HAL
open science

Étude du comportement mécanique et de l'endommagement de composites thermoplastiques renforcés de fibres courtes de chanvre: approche expérimentale et modélisation

Florian Gehring

▶ **To cite this version:**

Florian Gehring. Étude du comportement mécanique et de l'endommagement de composites thermoplastiques renforcés de fibres courtes de chanvre: approche expérimentale et modélisation. Autre. Université de Lorraine, 2013. Français. NNT : 2013LORR0107 . tel-01750094

HAL Id: tel-01750094

https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01750094v1

Submitted on 29 Mar 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

UNIVERSITÉ DE LORRAINE

AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr

LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4
Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10
http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php
http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm

Thèse de doctorat

Pour l'obtention du titre de

Docteur de l'Université de Lorraine

spécialité : Mécanique et Energétique

présentée par

Florian Gehring

Etude du comportement mécanique et de l'endommagement de composites thermoplastiques renforcés de fibres courtes de chanvre : Approche expérimentale et modélisation

---

soutenue publiquement le 22 mars 2013 à l'ENIM devant le jury composé de :

J.C. Grandidier	Professeur à l'ENSMA	Rapporteur
D. Kondo	Professeur à Paris VI	Rapporteur
N. Billon	Professeur à Mines ParisTech	Examinateur
S. Hoppe	Chargée de recherche LRGP-CNRS-ENSIC	Examinateur
H.F. Perrin	Docteur, Pôle de Plasturgie de l'Est	Examinateur
V. Bouchart	Maître de Conférences à l'ENIM	Co-Directeur de thèse
F. Dinzart	Maître de Conferénces à l'ENIM	Co-Directeur de thèse
P. Chevrier	Professeur à l'ENIM	Directeur de thèse
S. Mercier	Professeur à l'université de Lorraine	Invité

LaBPS 1 route d'Ars Laquenexy CS65820 57078 Metz Cedex 3
Université de Lorraine - Pôle M4 : Matière, Matériaux, Métallurgie, Mécanique

A la mémoire de ma mémé et de mon pépé

A ma famille

« On ne résout pas un problème avec les modes de pensée qui l'ont engendré. »

Albert Einstein

Résumé

Afin de limiter l'utilisation des ressources fossiles, les composites à fibres naturelles semblent être une alternative prometteuse aux composites à fibres synthétiques. Ainsi cette thèse se propose d'étudier un composite thermoplastique renforcé par des fibres courtes d'origine végétale (polypropylène/chanvre). En effet, la température de mise en forme du PP permet l'incorporation de renforts naturels. De plus la culture du chanvre est relativement aisée en Lorraine. Ces composites ont été élaborés via compoundage - moulage par injection.

Ce travail s'appuie sur une démarche de caractérisation du comportement thermomécanique de ces composites dans le domaine quasi-statique en prêtant particulièrement attention à l'influence de la vitesse de déformation, de la fraction volumique de chanvre et de la température. L'endommagement a été mis en évidence par des essais de type charge-décharge-maintien et par un suivi *in-situ* par thermographie infrarouge. Cette étude a montré une rupture « quasi-fragile » par fissuration de la matrice quelque soit le taux de renfort.

Une étude statistique complète de la microstructure en terme de distribution d'orientation et de répartition spatiale des fibres a été conduite par tomographie aux rayons X et un algorithme de génération automatique d'un modèle éléments-finis intégrant les distributions d'orientation et de répartition ainsi que les facteurs géométriques des fibres $(L, \varnothing)$ a été développé. Cet algorithme permet de rendre compte, dans la modélisation, de l'interaction complexe entre les fibres supposées élastiques isotropes.

Enfin, la modélisation par éléments-finis du comportement du composite PPC est entreprise. Le comportement élastique avec endommagement progressif de la matrice est obtenu suivant un formalisme micromécanique dans lequel celle-ci est considérée comme un solide élastique isotrope affaibli par des microfissures de forme *penny-shapped*. Ce comportement est implémenté sur abaqus via une routine Fortran.

Cette démarche offre de bonnes capacités de prédiction et ouvre des perspectives d'optimisation de ce matériau.

Abstract

Natural fibres are expected to have the ability to replace synthetics fibres as reinforcement for thermoplastics. A short plant fibres reinforced thermoplastics (polypropylene/hemp) is therefore studied in this PhD thesis. The processing temperature of PP allows the use of natural fibres. Moreover the hemp growing is easy in Lorraine. The testing specimens were made by compounding and injection moulding.

Experimental characterization of the quasi-static thermomechanical behaviour of hemp composite was carried out with particular emphasis on the effect on strain rate, fibre loading and temperature. The damage is pointed out by load-unload-holding tests and *in-situ* infrared thermography recorder and revealed a «quasi-brittle» failure by matrix cracking regardless the hemp fibre loading.

A complete statistical study in terms of spatial and orientation distribution of fibre was conducted by X-ray tomography and enables the development of an algorithm which generate a finite element model including the spatial reinforcement distribution and orientation distribution as well as geometrical features of fibres ($L, \varnothing$). Through this algorithm, the complicated interactions between isotropic elastic fibres are taken into account in the finite element modelling.

Finally, finite element modelling of composite behaviour is intended. The elastic - progressive damage behaviour of the matrix is obtained in accordance to the micromechanism frame, in which PP is considered as a solid isotropic body weakened by *penny-shaped* cracks. This behaviour was implemented through a Fortran routine in abaqus software.

This approach shows good prediction capabilities and gives opportunities to optimize this composite material.

Remerciements

Voilà maintenant trois année « hors taxe » que j'ai commencé ma thèse. Ces années ont été pour moi enrichissantes et pleines de rebondissement. Une expérience s'achève et il est temps, maintenant, pour moi de remercier toutes les personnes qui m'ont permis d'avancer non seulement durant ces trois ans mais depuis bien plus longtemps. Il aurait beaucoup à dire et de nombreuses personnes à remercier, j'essaierai d'être bref et efficace.

Je souhaite remercier, tous les membres du jury, pour le temps qu'ils m'ont accordé pour juger ce travail. Je souhaite remercier les professeurs Jean-Claude Grandidier et Djimeno Kondo pour leur travail de rapporteur et la professeur Noelle Billon, M. Henri Perrin et Mme Sandrine Hoppe pour avoir examiné ces travaux.

Avant de remercier mes encadrants, je souhaite saluer tous les permanents du LaBPS. Voilà maintenant plus de 8 ans que j'ai intégré l'ENIM en tant qu'élève-ingénieur, j'en sors aujourd'hui en tant que docteur. J'ai eu la chance de côtoyer la plupart d'entre eux d'abord comme professeurs puis comme collègues, Merci à eux pour leur accueil et leur sympathie. Je souhaite également remercier Pr Paul Lipinski pour nos discussions éclairées concernant la méthode des éléments-finis. Je salue également le personnel technique de l'ENIM.

Privilège du rang, je tiens à exprimer ma reconnaissance envers les deux directeurs successifs du laboratoire, Pr Pierre Chevrier et Pr Zitouni Azari, pour leur accueil et leur bonne humeur.

Pierre fut également mon directeur de thèse, et je souhaite lui exprimer ma profonde gratitude. Je le remercie pour la confiance et l'autonomie qu'il m'a accordées, il y a maintenant un peu plus de trois ans, pour mener a bien ses travaux de thèse. Je tenais à le remercier pour le temps qu'il a réussi à m'accorder et pour nos discutions, toujours constructives, autour de la science ou non. Je tiens à le féliciter pour sa nomination à la tête de l'ENIM.

Comment remercier en quelques mots, mes deux co-directrices de thèse, VANESSA et FLORENCE. Elles ont su m'accompagner et me guider, au quotidien tout au long de ces trois ans, vers le titre de docteur. Je témoigne de leur excellent esprit d'analyses, de leur qualité humaine, de leur perspicacité et de leur clairvoyance lors de nos discussions. Elles ont su chacune à leur manière me transmettre le goût de la recherche et ont permis l'accomplissement de ses travaux. MERCI à vous deux.

Merci également à tous les doctorants du LaBPS, pour nos innombrables discussions enrichissantes autour des problèmes scientifiques de chacun, mais aussi pour l'ambiance extra-professionnelle que chacun aura su mettre.

J'aimerai exprimer, plus particulièrement, ma reconnaissance envers mon collègue et ami, Jérôme, avec lequel nous avons partagé plus que de « simples heures de boulot ». Nous avons entrepris notre aventure en même temps et il a su la boucler avant moi. Ses compétences et ses qualités humaines lui permettrons d'effectuer une brillante carrière chez Safran ou ailleurs. Je lui témoigne un profond respect et j'ai l'honneur d'être son témoin à son mariage.

Je tiens à remercier également, une véritable amie digne de confiance sur laquelle j'ai pu compter, elle a su m'écouter et m'encourager durant ses années particulières, merci pour tout.

Il est temps pour moi à présent de me tourner vers ma famille, sans laquelle je ne serais pas là aujourd'hui. Je tiens particulièrement à remercier, mes parents et ma sœurette pour leur amour et leur soutien. Ils m'ont toujours soutenu, et encouragé tout au long de ses longues années. Ils m'ont transmis la volonté et le courage d'avancer dans la vie. Vous êtes, tous les trois, ma plus grande fierté.

Je souhaite dédier cette thèse à mon grand-père, qui compte beaucoup à mes yeux, et qui n'aura pas eu la chance d'en voir l'aboutissement.

Conventions et Notations utiles

Conventions

b	scalaire
$\overline{b}$	vecteur
$\overline{\overline{b}}$	tenseur d'ordre 2
$\widetilde{b}$	tenseur d'ordre 4

Notations utiles

L	longueur de fibre
$\varnothing$	diamètre de fibre
$R = L/\varnothing$	rapport d'aspect d'une fibre
θ	angle dans le plan d'injection
φ	angle par rapport à la normal au plan d'injection
f_x	coefficient d'Hermans
ϕ_x	angle par rapport à un axe de référence $\overline{x}$
$\psi(\phi, \theta, t)$ ou $\psi\left(\overline{P}, t\right)$	probabilité de trouver une fibre d'orientation $\overline{P}(\theta, \phi)$ à l'instant t
$\overline{\overline{a_2}}$	tenseur d'orientation d'ordre 2
I	intensité du rayonnement
I_0	intensité initiale du rayonnement
$h(r)$	fonction de répartition spatial des fibres
N_{ar}	nombre de fibres par unité de volume contenue dans une sphère de rayon r
N_a	nombre total de fibres par unité de volume
σ^a	écart-type
τ	contrainte maximale en cisaillement de l'interface
L_c	longueur critique de fibre [15]
$E^{'}$ ou E_c	module de conservation
$E^{''}$	module de dissipation
$E^* = E^{'} + \imath E^{''}$	module complexe

