression aux pôles d'une particule cœur-écorce en fonction de la déformation moyenne imposée sur la cellule, pour différentes fractions volumiques d'élastomère dans l'inclusion.

Fig. 14. Isovaleurs de la déformation plastique équivalente pour une déformation moyenne de 3.5 %.

5. INFLUENCE DE LA FORME SUR LA PLASTICITE DANS LA MATRICE

5.1. INCLUSIONS DE FORMES ELLIPSOÏDALES

Nous avons vu que le cas le plus critique est celui de l'élastomère confiné dans un plan perpendiculaire à la plus grande contrainte principale. Afin de valider les résultats précédents, il convient maintenant de considérer la concentration de contraintes dans la matrice. En effet, l'apparition d'écoulement plastique ou de craquelage "tôt" dans le chargement pourrait modifier les dépressions engendrées et ainsi nos conclusions. Des calculs par E. F. ont permis de compléter l'analyse élastique. Le comportement considéré pour la matrice est élastiqueplastique-parfait, avec un seuil d'écoulement plastique à 5% de déformation. Les modèles géométriques sont axisymétriques, à enveloppe cylindrique, et reflètent des fractions volumiques de 0.5% et 2.5% d'élastomère. Quoique le cercle engendrant le cylindre constitue ici une approximation de l'hexagone, on peut considérer une cellule ainsi définie comme un volume élémentaire représentatif, en veillant toutefois à ne pas perdre de vue que le matériau ainsi idéalisé serait de type périodique. Le chargement, une traction uniaxiale, est tel que la cellule se déforme en parallélogramme. Des calculs ont été menés avec le logiciel CASTEM2000© avec l'hypothèse des petites perturbations (h. p. p.), pour des raisons de convergences et avec ABAQUS© avec prise en compte des non-linéarités géométriques. Les résultats se sont avérés peu dépendants du modèle de calcul.

La Fig. 15 obtenue pour des géométries ellipsoïdales axisymétriques avec des rapports grand axe/ petit axe 10 et 0.1, et pour une sphère, montrent que l'estimation élastique est peu perturbée par l'écoulement plastique de la matrice, à condition de considérer le rapport de la dépression hydrostatique dans l'élastomère sur la contrainte macroscopique. Les résultats sont légèrement sensibles au modèle par E. F. dans le cas de la forme en "lentille".

Figure 15. Evolution, en traction uniaxiale, du rapport de la dépression hydrostatique dans l'élastomère sur la contrainte appliquée, pour une forme de sphère, de "cigare" et de "lentille".

La Fig. 16 présente les courbes contrainte-déformation obtenues avec le logiciel CASTEM2000© pour un volume élémentaire représentatif sur une cellule contenant 2.5% d'élastomère pour différentes géométries. La forme de l'élastomère influence le niveau du seuil d'écoulement macroscopique. Les formes allongées dans le sens de la traction $(a_1 / a_3 < 1)$ ont peu d'effet sur ce seuil alors que les formes en "lentilles" perpendiculaires à la direction de traction diminuent le niveau du seuil d'écoulement. La Fig. 17 présente les volumes ayant subit une déformation plastique en fonction de la déformation. Comme attendu, la plasticité démarre aux plus petites déformations pour les formes en "lentilles" du fait des concentrations des contraintes plus élevées. Toutes les courbes se rejoignent lorsque la plasticité devient envahissante.

Figure 16. Courbes contrainte-déformation, en traction uniaxiale, du V. E. R. contenant 2.5% d'élastomère pour différentes géométries.

Figure 17. Volumes plastifiés en fonction de la déformation pour différentes géométries.

La Fig. 18 fournit l'évolution des concentrations de contraintes dans la matrice, au sens de von Mises (σ_e) et de la pression hydrostatique (σ_h), aux pôles et aux équateurs d'ellipsoïdes axisymétriques, en fonction de la déformation. La pression hydrostatique dans la matrice évolue relativement peu au cours de la déformation alors que la contrainte de von Mises tend évidemment à s'uniformiser lorsque la plasticité envahit le V. E. R.

Figure 18. Concentrations de contraintes dans la matrice, au sens de von Mises (σ_e) et de la pression hydrostatique (σ_h), aux pôles et aux équateurs d'ellipsoïdes axisymétriques, en fonction de la déformation.

5.2. INCLUSIONS SPHERIQUES A CŒUR RIGIDE

Revenant au cas particulier de l'inclusion à cœur rigide et écorce souple, on se propose d'analyser l'influence de l'épaisseur de l'écorce sur la dissipation plastique, puis de la cavitation. Pour cela, cinq cas sont envisagés, la fraction volumique de matrice étant toujours 97.5 %. Les trois premiers cas correspondent à des fractions volumiques d'élastomère dans la particule, v_r , de 10 %, 20 % et 30 %, en l'absence de cavitation. Le quatrième cas, illustré en Fig. 19, correspond à $v_r = 20$ % avec une cavitation aux pôles qui décalotte le cœur dans un cône d'ouverture 60°. Enfin le cinquième cas, illustré en Fig. 20, à titre de comparaison, correspond à une cavité sphérique, qui peut modéliser une particule d'élastomère après cavitation [3]. Les caractéristiques des matériaux sont données en section 4. 2. La cavitation est supposée avoir lieu avant l'apparition de la plasticité.

Fig. 19. Isovaleurs de la déformation Fig. 20. Isovaleurs de la déformation plastique plastique équivalente pour une déformation équivalente pour une déformation moyenne de moyenne de 3.5 %, dans le cas d'une 3.5 %, dans le cas d'une cavité sphérique. cavitation aux pôles.

On remarque sur les Fig. 14, 19 et 20 que l'écoulement plastique est prépondérant à l'équateur, que l'élastomère soit sain, endommagé ou absent. C'est généralement le cas en croissance de cavité pour divers polymères amorphes [15]. La Fig. 21 montre que, pour une fraction volumique en particules de 2.5 %, la réponse globale du V. E. R. est peu affectée par la cavitation. L'effet de la cavitation est du second ordre sur l'énergie plastique dissipée. La déformation plastique équivalente moyenne est elle aussi peu sensible à la cavitation. On remarque aussi que le cœur de la particule ne plastifie qu'en absence de cavitation.

Fig. 21. (a) Réponse globale, courbe contrainte déformation, du V. E. R. en traction uniaxiale. (b) Densité d'énergie dissipée en plasticité dans le V. E. R.. (c) Volumes plastifiés -"total" pour l'ensemble du V. E. R. et "incl." pour le cœur rigide d'inclusion - rapportés au volume de l'inclusion.

6. DISCUSSION

Pour autant que l'on puisse généraliser, des formes ellipsoïdales aux formes qui s'en approchent, il apparaît que les domaines d'élastomère les plus sollicités, du point de vue de la dépression hydrostatique, sont ceux dont une dimension est petite devant les deux autres, la direction de cette dimension étant confondue avec la plus grande contrainte principale. En d'autres termes, pour des objets dont une dimension est petite devant les autres, l'élastomère tend à équilibrer la contrainte normale au plan dans lequel l'objet a ses grandes dimensions. Dans le cas de sollicitations de cisaillement, la forme et l'orientation des inclusions influencent fortement le niveau de contrainte hydrostatique, P_h, dans l'inclusion, sauf pour les inclusions quasi-sphériques. Par contre, pour une sollicitation purement hydrostatique, la forme induit une variation du second ordre sur P_h. Il s'ensuit que la forme et l'orientation des inclusions jouent un plus grand rôle pour la cavitation en sommet de fissure pour un échantillon mince - état de contraintes planes dominant - que dans le cas d'un échantillon épais - état de déformations planes dominant, proche de la sollicitation hydrostatique.