δ	angle de déphasage $\tan\delta = \frac{E''}{E'}$
E	module de Young $[Pa]$
ν	coefficient de Poisson
α	coefficient de dilatation thermique $[K^{-1}]$
ρ	masse volumique $[kg \cdot m^{-3}]$
C_p	capacité calorifique $[J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1}]$
E_{total}	énergie mécanique totale $[J \cdot m^{-3}]$
$E_{dissipée}$	énergie dissipée $[J \cdot m^{-3}]$
$E_{restituée}$	énergie restituée $[J \cdot m^{-3}]$
d	dimension caractéristique d'une hétérogénéité
l	dimension caractéristique d'un volume élémentaire représentatif
D	dimension caractéristique d'une structure
$\overline{\overline{\sigma}}(r)$, $\overline{\overline{\varepsilon}}(r)$	tenseurs des contraintes et déformations locaux de la phase r
$\overline{\overline{\Sigma}}$, $\overline{\overline{E}}$	tenseurs des contraintes et des déformations effectifs
$\widetilde{A}(r)$, $\widetilde{B}(r)$	tenseur de localisation de la déformation et de la contrainte
$\widetilde{C}$	tenseur des rigidités élastique
V	volume $[m^3]$
ϵ	rapport d'aspect des fissure de forme « *penny-shaped* » $\epsilon = \frac{c}{a}$
$\widetilde{S}^r_\varepsilon$	tenseur d'ESHELBY de la phase r
$\widetilde{P}^r_\varepsilon$	tenseur de Hill $\widetilde{S}^r_\varepsilon = \widetilde{P}^r_\varepsilon : \widetilde{C}^m$
φ^r	fraction volumique de phase r
$\mathcal{N}_i$	nombre de fissure par unité de volume
$\widetilde{\mathrm{I}}$	tenseur idempotent d'ordre 4 $\mathrm{I}_{ijkl} = \frac{1}{2}(\delta_{ik}\delta_{jl} + \delta_{il}\delta_{jk})$
$\widetilde{T}^i$	$\widetilde{T}^i = \lim_{\epsilon\to 0} \epsilon \left[\widetilde{\mathrm{I}} + \widetilde{S}^r_\varepsilon\right]^{-1}$
d^i	paramètre densité de fissure
Ψ	énergie libre $\Psi = \dfrac{1}{2}\overline{\overline{E}} : \widetilde{C}^{eff}(d^n) : \overline{\overline{E}}$
F^{d^n}	Force thermodynamique associée à l'endommagement $F^{d_n} = \dfrac{\partial\Psi}{\partial d^n}$
$\mathcal{R}(d^n)$	résistance à la propagation de fissure $\mathcal{R}(d^n) = a_0 + a_1 \cdot d^n$
$f\left(F^{d^n}, d^n\right)$	critère d'endommagement $f\left(F^{d^n}, d^n\right) = F^{d^n} - \mathcal{R}(d^n)$
$\widetilde{C_t^{eff}}$	opérateur tangent (UMAT)
f_v, f_m	fraction volumique et massique
d_{min}	distance minimale admissible entre deux axes de fibres
Δ	distance minimale à garantir pour maintenir la qualité de maillage

Table des matières

Introduction générale **21**

1 Etat de l'art : Composites à fibres naturelles **25**

1.1 Les composites 25

1.2 Les polymères 26

1.2.1 Définitions 26

1.2.2 Le comportement des polymères 27

1.2.3 Le polypropylène (PP) 31

1.3 Les fibres naturelles 32

1.3.1 Classification et structure 32

1.3.2 Propriétés des fibres naturelles 33

1.3.3 L'utilisation des fibres végétales comme renforts des polymères 36

1.4 Présentation générale du comportement des composites à renforts naturels . . . 37

1.5 La mise en forme de composite à matrice thermoplastique 39

1.5.1 Le compoundage 40

1.5.2 Le moulage par injection 40

1.5.3 La compatibilisation fibres/matrice et son effet sur le comportement . . . 42

1.6 Description des composites de l'étude 44

1.7 Problématique 46

2 Caractérisation de la microstructure **49**

2.1 Introduction 49

2.2 Influence de l'écoulement sur l'orientation des fibres 50

2.3 Description mathématiques de l'orientation 51

2.3.1 Coefficient d'orientation d'Hermans 52

2.3.2 Fonction de distribution de l'orientation 53

2.3.3 Tenseurs d'orientation d'ordre 2 ou 4 53

2.4 La tomographie aux rayons X appliquée à la caractérisation de la microstructure 55

2.4.1 Principe de la tomographie aux rayons X 55

2.4.2 Caractérisation de la microstructure 57
2.5 Orientation des fibres dans les composites PP/Chanvre étudié 59
2.5.1 Tenseurs d'orientation 59
2.5.2 Fonctions de répartition d'orientation 60
2.6 Distribution spatiale dans nos composites 63
2.6.1 Théorie 63
2.6.2 Résultats 65
2.7 Conclusion du chapitre 65

3 Comportement thermomécanique 67
3.1 Introduction 67
3.2 Synthèse du comportement des composites à fibres naturelles 68
3.3 Essais préliminaires : la mesure du taux d'humidité 72
3.4 Comportement viscoélastique en petite déformation 74
3.4.1 Principe des essais sur un analyseur mécanique dynamique 75
3.4.2 Résultats des DMA 75
3.5 Essai monotone de Traction Uniaxiale 79
3.6 Visualisation de l'endommagement 83
3.6.1 Mécanismes d'endommagement des polymères semi-cristallins 83
3.6.2 Suivi *in-situ* 84
3.6.3 Observations *post-mortem* 89
3.7 Trajet de chargement complexe 92
3.7.1 L'énergie dissipée 92
3.7.2 Description de l'endommagement 94
3.7.3 Analyse des déformations rémanentes 96
3.8 Conclusion du chapitre 98

4 Modélisation du comportement 101
4.1 Introduction 101
4.2 Modélisation du comportement de la matrice 102
4.2.1 Principes de base des méthodes de transition d'échelle 102
4.2.2 Application aux matériaux multi-fissurés 103
4.2.3 Intégration de la loi de comportement élastique avec endommagement progressif 107
4.2.4 Identification de la loi de comportement de la matrice 109
4.3 Modélisation des renforts fibreux 113
4.3.1 Reconstruction de la microstructure 113
4.3.2 Comportement des fibres 119

4.4 Modélisation du comportement des composites PP / Chanvre 120
4.4.1 Modélisation numérique d'un essai de traction 120
4.4.2 Prédiction numérique du comportement 123
4.4.3 Influence de la longueur des fibres 131
4.5 Conclusion du chapitre 134

Conclusion générale et Perspectives **137**

Bibliographie **141**

Annexes **151**

Table des figures

1.2.1 Etat semi-cristallin des polymères 27
1.2.2 Schématisation de l'évolution d'un module viscoélastique en fonction de la température [19] 28
1.2.3 (a) Essai de fluage et (b) modèle de Kelvin-Voigt 29
1.2.4 (a) Essai de relaxation et (b) modèle de Maxwell 29
1.2.5 Schématisation de l'allure des courbes contrainte-déformation d'un polymère [52] 30
1.2.6 Formule chimique du polypropylène PP 31
1.2.7 Structure de la phase α du PP [42] 31
1.3.1 Structure d'une biofibre 33
1.3.2 Exemples de techniques de mesures des propriétés des fibres 34
1.3.3 Effet de la maturité sur les propriétés des fibres de chanvre, d'après Pickering [96] 34
1.3.4 Augmentation des modules des fibres naturelles avec les cycles 35
1.3.5 Comparaison selon un diagramme Ashby, selon Sobczak *et al.* [112] 36
1.4.1 Comparaison entre le comportement mécanique de composites chargé talc et de RHP, d'après Premalal *et al.*[104] 38
1.4.2 Comportement d'un composite PP/miscanthus, d'après Bourmaud et Pimbert [26] 39
1.5.1 Schématisation d'une extrudeuse double vis [81] 40
1.5.2 Principe du moulage par injection (source Arkéma) 41
1.5.3 Schématisation des liaisons entre les fibres de chanvre et le PP-g-MA[102] . . . 42
1.5.4 Diffractogramme des R-X [14] 43
1.5.5 Influence des traitements sur les propriétés de composite PP/40%w, d'après Beckermann et Pickering[14] 44
1.6.1 Composites élaborés pour notre étude 45

2.2.1 Ecoulement suivant l'effet fontaine, d'après Redjeb[107] 50
2.2.2 Orientation des fibres suivant le type d'écoulement,d'après Redjeb[107] . . . 50

2.2.3 Orientation des renforts dans un disque injecté par le centre. (Woebcken, 1971) 51
2.3.1 Orientation des fibres 51
2.3.2 Schématisation du facteur d'Hermans 52
2.3.3 Exemple de tenseur d'orientation $\overline{\overline{a_2}}$ dans un cas tridimensionnel 54
2.4.1 Principe de la tomographie à rayons X, d'après CARMONA[29] 56
2.4.2 Photographie du tomographe aux rayons X 57
2.4.3 Représentation du volume reconstruit pour un PPC5 58
2.4.4 Résultats de la détection d'objets et de l'enregistrement des fibres en nuage de voxels 59
2.5.1 Histogrammes de répartition d'orientation de l'angle θ 61
2.5.2 Histogrammes de répartition d'orientation de angle ϕ 62
2.5.3 Fonction de répartition d'orientation 3D pour le PPC5 63
2.6.1 Volume étudié 64

3.2.1 Comparaison PP/Chanvre et PP/Fibre de verre, d'après MUTJÉ *et al.* [88] . . 68
3.2.2 Influence du recyclage sur des composites PP /fibres de chanvre et PP / fibres de verre [25] 69
3.2.3 Observations MEB, d'après LI *et al.* [79] 70
3.2.4 Illustration du concept de longueur critique l_c dans les composites à fibres, d'après BECKERMANN et PICKERING[15] 70
3.3.1 Résultats des tests de traction, d'après DHAKAL *et al.* [37] 72
3.3.2 Variation de la contrainte à rupture (symboles pleins) et du module de Young (symboles vides) de composite PP/lin avant et après vieillisement dans de l'eau distillée, d'après ARBELAIZ *et al.*[7] 73
3.3.3 Photographie de l'appareil utilisé pour la mesure de l'humidité 73
3.3.4 Teneur en eau de nos échantillons PP/Chanvre 74
3.4.1 Composition d'un analyseur DMA Netzsch 75
3.4.2 Modules de conservation de composites à renforts naturels 76
3.4.3 Evolution des propriétés viscoélastiques de composites PP/Chanvre obtenues par DMA 77
3.4.4 Influence du Chanvre sur les propriétés viscoélastiques des composites PP/Chanvre 78
3.5.1 Photographies du montage utilisé pour les essais de traction 79
3.5.2 Influence de la vitesse de déformation sur le comportement des formulations de composites PP/Chanvre 80
3.5.3 Photographies des éprouvettes *post-mortem* 81
3.5.4 Influence du Chanvre sur le comportement en traction de PP/Chanvre pour différentes vitesses de déformation 81
3.5.5 Evolution du module tangent en fonction de la fraction massique de chanvre . 82

3.5.6 Photographies *post-mortem* de la partie calibrée d'éprouvettes de traction PP/chanvre 83
3.6.1 Naissance d'une craquelure, adaptée de PONÇOT [100] 83
3.6.2 Schéma d'une craquelure[74] 84
3.6.3 Bande de cisaillement à 45°, d'après FRIEDRICH [47] 84
3.6.4 Schématisation des techniques de thermographie IR, adapté de STEINBERGER *et al.*[113] 85
3.6.5 Evolution de la température d'un composite lors d'essai de fatigue, d'après TOUBAL *et al.*[119] 86
3.6.6 Configuration machine lors d'essai de traction uniaxiale avec enregistrement de la variation de température 87
3.6.7 Evolution de la température lors d'un essai de traction de PPC20 87
3.6.8 Images en fausse couleur de l'évolution de la température de PPC20 sollicité en traction uniaxiale 88
3.6.9 Essai de traction monotone couplé IR sur du PP vierge à $\dot{\varepsilon} = 10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$ 89
3.6.10 Modes d'endommagement des fibres naturelles, d'après DE ROSA *et al.* [34] . . 90
3.6.11 Images MEB des faciès de rupture des composites PP/Chanvre 91
3.6.12 Images en tomograhie aux rayons X de fissuration transverse de la matrice d'échantillons *post-mortem* de PPC10 91
3.7.1 Réponse du PPC5 au trajet de charge-décharge 92
3.7.2 Schématisation d la définition de l'énergie dissipée utilisée 93
3.7.3 Comparaison du comportement en charge-décharge des composites PP/chanvre 94
3.7.4 Influence de la vitesse de déformation sur les modules à la décharge du PPC0 . 95
3.7.5 Evolution des modules tangents lors des cycles de charges-décharge 96
3.7.6 Evolution de la déformation le long du trajet de chargement pour le PPC5 . . 97
3.7.7 Evolution de la déformation pendant un palier de contrainte de 1 MPa après un cycle de charge-décharge 98