Pour que de grandes déformations locales soient provoquées par de petites déformations globales, il faut des morphologies de type films minces gauches. De plus, ces morphologies peuvent induire des non-linéarités géométriques. Mais les fortes concentrations de contraintes induites par ces géométries particulières sont de nature à provoquer une cavitation prématurée de l'élastomère. Cependant, les taux d'étirement limite, généralement ceux de la bi-traction, influencent toujours le comportement du matériau. En effet, dans le cas de cavitation, les taux d'étirement limite de l'élastomère sont rencontrés aux bords de la cavité créée, le long de déchirures formant une nouvelle surface.

Fig. 22. Evolution de la dépression dans une particule sphérique d'élastomère, en traction uniaxiale, pour 4 lois d'écoulement standard basées sur un critère de von Mises.

Plasticité et cavitation sont des phénomènes en compétition, en relation avec la température et la vitesse de déformation [3] [4] [7]. L'apparition de l'écoulement plastique correspond dans tous les cas examinés ici à une saturation de la dépression dans les domaines d'élastomère. Cela indique que la contrainte dans l'élastomère est essentiellement basée sur la notion d'équilibre, puisque celle-ci suit l'évolution de la contrainte macroscopique. La Fig. 22 confirme cette tendance, quelle que soit la loi de comportement considérée pour la plasticité. L'évolution de la dépression dans une particule sphérique d'élastomère, représentant 2.5 % du V. E. R., en traction uniaxiale ne varie pas de façon significative avec la progression de l'écoulement plastique. Les quatre lois d'écoulement choisies sont des lois standards basées sur un critère de von Mises. L'influence la plus marquée est due à la prise en compte de la part

sphérique du tenseur des contraintes dans le critère d'écoulement - loi Drucker-Prager avec un rapport 1.32 entre la contrainte d'écoulement en compression et traction. Néanmoins, l'écart maximum entre la dépression estimée par l'élasticité et celle calculée en plasticité n'excède jamais 55 %. En ce qui concerne la traction uniaxiale, essai le plus pratiqué en laboratoire, l'effet de la plasticité est donc un facteur secondaire comparé à l'effet de la morphologie sur la dépression dans les domaines d'élastomère. L'arrangement spatial des inclusions est un autre effet de morphologie. Les calculs d'interaction entre inclusions [4] indiquent qu'effectivement la dépression dans les particules d'élastomère peut varier du simple au double, considérant les 1 % d'entre elles les moins sollicitées et les 1 % les plus sollicitées.

La ténacité d'un polymère renforcé au choc par des particules d'élastomère est liée à la capacité de dissipation plastique. Il s'agit donc de concerner le maximum de volume du matériau par l'écoulement plastique. L'amplitude de la déformation plastique locale peut être importante tant qu'elle n'engendre pas de mécanisme d'endommagement (craquelure). Il semble que la forme sphérique soit un bon compromis entre l'apparition précoce d'écoulement plastique, un volume plastifié important et une évolution régulière du volume dissipatif. En effet, le volume plastifié est optimal pour la sphère et l'énergie dissipée importante. La courbe de traction obtenue pour la sphère rejoint rapidement la courbe pour les formes en cigare. L'énergie dissipée est maximale lorsque les inclusions sont "invisibles" dans la direction de traction (formes en cigare aligné avec la direction de traction) et on retrouve le comportement de la matrice seule. Mais on peut s'attendre à ce qu'une matrice fragile demeure fragile dans le cas où les inclusions seraient effectivement "invisibles". La forme sphérique génère donc des gradients de champs mécaniques suffisamment forts pour pouvoir limiter l'endommagement à grande distance dans la matrice et des concentrations de contrainte suffisamment fortes pour pouvoir amorcer l'écoulement plastique avant que la densité locale d'énergie stockée permette la formation d'une craquelure.