4.2.1 (a) Schématisation du VER et (b) forme des inclusions de type *penny-shaped* . 103
4.2.2 Représentation d'une matrice solide affaiblie par une seule famille de fissure . . 106
4.2.3 Modèle mono-élément de PP pour validation de la routine 110
4.2.4 Comparaison prédiction modèle / essai expérimental pour vitesse de déformation $\dot{\varepsilon} = 10^{-4}s^{-1}$ 111
4.2.5 Comparaison prédiction modèle / essai expérimental pour vitesse de déformation $\dot{\varepsilon} = 10^{-4}s^{-1}$ 111
4.2.6 Simulation EF d'un cycle de charge-décharge 112
4.2.7 Variable d'endommagement obtenue numériquement 113

4.3.1 Démarche proposée pour la prédiction du comportement des composites PP/Chanvre . . . 114
4.3.2 Observations MEB de la forme des fibres de chanvre . . . 115
4.3.3 Démarche de reconstruction . . . 118
4.3.4 Modules de Young possibles des fibres de chanvre, adaptée de PLACET *et al.* [99] . . . 119
4.4.1 Maillage du PPC5 . . . 120
4.4.2 Zoom sur le maillage de la matrice . . . 121
4.4.3 Géométrie maillées du (a) PPC5 et (b) PPC10 . . . 121
4.4.4 Liaison des nœuds de l'interface pour le PPC5 . . . 122
4.4.5 Conditions aux limites et relation de contrainte pour les composites PP/chanvre 123
4.4.6 Champ de déplacement obtenu . . . 123
4.4.7 Cartographie des déformations pour une section $(\overline{x}, \overline{y})$ PPC5 . . . 124
4.4.8 Cartographie des déformations pour une section $(\overline{x}, \overline{y})$ PPC10 . . . 125
4.4.9 Endommagement de la matrice aux extrémités des fibres . . . 126
4.4.10 Evolution de l'endommagement de 4 éléments pour le composite PPC5 à $10^{-4}s^{-1}$ . . . 126
4.4.11 Distribution de l'endommagement pour le PPC5 à $10^{-4}s^{-1}$ . . . 127
4.4.12 Distribution de l'endommagement pour le PPC5 à $10^{-2}s^{-1}$ . . . 128
4.4.13 Comparaison modèle EF et courbe expérimentale . . . 130
4.4.14 Nouvelle géométrie non maillée du PPC5 . . . 131
4.4.15 Comparaison des cartographies d'endommagement des PPC5 pour $\varepsilon_{macro} = 3\%$ 132
4.4.16 Courbes contrainte-déformation des PPC5 en fonction de la longueur des fibres 134

Liste des tableaux

1.1 Principales fibres végétales, d'après John et Thomas[60] 32
1.2 Composition chimique de fibres végétales, d'après Baley [11] 32
1.3 Propriétés des principales fibres utilisées comme renforts, d'après Baley [10] . . 35

2.1 Valeurs remarquables du facteur d'Hermans 52
2.2 Réglages du tomographe aux rayons X 58
2.3 Informations statistiques sur les fonctions de répartition $h(r)$ 65

3.1 Propriétés de traction des composites PP/chanvre, selon Mutjé *et al.* [88] . . . 71
3.2 Module tangent initial lors des essais monotones (MPa) 82

4.1 Récapitulatif des paramètres de la loi de comportement du PP 110
4.2 Résumé des fraction massiques et volumiques des différentes compositions de composite PP/Chanvre 116
4.3 Extrait du résultat du programme VBA pour le PPC5 117
4.4 Taille des problèmes 121
4.5 Taille des problèmes des composites PPC5 133
5.1 Conditions d'injection de nos éprouvettes 151

Introduction générale

Les progrès de la technologie et l'accroissement de la demande augmentent considérablement les contraintes sur les ressources naturelles. La prise de conscience grandissante de l'impact de l'Homme sur l'environnement conduisant à l'épuisement de nos ressources et la modification du climat, incitent fortement les industriels et les chercheurs au développement d'alternatives moins gourmandes en énergie et diminuant l'impact environnemental en améliorant leur recyclabilité et leur renouvelabilité.

Depuis maintenant de nombreuses années, l'accroissement des matériaux composites de haute technicité dans de nombreux secteurs d'activité (transport : aéronautique, automobile, ferroviaire, loisirs, sport,...) est lié à leurs performances, qui surpassent chacun des constituants, et leur densité plus faible que les matériaux métalliques. La volonté grandissante de maîtriser nos ressources incite au développement d'alternatives aux matériaux issus de ressources fossiles. Celles-ci passent par le développement de composites à matrice thermoplastique de haute performance et par l'utilisation de charges naturelles comme alternatives aux fibres synthétiques (verre, carbone) en tant que matériaux de renfort.

L'utilisation de matériaux à base de fibres naturelles n'est pas récente et date de plusieurs civilisations, les paniers en osier en sont un exemple frappant, plus récemment les sièges et les réservoirs des aéroplanes de 1896 ont été réalisés en fibres naturelles avec un petite quantité de liant polymériques [20]. A l'heure actuelle, les différentes utilisations de ces matériaux composites à renforts naturels sont souvent limitées à des applications où les contraintes mécaniques et thermiques ne sont pas importantes comme par exemple les tableaux de bord, rétroviseur ou contre-porte pour l'industrie automobile, les planchers pour le ferroviaire. Néanmoins les différentes mesures européennes et mondiales encouragent l'extension de leur utilisation, ainsi le groupe PSA annonce à l'horizon 2015 que 30% des matériaux utilisés dans leur production proviendront de matériaux dits plus « verts » (issue de la voie de valorisation du recyclage, matériaux à renforts naturelles, ou biomatériaux...).

Ces composites à renforts naturels ont un grand potentiel pour de nombreuses applications comme substitut aux composites à fibres synthétiques. En effet, les avantages des fibres naturelles par rapport à leurs homologues synthétiques (fibres de verre, de carbone,...) sont nombreux. Nous pouvons citer par exemple leur coût moindre et leurs propriétés spécifiques,

c'est à dire les propriétés mécaniques ou thermiques ramenées à la densité. Cependant, leur température de dégradation relativement basse limite le choix de la matrice à celle dont la température de mise en forme est inférieure à 200°C tel les polyoléfines (polyéthylène PE et polypropylène PP).

De nombreuses recherches portent sur l'amélioration des performances de ces composites pour étendre leur utilisation à des applications où les contraintes sont critiques. Les performances finales vont dépendre du choix de la matrice, des renforts, de la mise en forme et surtout de leur interaction, c'est à dire de la résistance de l'interface. Ainsi un domaine d'investigation majeur porte sur la détermination de méthode permettant d'augmenter les propriétés de l'interface (traitements des fibres, de la matrice et l'ajout d'un agent de couplage).

Le frein majeur à leur utilisation dans des applications dites « de structure » est le manque de connaissance de leur comportement, leur endommagement et leur vieillissement. Est-ce que ces matériaux ont un réel potentiel pour une utilisation future dans des applications structurelles ou resteront-ils limité aux applications d'esthétisme et d'emballage ?

Ainsi cette thèse se propose d'étudier un composite thermoplastique (PP) renforcé par des fibres naturelles d'origine végétale. Les fibres naturelles sont classées selon leur origine (végétale : chanvre, lin, ... ; animale : laine, soie, ...). Parmi les fibres végétales, le chanvre est un matériau de renfort prometteur. Sa culture est relativement facile en France ; ainsi dans l'objectif de valoriser les ressources de proximité, le chanvre a été sélectionné comme matériau de renfort des composites étudiés. Toutefois le comportement mécanique du chanvre constitue un champ d'investigation à part entière. En effet, les propriétés dépendent de nombreux paramètres le long de la chaine d'obtention des fibres techniques (croissance, récolte, humidité,...)

Ce travail s'appuie sur une démarche expérimentale de caractérisation du comportement thermomécanique d'un composite à matrice thermoplastique (PP) renforcé par des fibres courtes de chanvre. Les différentes éprouvettes nécessaires à cette étude ont été obtenues par un procédé de compoundage - injection. L'objectif majeur est de comprendre et de visualiser les principaux mécanismes physiques (endommagement, interaction microstructurale, déformation viscoélastique et plastique...) à prendre en compte pour proposer une stratégie de modélisation permettant de prédire le comportement de ces composites afin d'optimiser leurs performances futures. Ainsi les conclusions de cette étude ont poussé à proposer une stratégie de modélisation du comportement par un modèle éléments-finis. L'utilisation de la tomographie aux rayons X a permis d'obtenir les facteurs géométriques clés au développement d'un algorithme de reconstruction d'un modèle éléments-finis intégrant les distributions d'orientation et de répartition des fibres ainsi que leur longueur. La loi de comportement de la matrice a été obtenue en se basant sur le formalisme de la micromécanique des milieux multi-fissurés en supposant un milieu

élastique endommageable. Ce travail est subdivisé en quatre chapitres articulés de la manière suivante.

Le chapitre 1 donne une définition générale des composites et propose une présentation de chacun des constituants ainsi que leur comportement (polymères et des fibres naturelles). La mise en forme de composite à matrice thermoplastique est également abordée. Ce chapitre se conclut par une présentation des composites sujets de cette étude et de la problématique.

L'influence de l'écoulement sur l'orientation des fibres lors de l'injection plastique ainsi que les outils mathématiques indispensables permettant de décrire cette orientation sont abordées au début du chapitre 2. Les méthodes et les résultats employés pour caractériser la microstructure des composites PP/chanvre sont ensuite discutés. L'utilisation de la tomographie aux rayons X a permis une étude statistique de la distribution d'orientation et de répartition des fibres. Cette étude sert de base au développement d'un algorithme permettant de générer un modèle éléments-finis présenté au chapitre 4.

Le chapitre 3 présente les essais expérimentaux de caractérisation du comportement thermomécanique des composites PP/chanvre dans le domaine quasi-statique. Ces matériaux sont sensibles aux conditions environnementales (température, humidité), tous les essais ont donc été réalisés dans une enceinte climatique régulée en température. De plus l'humidité résiduelle des éprouvettes de caractérisation a été contrôlée afin de s'assurer qu'aucune différence significative entre les éprouvettes ne vient perturber les mesures. Les propriétés viscoélastiques ont été obtenues par analyse thermique dynamique (*Dynamic Mechanical Analysis* - DMA). Ces essais ont été complétés par des essais de traction uniaxiale monotone et des essais de type charge-décharge-maintien afin de mettre en évidence le comportement non-linéaire des composites.