Fig. 23. Evolutions des contraintes, de l'énergie dissipée en écoulement plastique et de la dépression dans l'élastomère en fonction de la déformation $(\varepsilon_{11} = \varepsilon_{22}, \varepsilon_{33} = 0),$ pour une sollicitation en déformation plane du type de celle rencontrée en sommet de fissure. Caractéristiques mécaniques des matériaux : matrice $E_m = 2$ GPa et $v_m = 0.37$, $\varepsilon_v = 0.025$, élastomère $E_r = 1 MPa \ et \ K_r = 2 \ GPa.$

L'utilisation de particules à cœur rigide permet non seulement de limiter la perte de module d'élasticité, mais aussi de mobiliser une dissipation plastique dans la particule ellemême (avant cavitation). La perturbation des champs mécaniques dans la matrice est analogue à celle des particules entièrement en élastomère. Mais les particules à cœur rigide présentent l'avantage de permettre le contrôle du seuil de cavitation par l'épaisseur de l'écorce d'élastomère. On dispose donc, en plus de l'ajustement des propriétés physico-chimiques, de l'optimisation par un paramètre géométrique. Ceci permet d'ajuster plus facilement le seuil de cavitation aux propriétés de la matrice pour l'optimisation à la rupture.

S. Géhant [4] a montré que, dans le cas d'une particule souple sphérique, le développement de la plasticité est quasiment insensible à l'histoire de la cavitation. Les résultats obtenus en section 5. 2., où la cavitation est supposée avoir lieu dans la phase élastique du chargement pourraient donc être étendus aux cas où la cavitation a lieu dans la phase plastique du chargement. En ce qui concerne les essais uniaxiaux, il semble que la cavitation est plutôt un phénomène non souhaitable, si l'on considère la perte de transparence. En effet, il n'est pas certain qu'elle augmente de façon significative la capacité de déformation plastique. En revanche, les variations de volume induites en sommet par la cavitation sont de nature à réduire la singularité du champ des contraintes en redistribuant les contraintes et ainsi à augmenter la ténacité du matériau. D'autre part, la cavitation dans l'élastomère permet d'amorcer une croissance de cavité en plasticité dans la matrice. Les sollicitations rencontrées en sommet de fissure sont de nature à générer des dépressions importantes dans l'élastomère. Ceci est illustré par la Fig. 23, qui met en évidence la différence de comportement dissipatif entre un V. E. R. contentant 2.5% d'élastomère sain et endommagé, l'endommagement étant supposé avoir lieu pendant la phase élastique. Les interactions, pour des V. E. R. pseudopériodiques influencent peu le comportement plastique. Cet aspect devrait faire l'objet d'une étude plus détaillée car on observe expérimentalement des bandes de dilatation [16] qui pourraient être propagées par l'écoulement plastique.

7. CONCLUSION

Les matériaux industriels sont optimisés du point de vue de leurs propriétés mécaniques mais ne font pas tous l'objet d'une compréhension totale des micro-mécanismes de déformation et de leur couplage. En ce qui concerne la cavitation et la plasticité dans les polymères dont une phase est un élastomère, l'utilisation des outils de la mécanique des milieux continus propose une aide à la compréhension du renfort au choc et vient en complément des outils et des modèles de la physico-chimie. Néanmoins, sur bien des points, la discussion reste ouverte. Il s'agit, entre autres, des interactions entre inclusions [4] [17] en élasticité, élasto-plasticité et visco-élasto-plasticité et des morphologies co-continues rencontrées dans les réseaux de polymères interpénétrés.

8. RÉFÉRENCES

- [1] Dompas, D. et Groeninckx, G., Toughening behaviour of rubber-modified thermoplastic polymers involving very small rubber particles: 1. A criterion for internal rubber cavitation, Pol. 35, (1994), P. 4743-4749.
- [2] Bucknall, C. B., Karpodinis, A. et Zhang X. C., A Model for Cavitation in Rubber-Toughened Plastics, J. Mat. Sci., **29**, (1994), P. 3377-3383.
- [3] Fond, C., Lobbrecht, A. et Schirrer, R., *Polymers toughened with rubber microspheres; an analytical solution for stresses and strains in the rubber particles at equilibrium and rupture*, Int. J. Fract., (1996), **77**, P. 141-159.
- [4] S. Géhant, Endommagement Mécanique par Cavitation dans des Polymères Amorphes à Deux Phases : Mesures par Diffusion Multiple de la Lumière et Analyse Micro-Mécanique, Ph. D. Thesis, (2000), Université Louis Pasteur, Strasbourg.
- [5] S. Castagnet, Comportement Mécanique du PVDF : Compétition entre Cavitation et Ecoulement Visqueux, Ph. D. Thesis, (1998), Université de Poitiers - ENSMA.

- [6] Butler, M. F., Donald, A. M. et Ryan, A. J., *Time Resolved Simoultaneous Small- and Wide-Angle X-Ray Scattering during Polyethylene deformation -II. Cold Drawing of Linear Polyethylene*, Polymer, **39**, 1, (1998), P. 39-52Ph.
- [7] Schirrer, R., Fond, C., et Lobbrecht, A., Volume Change and Light Scattering During Mechanical Damage in PMMA (Polymethylmethacrylate) Toughened with Core Shell Rubber Particles, J. Mat. Sc., (1996), 31, P. 6409 - 6422.
- [8] Heim, P., Wrotecki, C., Avenel, M. et Gaillard, P., High Impact Cast Sheets of Poly(MethylMethacrylate) with Low Level of Polyurethane, Pol., 34, 8, (1993), p. 1653-1660.
- [9] Eshelby, J. D., *The Determination of the Elastic field of an Ellipsoidal Inclusion, and Related Problems*, Proc. Roy. Soc. Lond. A, **241**, (1957), P. 376-396.
- [10] Eshelby, J. D., *The Elastic Field Outside an Ellipsoidal Inclusion*, Proc. Roy. Soc. Lond. A, 252, (1959), P. 561-569.
- [11] Sue, H.-J. et Yee, A. F., Micromechanical Modeling of Crack-Tip Rubber Particle Cavitational Process in Polymer Toughening, Pol. Eng. Sci., 36, 18, (1996), p. 2320-2326.
- [12] Nagtegall, J. C. et Parks, D. M., *On Numerically accurate Finite Element Solutions in the Fully Plastic Range*, Computer Meth. Appl. Mech. Eng., **4**, (1974), P.153-178.
- [13] Hugues, T. J. et Malkus, D. S., A General Penalty / Mixed Equivalence Theorem for Anisotropic Incompressible Finite elements, Ed. S. N. Atluri & O. C. Zienckiewicz, Hybrid and Mixed Finite element Method, John Wiley & sons, (1983), P.487-495.
- [14] Riccò, T., Pavan, A. et Danusso, F., Crazing within Glassy Occlusion in Rubber Particles of Toughened Glassy Polymers: a Micromechanical Investigation, Pol. 20, (1979), P. 367-370.
- [15] Steenbrink, A. C., van der Giessen E. et Wu, P. D., Void Growth in Glassy Polymers, J. Mech. Phys. Sol., 45, 3, (1997), p. 405-437.
- [16] Cheng, C., Hiltner, A., Baer, E., Soskey, P. R. et Mylonakis, S. G., *Cooperative Cavitation in Rubber-Toughened Polycarbonate*, J. Mater. Sci., **30**, (1995), P.587-595.
- [17] Fond C., Mendels D., Ferrers J.-B., Kausch H. H et Hilborn J. G., Influence of Voids on the Stress Distribution and Deformation Behaviour of Epoxies under Uniaxial Deformation, J. Mat. Sc., 33 (1998), 3975-3984