Le chapitre 4 aborde la modélisation du comportement des composites. Celle-ci passe par la modélisation de chacune des phases : la matrice, les renforts fibreux et l'interface. Après un bref rappel des théories de transition d'échelle, le chapitre décrit les équations constitutives nécessaires à la prédiction du comportement effectif de la matrice dans un contexte d'endommagement progressif. La matrice sera supposée élastique isotrope, affaiblie par des micro-fissures de forme « *penny-shaped* ». L'algorithme permettant de générer les renforts fibreux en intégrant une distribution d'orientation et de répartition des fibres ainsi que leurs facteurs géométriques (forme, longueur, diamètre) est décrit. Les capacités prédictives de ce modèle seront discutées et critiquées via la modélisation numérique d'essais de traction. Ce chapitre se clôt par une étude de la sensibilité du modèle à la longueur des fibres.

Chapitre 1

Etat de l'art : Composites à fibres naturelles

1.1 Les composites

Les attentes du marché - produire plus léger plus performant - étendent largement l'utilisation des matériaux composites dans l'industrie. Ces matériaux sont constitués d'au moins deux phases non miscibles. La phase majoritaire est appelée matrice et a pour rôle la protection et la transmission des contraintes à la seconde appelée renfort. Ces constituants peuvent être de différentes natures, matrice polymère ou métallique, renforts synthétiques (fibres de verre, carbone ou aramide...), minéraux (talc...) ou naturels. Cet assemblage permet d'améliorer considérablement certaines propriétés (mécaniques, électriques ou thermiques) du composite qui viennent surclasser celles de chacun des constituants pris individuellement mais au détriment de certaines autres. Par exemple, d'un point de vue mécanique, l'ajout de fibres de carbone dans une matrice époxyde confère au composite une tenue mécanique et une rigidité nettement supérieures à celles de la matrice, en contrepartie la déformation à rupture est faible et la rupture peut être fragile.

La performance d'un composite va résulter d'une interaction complexe entre de nombreux paramètres, la suite de ce paragraphe ne se veut pas exhaustive mais essaie de dresser une liste de quelques paramètres afin de rendre compte de cette complexité et des enjeux dans la conception de nouveaux matériaux composites. Ces performances sont directement liées aux propriétés thermomécaniques des constituants mais aussi et surtout des propriétés de l'interface. En effet une interface faible ne permettra pas une transmission des efforts de la matrice vers les renforts et diminuera considérablement la tenue mécanique du composite. De plus, la répartition, l'orientation et le facteur de forme ($R = {}^{L}/\varnothing$) des renforts sont des paramètres prépondérants à prendre en compte lors de la réalisation de composites. Par exemple, l'intégration

de fibres longues orientées parallèlement à l'axe principal de sollicitation offrent de meilleures performances que des fibres courtes orientées aléatoirement.

1.2 Les polymères

1.2.1 Définitions

La conception à base de polymères nécessite une bonne connaissance de leur synthèse jusqu'à leur mise en forme. Il existe une grande variété de polymères synthétisés par l'homme, cette section présente les polymères associés à la chimie du carbone et inclura une brève description des principales familles de polymères.

Les polymères sont des composés organiques dont la structure en chaînes carbonées est définie par son motif élémentaire, appelé monomère (A), la répétition de ce motif confère à la macromolécule cette structure de chaîne. On parle d'homopolymère si tous les motifs qui constituent la chaîne sont identiques (-A-A-A-) ou de copolymère si elle est composée de motifs de nature chimique différente. Deux types de copolymère sont possibles, les copolymères statistiques si les motifs s'alternent (-A-B-A-A-B-B-B-) ou les copolymères à blocs (-A-A-A-B-B-B-).

Les matériaux polymères sont donc un assemblage de plusieurs chaînes macromoléculaires où la cohérence est obtenue par l'action de deux types d'interaction. Les liaisons intramoléculaires fortes sont des liaisons covalentes entre les atomes de la chaîne dont les énergies de dissociation sont de l'ordre de centaines de kJ/mole, les liaisons entre chaînes sont assurées par des liaisons faibles de type Van der Walls dont les énergies de dissociation sont de l'ordre du kJ/mole. Ce type de liaison est rendu possible par la présence d'un atome d'hydrogène H et d'un atome électronégatif (O ou N).

Les polymères sont synthétisés sous forme d'arrangements réguliers ou non de chaînes linéaires. Cet arrangement peut se retrouver sous deux formes, un état cristallin, dans lequel les chaînes adoptent une conformation régulière, ordonnée et compacte rendant possible la définition d'une maille cristalline périodique dans les trois directions de l'espace et un état amorphe, dans lequel les chaînes s'arrangent en une conformation statistique en pelote, c'est à dire que les chaînes voisines sont étroitement imbriquées et enchevêtrées. Dans la plupart des polymères, ces deux formes coexistent, en effet des ramifications et une vitesse de refroidissement trop importante empêchent la cristallisation complète et donnent naissance à une structure amorphe. On retrouve donc une alternance de phase amorphe et cristalline, on parle alors d'un état semi-cristallin (voir figure 1.2.1).

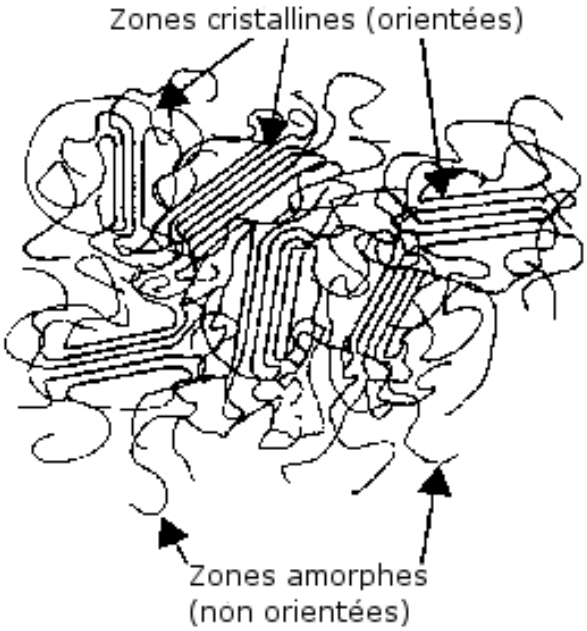


FIGURE 1.2.1 – Etat semi-cristallin des polymères

La température est un paramètre qui affecte considérablement les polymères et agit directement sur les liaisons faibles interchaînes. Selon la nature de l'arrangement moléculaires on distingue alors deux familles de polymère.

Les thermodurcissables sont constitués de chaînes liées entre elles chimiquement (par ramifications ou pontages) qui forment un réseau difficile à défaire sans rupture irréversible. Ce sont des polymères réticulés où les nœuds empêchent la fusion. Ils sont obtenus par polymérisation avec différents agents (réticulant, d'un catalyseur et/ou d'un durcisseur). Les principales classes sont les polyesters, les phénoliques, les époxydes.

Les thermoplastiques sont des polymères à structure linéaire sans liaisons fortes interchaînes, il n'existe pas de ramifications ou de pontages, quand la température croit les chaînes glissent les unes sur les autres. Il existe donc une température de ramollissement (ou fusion). Le changement d'état solide/liquide ou pâteux peut se faire plusieurs fois avec une perte de caractéristiques à chaque cycle. Les polyoléfines (polyéthylène PE, polypropylène PP), les PTFE et les PEEK sont des thermoplastiques semi-cristallins, et les ABS, les PMMA et les PC sont des thermoplastiques amorphes.

1.2.2 Le comportement des polymères

1.2.2.1 Dépendance à la température

Une chaîne macromoléculaire réagit à des sollicitations mécaniques, thermiques ou électriques. Le passage d'un état perturbé vers un état d'équilibre de la chaîne est rendu possible

par l'existence de mouvements moléculaires dus à l'agitation thermique, ces retours sont appelés relaxations. La transition α (associée à la transition vitreuse) est la plus importante. Elle correspond au moment où les chaînes de polymères amorphes ont suffisamment de mobilité pour un changement de conformation global (coopérativité des mouvements locaux). Cette transition traduit le passage de l'état vitreux à l'état caoutchoutique, elle s'accompagne d'une modification brutale des modules viscoélastiques du matériau. Cette chute est plus intense dans les polymères amorphes (figure 1.2.2).

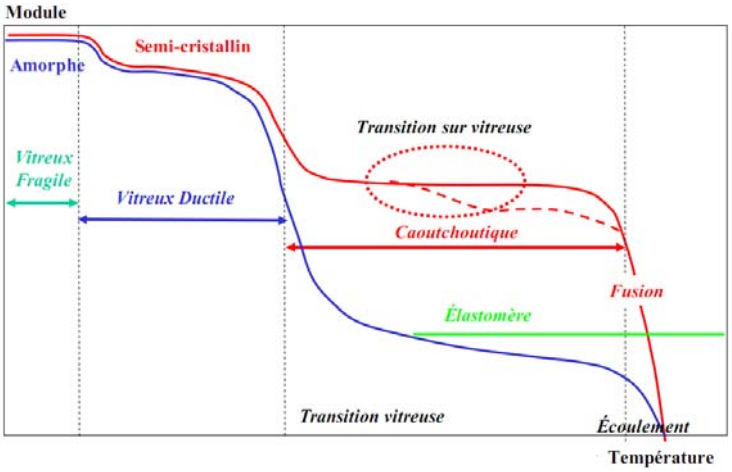


FIGURE 1.2.2 – Schématisation de l'évolution d'un module viscoélastique en fonction de la température [19]

Dans l'état vitreux, peu de mouvements de chaînes sont possibles, les déformations sont donc faibles et les modules sont élevés. Il existe toujours des fluctuations temporelles et spatiales de conformation, contrôlées par la température : d'autant plus rapides et nombreuses que la température augmente. Il devient donc plus « facile » de déformer le matériau lorsque sa température augmente. Le module reste donc thermo-dépendant et décroissant. De même, le matériau reste viscoélastique.

Dans l'état caoutchoutique, la température est suffisante pour que les chaînes changent de manière spontanée les différentes conformations en un temps court par rapport au temps de sollicitation, on assiste alors à un affaiblissement total et rapide des propriétés mécaniques. L'existence de cristaux pallie en partie la perte de module et de cohésion du polymère amorphe. Ainsi, le plateau caoutchoutique d'un semi-cristallin est non seulement plus haut mais aussi plus long que celui d'un amorphe.

Ces deux points expliquent qu'un semi-cristallin, tel le PP ou le PE, peut être utilisé à des températures supérieures à leur température de transition vitreuse, tandis qu'un amorphe, tel le PS, sera limité à son plateau vitreux. On parle d'élastomères après réticulation des chaînes d'un polymère amorphe ou semi-cristallin (Polyéther block amide PEBA).

1.2.2.2 Dépendance au temps - Modèles rhéologiques empiriques

Le comportement des polymères dépend également fortement de la vitesse de sollicitation. L'influence du temps sur les déformations du polymère peut être mis en évidence par un essai de fluage. En effet, lorsqu'on impose un échelon de contrainte à un matériau polymère, la déformation de celui-ci est composée d'une déformation instantanée et d'une déformation retardée qui croît sous contrainte constante. Ce comportement est matérialisé par le modèle rhéologique de Kelvin-Voigt composé d'un ressort et d'un amortisseur en parallèle (figure 1.2.3).

(a) (b)

Figure 1.2.3 – (a) Essai de fluage et (b) modèle de Kelvin-Voigt

De façon duale, l'influence du temps sur les contraintes est visible lors d'un essai de relaxation, la contrainte prend une valeur maximale dès l'application de l'échelon de déformation puis décroît progressivement. Ce comportement est modélisé par le modèle rhéologique de Maxwell composé d'un ressort et d'un amortisseur en série (figure 1.2.4).

(a) (b)

Figure 1.2.4 – (a) Essai de relaxation et (b) modèle de Maxwell

On utilise alors des modèles rhéologiques composés d'un assemblage de plusieurs modèles rhéologiques élémentaires pour décrire les nombreuses relaxations de temps caractéristiques différents d'un polymère.

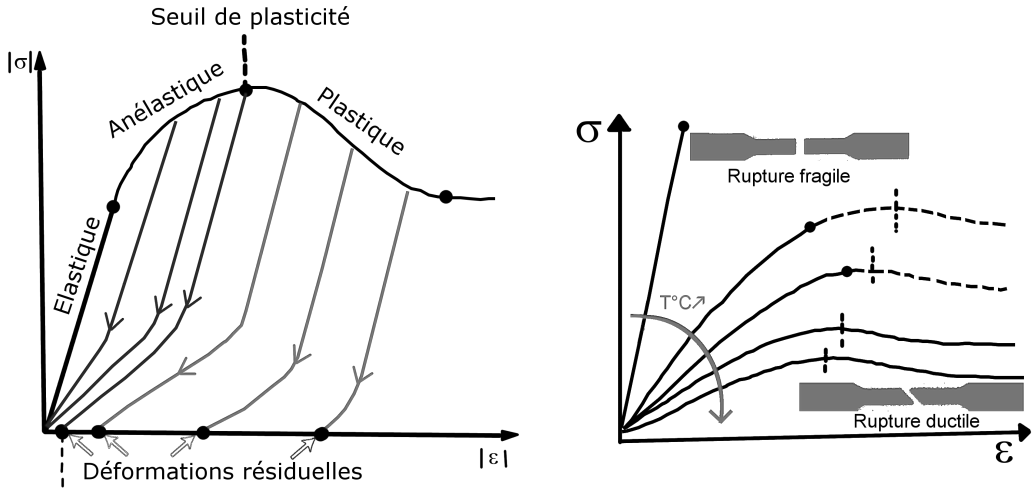
1.2.2.3 Comportement mécanique général des polymères

Les courbes $\sigma - \varepsilon$ schématiques des polymères montrent les différents comportements se succédant à déformation croissante (figure 1.2.5a). A faible déformation, la contrainte évolue

linéairement avec la déformation - c'est le domaine élastique. Au-delà, la contrainte n'évolue plus linéairement - le comportement anélastique ou viscoélastique se manifeste alors clairement. Dans ce domaine, les chemins de charge et de décharge ne sont pas identiques et indiquent qu'une partie de l'énergie a été dissipée. De plus, à contrainte nulle, aucune déformation résiduelle n'est observable au bout d'un temps « raisonnable ». La fin de ce domaine est matérialisée par le seuil de plasticité, à partir duquel le comportement viscoplastique apparaît. Un phénomène d'instabilité plastique se manifeste alors et est associé à une localisation de la déformation.

Les essais de traction uniaxiale sont le plus souvent utilisés pour caractériser un polymère. Lors de cet essai, la présence ou non des trois types de comportement (élastique, anélastique, viscoplastique) dépend de la température (figure 1.2.5b). En effet, à haute température (proche de T_g pour un polymère amorphe et entre T_g et T_f pour un polymère semi-cristallin), la courbe présente les trois domaines et la rupture intervient dans le domaine viscoplastique. Lorsque la température diminue ($T < T_g$ pour les semi-cristallins), la rupture s'opère dans le domaine anélastique et le seuil de plasticité ne se distingue plus. Notons également que l'augmentation de la vitesse de déformation aura la même influence sur l'allure des courbes qu'une diminution de la température.

Les lois de comportement des polymères s'écrivent sous la forme générique $\sigma = f(\varepsilon, \dot{\varepsilon}, p, T)$ où p est la pression hydrostatique. En fonction du domaine de comportement (élastique, viscoélastique, viscoplastique) identifié sur la figure 1.2.5, une réduction du nombre de paramètres conduit à l'élaboration de lois de comportement simplifiées : généralisation de la loi de Hooke pour l'élasticité, les lois de Newton pour la viscosité. Le domaine de viscoélasticité non-linéaire peut être caractérisé en suivant la démarche proposée par Schapery [109].



(a) Schématisation des profils de décharge

(b) Influence de la température sur l'allure des courbes $\sigma - \varepsilon$ en traction uniaxiale

Figure 1.2.5 – Schématisation de l'allure des courbes contrainte-déformation d'un polymère [52]

1.2.3 Le polypropylène (PP)

Le polypropylène (PP) est un polyoléfine linéaire, de formule $(C_3H_6)_n$ (figure 1.2.6), obtenu par polymérisation Ziegler-Natta ou par polymérisation par catalyse par un métallocène. Il existe une grande variété de propriétés et de comportement du PP dépendant de sa nature chimique, de sa formulation et des conditions de mise en forme.

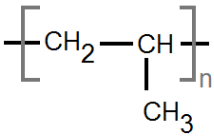


FIGURE 1.2.6 – Formule chimique du polypropylène PP

Le polypropylène est un polymère semi-cristallin à l'état solide mais présente un polymorphisme cristallin, quatre structures cristallines sont aujourd'hui connues. La phase monoclinique α (voir figure 1.2.7) est la plus courante, ces paramètres de maille sont donnés dans CHENG *et al.* [30] :

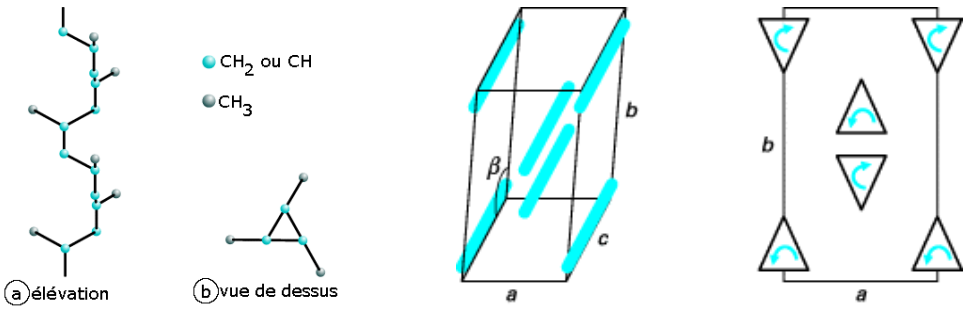
$$a = 6.66 \quad \mathrm{b} = 20.78 \quad \mathrm{c} = 6.495 \quad \beta = 99.62\,^\circ \quad \alpha = \gamma = 90\,^\circ$$

Dans des conditions standards, la phase hexagonal β est moins stable que la phase α et sa structure est plus controversée, mais un groupe de paramètres semble aujourd'hui être admis

$$a = 11 \quad \mathrm{c} = 6.5 \quad \gamma = 120\,^\circ \quad \alpha = \beta = 90\,^\circ$$

LABOUR *et al.* [72] ont mis en évidence que la mobilité est plus importante dans la phase β que dans la phase α, de plus le travail nécessaire à la rupture et l'allongement augmentent avec la fraction de phase β alors que le module et le seuil de plasticité diminuent.

La phase triclinique γ et la phase smectique du PP, plus rarement observées, ne seront pas présentées ici mais une description est fournie par la littérature[28, 30].



(a) Conformation hélicoidale (b) Schéma de la maille monoclinique α

FIGURE 1.2.7 – Structure de la phase α du PP [42]

1.3 Les fibres naturelles

1.3.1 Classification et structure

Les fibres naturelles sont subdivisées selon leur origine : animale, minérale ou végétale. La composition et la structure de ces fibres dépendent de cette origine. Par exemple les fibres d'origine animale (soie, laine...) sont principalement constituées de protéines alors que les fibres végétales (issues de plantes et végétaux) sont principalement constituées de cellulose (*cellulose*$-\alpha$) [60]. La cellulose est un polymère naturel de D-anhydroglucose ($C_6H_{11}O_5$), la répétition du monomère conduisant à la chaîne macromoléculaire linéaire de cellulose se fait via des liaisons appelées liaisons glycosidiques β porté par les atomes de carbone 1 et 4 du motif élémentaire ($\beta - 1,4 -$ glycosidic bonds) [89]. Le tableau 1.1 présente un extrait des principales fibres végétales recensées par John et Thomas [60].

TABLEAU 1.1 – Principales fibres végétales, d'après John et Thomas[60]

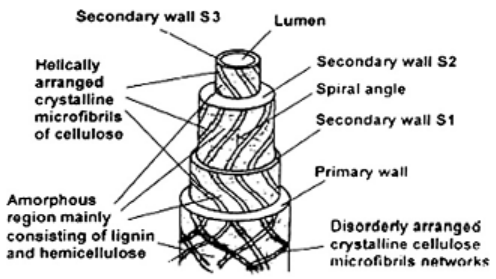
Source des fibres	**Espèce**	**Origine**
Bambou	*> 1250*	herbe
Banane	*Musa indica*	feuille
Fibres de coco	*Cocos nucifera*	fruit
Coton	*Gossypium sp.*	graine
Lin	*Linum usitatassimum*	tige
Chanvre	*Cannabis sativa*	tige
Jute	*Corchorus capsularis*	tige
Sisal	*Agave sisilana*	feuille
Bois	*> 10000*	tige

Les fibres végétales sont principalement composées d'hémicellulose, de pectine et de cellulose, ce dernier constituant est le seul à présenter une forme cristalline conférant à la fibre des propriétés thermomécaniques intéressantes. Le tableau 1.2 donne la composition moyenne de quelques fibres.

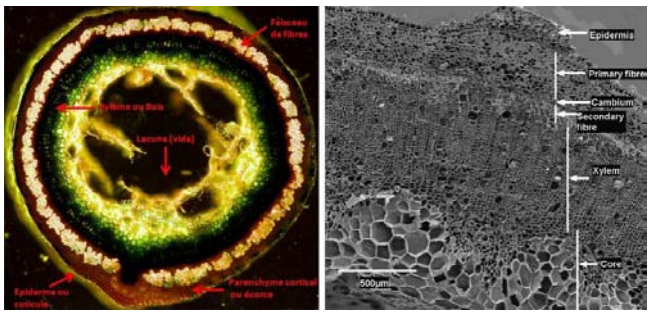
TABLEAU 1.2 – Composition chimique de fibres végétales, d'après Baley [11]

Fibre	**Pectine**	**Hémicellulose**	**Cellulose**
Lin	6 ± 3	7 ± 3	82 ± 5
Chanvre	$2,5$	$5,5$	$78,3$
Jute	$0,2$	12	$64,4$
Sisal	$0,8$	12	$65,8$

Les biofibres peuvent être considérées comme des composites de fibrilles de cellulose (composé cristallin) creux maintenus ensemble par une matrice constituée principalement de lignine et d'hémicellulose (principaux composés amorphes) et possèdent donc une structure complexe pouvant être assimilée à un assemblage de cylindres creux dont les fibrilles de cellulose présentent un angle d'hélice par rapport aux parois (composés amorphes). La figure 1.3.1 propose un schéma de cet arrangement selon JOHN et THOMAS [60] et une micrographie d'une coupe transversale d'une tige de chanvre.



(a) Schéma de l'arrangement d'une biofibre, d'après JOHN et THOMAS[60]



(b) micrographie d'une coupe transversale d'une tige de chanvre, d'après MUTJÉ *et al.*[88]

FIGURE 1.3.1 – Structure d'une biofibre

Le comportement thermomécanique de chaque biofibre dépend non seulement de leur composition mais aussi de leur structure [60]. Comme décrit dans le review de BLEDZI et GASSAN [20], chacun des principaux constituants agit sur les propriétés physiques et mécaniques :

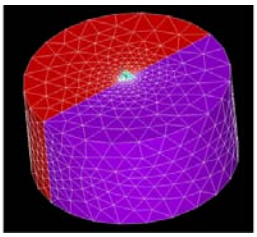
- la raideur de la fibre augmente avec la teneur en lignine qui agirait comme un agent de couplage entre les parois et les fibrilles de cellulose
- le module de Young augmente avec la teneur en cellulose
- la ductilité (déformation à rupture) des fibres végétales augmente si l'angle de spiral augmente. En effet les fibrilles se réorientent progressivement parallèlement à l'axe de chargement avant de supporter la pleine charge.

1.3.2 Propriétés des fibres naturelles

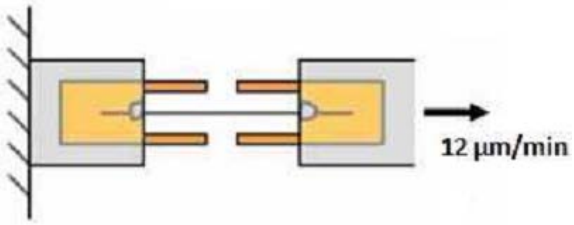
Les chercheurs et les industriels s'intéressent aux fibres naturelles comme alternatives aux fibres synthétiques comme renforts dans des composites puisqu'elles ont le potentiel d'égaler voir de surpasser les propriétés spécifiques (propriétés ramenées à la densité) des fibres synthétiques telles que les fibres de verres [8]. Le caractère naturel leur confère cependant une grande variabilité entre les plantes d'une même plantation et explique en partie les nombreuses

informations, pas toujours cohérentes entre elles de la littérature. Cette spécificité a été mise en évidence en 1989, par MICHELL [86] sur des composants issus du bois. Le module de Young maximal de 250 GPa, obtenu de façon théorique pour les cristallites (c'est à dire le composant du bois ayant subi le plus haut niveau d'extraction), est nettement supérieur au module de 70 GPa des microfibrilles de bois, lui même supérieur au module de 10 GPa du bois.

Les propriétés des fibres naturelles sont donc un grand sujet de débat dans la littérature, puisque à cette variabilité vient s'ajouter un niveau d'extraction de la fibre différent selon les études (faisceau de fibres, fibres unitaire,...), et les techniques de mesure (voir figure 1.3.2) très variables d'une équipe de recherche à l'autre, traction uniaxiale sur fibres « unitaires » [59] ou nanoindentation couplée à un modèle éléments-finis [51].



(a) Nanoindentation, d'après GUESSASMA *et al.*[51]



(b) Traction sur fibres unitaire, d'après JIN et GONG [59]

FIGURE 1.3.2 – Exemples de techniques de mesures des propriétés des fibres

En effet, les techniques d'extraction, la méthode de culture et la maturité de la plante avant l'extraction de la fibre conditionnent sa structure et sa composition chimique et donc ses propriétés thermomécaniques. Ainsi, les travaux de PICKERING *et al.* [96] montrent qu'il existe une maturité optimale de la plante permettant d'obtenir des propriétés maximales de la fibre (figure 1.3.3).

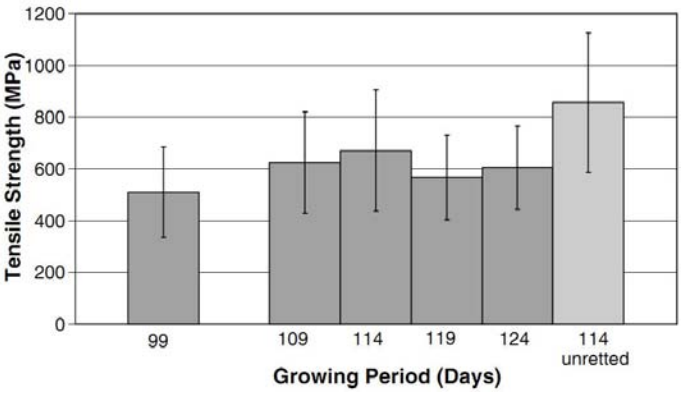


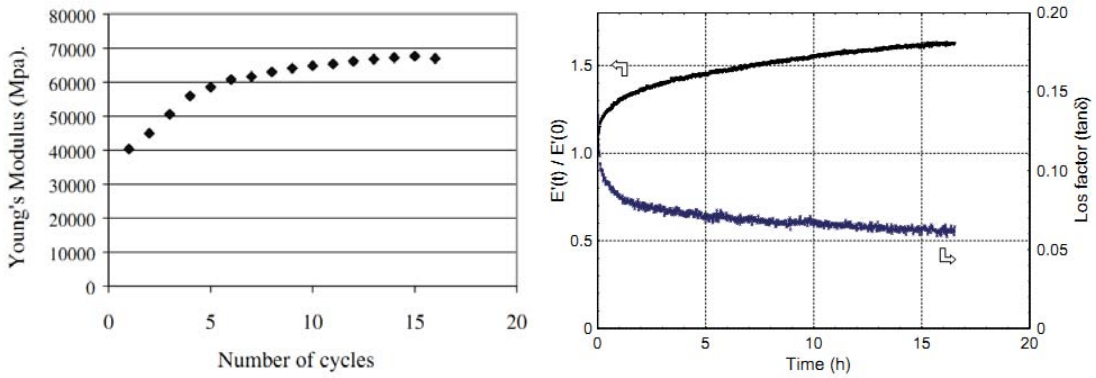
FIGURE 1.3.3 – Effet de la maturité sur les propriétés des fibres de chanvre, d'après PICKERING [96]

Le tableau 1.3 recense les propriétés des principales fibres utilisées comme renforts dans les composites à matrice polymère. La forte variabilité observée pour les caractéristiques des fibres végétales peut être expliquée par les nombreux facteurs mis en évidence dans cette section (la méthode d'extraction, le vieillissement, la structure et la composition chimique).

TABLEAU 1.3 – Propriétés des principales fibres utilisées comme renforts, d'après BALEY [10]

	Fibre	E (GPa)	ε_r (%)	σ_m (MPa)	**Densité**
Fibres synthétiques	Verre E	72 - 73	3 - 4,6	2000 - 3400	2,54
	Carbone	230 - 825	0,3 - 1,5	2350 - 3530	1,7 - 2
	Aramide	124	2,9	3620	1,44
Fibres végétales	Lin	12 - 85	1 - 4	600 - 2000	1,54
	Chanvre	35	1,6	389	1,07
	Jute	26,5	1,5 - 1,8	393 - 773	1,44
	Coton	5,5 - 12,6	7 - 8	287 - 597	1,5 - 1,6
	Noix de coco	4 - 6	15 - 40	131 - 175	1,15
Fibres animales	Ver à soie	5 - 16	15 - 18	200 - 650	-
	Araignée	7	30	600	-

Ces propriétés sont généralement obtenues via des essais simples et très peu d'études s'intéressent à l'évolution de ces propriétés lors d'essais cycliques, BALEY [9] et PLACET [98] ont alors étudié la réponse à des sollicitations dynamiques de charge-décharge en traction sur des fibres de lin et de chanvre respectivement et ont mis en évidence une augmentation du module de la fibre avec les cycles (figure 1.3.4). Cette augmentation est liée aux réarrangements internes de la fibre, c'est à dire à la réorientation de l'angle des fibrilles de cellulose et / ou au déplacement des molécules d'eau dans la fibre.



(a) fibres de lin, selon BALEY [9]

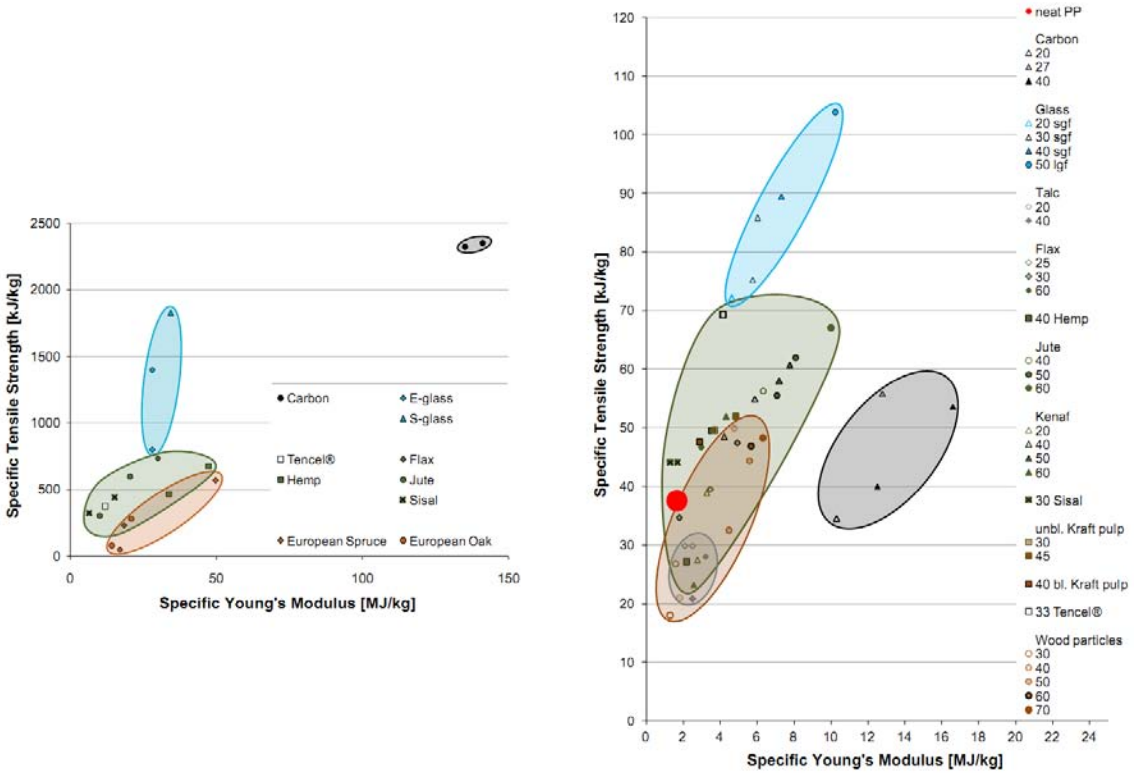
(b) fibres de chanvre, selon PLACET [98]

FIGURE 1.3.4 – Augmentation des modules des fibres naturelles avec les cycles

1.3.3 L'utilisation des fibres végétales comme renforts des polymères

Le contexte environnemental et économique pousse les chercheurs et les industriels à utiliser des ressources renouvelables pour le développement de nouveaux matériaux. En effet l'épuisement des ressources fossiles et les contraintes mondiales grandissantes sur le contrôle des émissions de gaz polluants accélèrent l'utilisation de ressources dites renouvelables qui ont la capacité d'être « inépuisable » et avoir un bilan carbone neutre grâce à la photosynthèse.

L'une des voies d'étude est le remplacement des fibres synthétiques (fibres de verre, ...) par des fibres issues de la biomasse, quelques travaux dressent le bilan et argumentent cette potentialité d'un point de vu mécanique [21, 125] et environnemental [62] et soulignent leurs forces et leurs faiblesses. Leurs propriétés spécifiques sont intéressantes pour le développement de composites à matrice thermoplastique et comptent parmi leur force (figure 1.3.5).



(a) propriétés spécifiques des fibres

(b) propriétés spécifiques des composites (le point rouge correspond aux caractéristiques moyennes du PP vierge)

FIGURE 1.3.5 – Comparaison selon un diagramme ASHBY, selon SOBCZAK *et al.* [112]

Ces discussions suggèrent que ces composites à charges naturelles sont destinés aux applications dont les contraintes mécaniques et thermiques ne sont pas très importantes. Ainsi BODROS *et al.* [21] affirment qu'il est possible de remplacer un laminé polyester / fibre de verre par un

composite acide polylactique-L (PLLA) / fibre de lin si la structure supporte essentiellement des contraintes de traction.

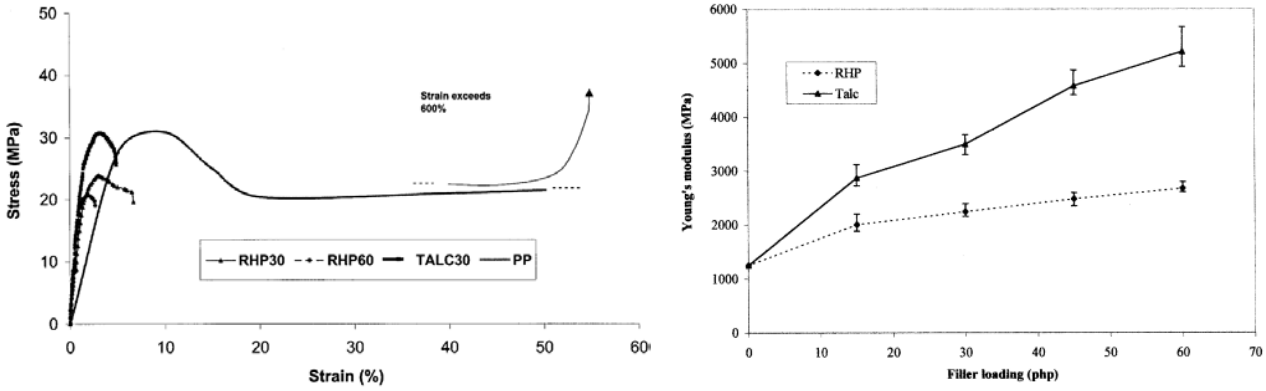
L'obtention d'un composite à renforts végétaux nécessite une parfaite maîtrise du procédé de mise en forme (obtention et production), et comme pour les fibres synthétiques, une préparation chimique ou physique des fibres végétales est nécessaire afin de permettre l'adhésion fibres /matrice. En effet, sans précaution préalable l'utilisation de ces fibres en qualité de renforts risque de créer un composite dont les caractéristiques mécaniques sont inférieures aux attentes avec une stabilité dimensionnelle médiocre [8, 60].

Le développement d'un composite à matrice polymère renforcé par des fibres végétales est complexe et de nombreuses contraintes doivent êtres prises en considération :

- La nature hydrophile des groupes hydroxydes (OH) des fibres de lignocelluloses les rend incompatibles avec la plupart des thermoplastiques engendrant un phénomène d'aggrégation réduisant l'efficacité du renforcement.
- Le choix de la matrice est limité. En effet la température de mise en œuvre ne doit pas dépasser 200°C, les fibres naturelles se dégradent vite à hautes températures [55]. Des essais ont été effectués pour améliorer la tenue en température par dépôt d'une couche de monomères sur les fibres [49].

1.4 Présentation générale du comportement des composites à renforts naturels

Au vu du nombre de charges d'origines naturelles (espèce et préparation), les études s'intéressent à nombre important de composites à fibres naturelles différents. Ces études mettent souvent en évidence l'impact de ces charges sur le comportement du composite par rapport à celui de la matrice seule et procèdent à une comparaison, quand cela est possible, avec des charges synthétiques ou minérales comparables. Ainsi, Premalal *et al.* [104] étudient un substitut possible du talc, et analysent les performances de renforts issus de déchets de l'exploitation du riz (*Rice husk* (RHP)). Premalal *et al.* [104] montrent que le composite à matrice polypropylène (PP) renforcé par des charges de RHP a le même type de comportement que le PP chargé de particules de talc mais la contrainte d'écoulement et « le module de Young » (calculé par les auteurs) restent inférieurs à leurs homologues synthétiques (figure 1.4.1). Les investigations des auteurs montrent que l'adhésion entre les particules de RHP et la matrice était faible expliquant la formation d'agglomérats engendrant la création de vide dans le composite. Les chutes de la limite d'écoulement et du module sont alors attribuées à la qualité de l'adhésion et aux propriétés des charges plus faibles que ceux du talc.

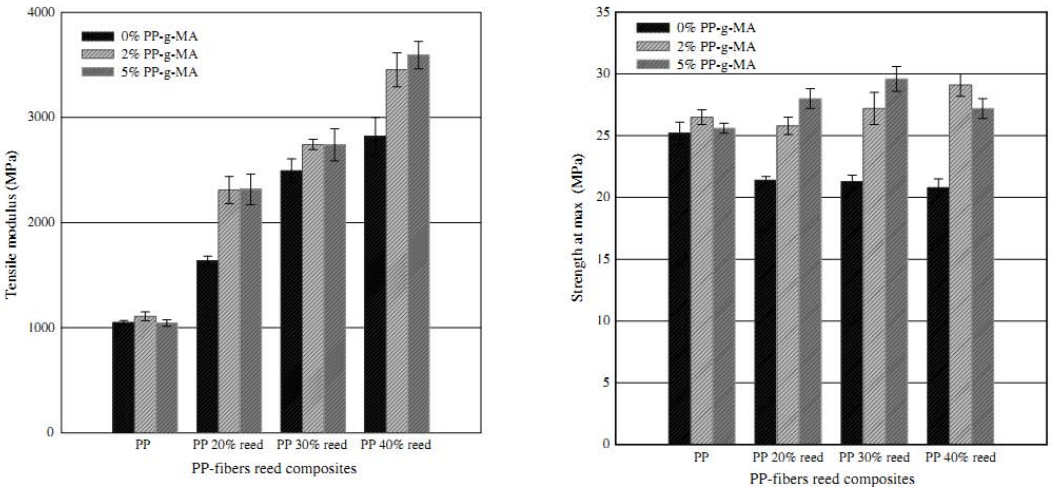


(a) Test de traction (b) Evolution du module de Young

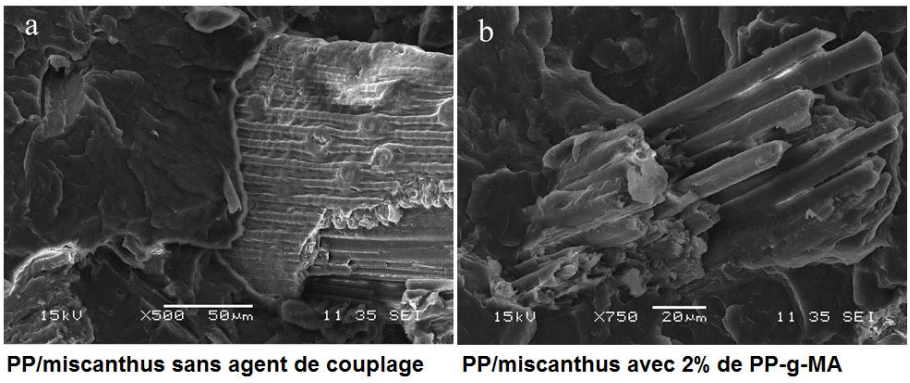
FIGURE 1.4.1 – Comparaison entre le comportement mécanique de composites chargé talc et de RHP, d'après PREMALAL *et al.*[104]

Ce problème est un verrou au développement de ces composites dans des applications de structure et marque fortement la littérature sur les biocomposites et explique les conclusions contradictoires sur la qualité de renfort des fibres naturelles. Dans un review, KU *et al.* [71] synthétisent les différentes recherches effectuées sur les composites à renforts naturels et expliquent les tendances antinomiques par la qualité de la préparation et donc la qualité de l'interface. Si l'interface est suffisamment forte, alors l'ajout de fibres naturelles augmentera les propriétés du composite par rapport à ceux de la matrice, dans le cas contraire un affaiblissement du composite est alors constaté.

BOURMAUD et PIMBERT [26] sont arrivés à cette conclusion en étudiant le comportement mécanique de composites à matrice thermoplastique (PP et PLA), renforcés par des fibres de miscanthus de longueur d'un 1mm environ. De par leur nature et leur taille, ces fibres de miscanthus sont proches des fibres de chanvre que nous étudions dans le cadre de cette thèse. Les auteurs s'intéressent à l'influence de l'agent de couplage sur les propriétés du composite, et montrent ainsi que le miscanthus peut servir comme matériau de renfort sous réserve que la compatibilisation soit suffisante. En effet les analyses MEB des faciès de rupture des composites sans agent de couplage ont montré peu de lien entre les fibres et la matrice (figure 1.4.2).



(a) propriétés mécaniques



(b) Images MEB

FIGURE 1.4.2 – Comportement d'un composite PP/miscanthus, d'après BOURMAUD et PIMBERT [26]

1.5 La mise en forme de composite à matrice thermoplastique

L'un des procédés de mise en forme, le plus couramment utilisé, de pièces composites à matrice thermoplastique renforcés par des fibres courtes ($< 3\,\mathrm{mm}$) se compose d'une étape de compoundage par extrusion/granulation, permettant d'obtenir des granulés de mélange, mis en forme par la suite via un procédé de moulage par injection. De plus, la compatibilisation entre les fibres et la matrice est un facteur prépondérant pour le comportement final du composite. Cette section sera donc consacrée à la présentation des concepts de base des étapes de mise en forme et à la description de complexité de la compatibilisation et de son impact sur le comportement des composites.

1.5.1 Le compoundage

Le compoundage est un processus permettant le mélange par fusion de matières plastiques thermoplastiques et d'additifs (charges de renforts, caoutchouc et fibres), le produit final se présente souvent sous la forme de granulés.

Diverses méthodes de compoundage par extrusion/granulation existent mais le principe est identique et est présenté ici à travers la méthode la plus répandue pour les composites à fibres de verre, à savoir un dosage séparé sur extrudeuse double-vis (figure 1.5.1). La matrice thermoplastique est insérée au début de l'extrudeuse et subit la première transformation, sa fusion (Zone 1), les fibres coupées à une longueur de l'ordre de 3 mm sont alors ajoutées à la matrice fondue (Zone 2), la dernière phase correspond à l'homogénéisation du mélange et au dégazage (Zone 3). Cette dernière est responsable de la diminution de la longueur des fibres. A la sortie de l'extrudeuse, un jonc de composite est obtenu qui est alors refroidi puis broyé pour obtenir les granulés de matière première nécessaire à la mise en forme finale via moulage par injection.

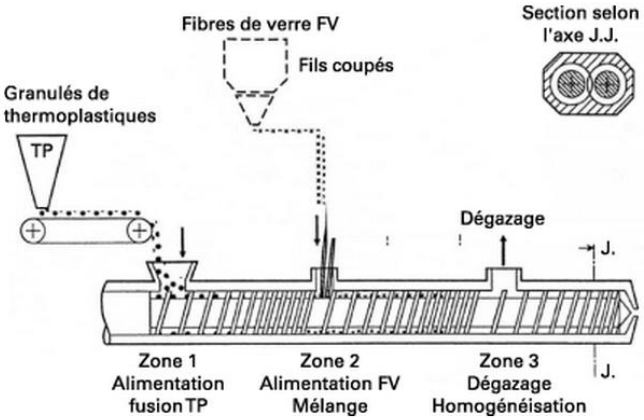


FIGURE 1.5.1 – Schématisation d'une extrudeuse double vis [81]

1.5.2 Le moulage par injection

Le cycle typique, dont le principe est présenté sur la figure 1.5.2, comprend plusieurs phases décrites ci-après.

La plastification : Les granulés sont progressivement chauffés, fondus et homogénéisés par le cisaillement dû à la rotation de la vis. L'apport énergétique nécessaire à la fusion provient de l'action conjuguée de la dissipation mécanique et du transfert thermique depuis le fourreau chauffé. Cette étape est l'une des origines de la diminution de la longueur

moyenne des fibres, et va ainsi induire une distribution de longueur non homogène dans l'écoulement.

Le remplissage : A l'instant choisi, la vis est poussée axialement et joue le rôle d'un piston en injectant à vitesse contrôlée le polymère fondu dans la cavité du moule. Pendant le remplissage, les fibres vont s'orienter dans des directions privilégiées selon les sollicitations mises en jeu.

Le compactage : Une fois les empreintes du moules remplies, une pression élevée est maintenue, autant que possible, jusqu'au figeage de la matière. Une quantité supplémentaire de polymère est alors introduite dans la cavité, dans le but de limiter le retrait thermique et d'uniformiser progressivement la pression dans le moule.

Le refroidissement et l'éjection : La pièce reste quelques instants dans le moule afin que le refroidissement puisse se poursuivre. Une fois que la pièce est refroidie, le moule s'ouvre et la pièce est éjectée (éjecteurs, robot, ...). Pendant ce temps, la phase de plastification recommence, de façon à préparer le prochain cycle.

Il en résulte ainsi une distribution d'orientation complexe, variant considérablement dans la pièce, en particulier suivant l'épaisseur. Les propriétés thermomécaniques vont dépendre de cette distribution d'orientation mais également de la concentration locale de fibres ainsi que de l'hétérogénéité de la distribution de longueur des fibres. La théorie et les outils mathématiques nécessaires à la prédiction et au contrôle de cette orientation seront présentés dans le chapitre relatif à la caractérisation de la microstructure des composites PP/chanvre.

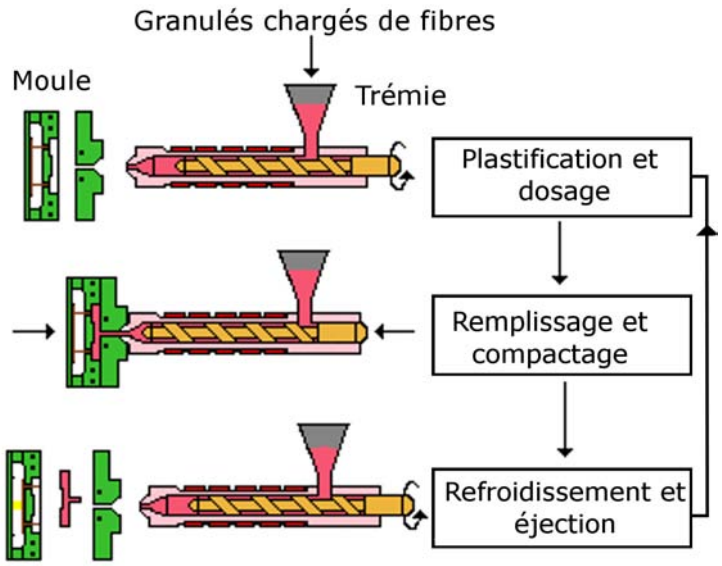


FIGURE 1.5.2 – Principe du moulage par injection (source Arkéma)

1.5.3 La compatibilisation fibres/matrice et son effet sur le comportement

L'amélioration de l'adhésion entre fibres et matrice peut se faire sur plusieurs niveaux (ajout d'un agent de couplage, modification chimique direct de la matrice et/ou traitement de la fibre,...). En règle générale, l'ajout d'un agent de couplage permet d'améliorer la compatibilité entre les phases.

En analysant les différents agents de couplage disponibles dans la littérature, Lu *et al.* [80] concluent que le *PP-g-MA*, c'est-à-dire la fonctionnalisation des chaînes de polypropylène avec des groupes fonctionnels anhydride maléique (*MA*) est celui permettant d'obtenir les meilleures caractéristiques mécaniques de composite PP / fibres issues du bois. Cet agent est donc l'un des plus utilisés. Néanmoins, afin d'obtenir des composites dont les performances sont en hausses, un moyen plus efficace de compatibiliser les différentes phases est toujours à l'étude. Comme par exemple, Bourmaud *et al.* [27] qui ont exploré l'utilisation de protéines naturelles sécrétées par les moules (le byssus).

Le *PP-g-MA* joue le rôle de pont (action schématisée sur la figure 1.5.3) entre les fibres naturelles et les chaînes de PP par liaison chimique entre les groupes hydroxyles (*OH*) de la fibre de cellulose et les groupes *MA* de l'agent et par enchevêtrement avec les chaînes de PP [14]. Ce travail a été complété plus récemment par une étude de Franco-Marquèz *et al.* [46] qui soulignent que l'efficacité de l'agent de couplage est liée à sa masse molaire et à son nombre de radicaux libres.

En effet, tous les groupes *OH* de la fibre de cellulose ne peuvent pas participer à cette liaison. Certains d'entre eux servent de liaison avec les autres composés (lignine, hémicellulose) pour maintenir un faisceau de fibres liées. D'autres peuvent également créer une liaison avec les molécules d'eau et sont responsables de la reprise d'humidité de ces composites [33]. C'est pour cette raison que la fibre végétale subit un traitement avant l'incorporation dans le composite.

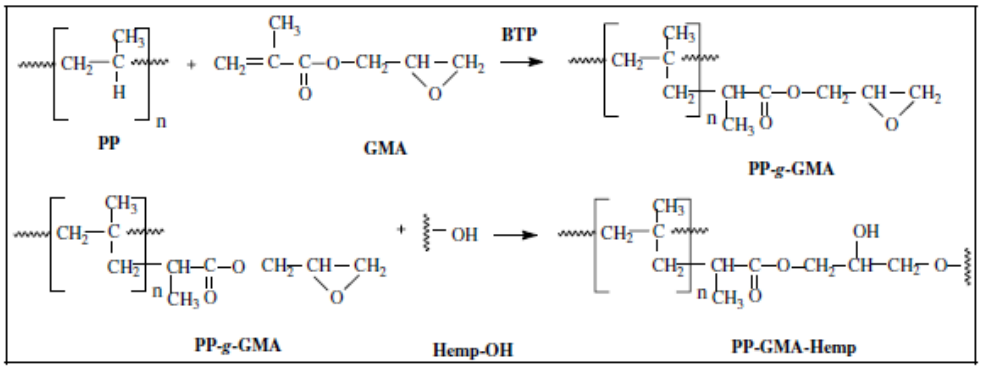


Figure 1.5.3 – Schématisation des liaisons entre les fibres de chanvre et le PP-g-MA[102]

Les propriétés du composite dépendront de la longueur et du rapport de forme de la fibre ($R = {}^{L}/\varnothing_{moyen}$), or le diamètre moyen des biofibres est relativement important, en effet les fibres sont maintenues en faisceau par les composés amorphes de la fibre [14]. Dans leur review, George *et al.* [48] regroupent les modifications faites aux fibres en deux catégories :

les modifications physiques apportées aux fibres ont pour objectifs de modifier l'énergie de surface augmentant la mouillabilité fibres/matrice et/ou de favoriser l'imbrication mécanique entre les fibres et la matrice [48]. Plusieurs techniques peuvent être employées, par exemple, un battage mécanique permet une fibrillation externe qui entraîne une augmentation de la surface de contact. Ce battage peut être couplé ou remplacé par un traitement par décharge électrique de Plasma ou de Coroda [106], augmentant la mouillabilité.

les modifications chimiques de la fibre ou de la matrice consistent à en modifier la surface afin de créer des liaisons chimiques entre fibres et matrice. Un revêtement spécifique peut être ajouté à la fibre, ces couches jouent le rôle d'agent de couplage (ponts) avec la matrice. Parmi les différents traitements possibles, on peut citer les plus communs : le dépôt d'une couche de Silane, de Isocyanate, ou l'imprégnation par un polymère compatible. L'ajout dans le composite d'un agent greffé à la matrice ou aux fibres (voir figure 1.5.3), ou encore un traitement en milieu basique (destruction des composés amorphes ...) sont d'autres alternatives. Ces modifications ont deux fonctions, réagir avec les groupes OH de la fibre et s'enchevêtrer avec les chaînes du polymère [48]. L'objectif d'un traitement en milieu basique est donc de supprimer les composés amorphes (principalement lignines et hémicelluloses) pour libérer les groupes OH de la cellulose et diminuer le diamètre des renforts (diminution du faisceau de fibres) provoquant une augmentation de l'indice de cristallinité [14] (figure 1.5.4) et de la surface spécifique.

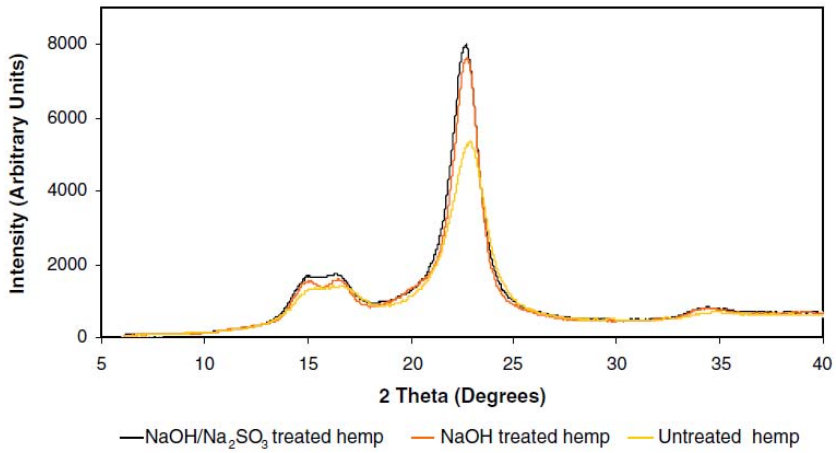


Figure 1.5.4 – Diffractogramme des R-X [14]

Ces traitements ont donc pour objectif d'améliorer les propriétés des composites, même si le comportement des composites à renforts végétaux fera l'objet d'un développement plus complet dans une autre section (1.4 et 3.2), ce paragraphe donne une idée de l'effet de ces traitements sur le comportement de composites. BECKERMANN et PICKERING [14] ont analysé l'influence de la teneur en *PP-g-MA* et du traitement des fibres sur les propriétés de composites à base PP renforcés par 40% en masse de fibres de chanvre. Il semblerait que le "meilleur composite possible" soit obtenu par une combinaison des deux techniques citées ci-dessus (voir figure 1.5.5).

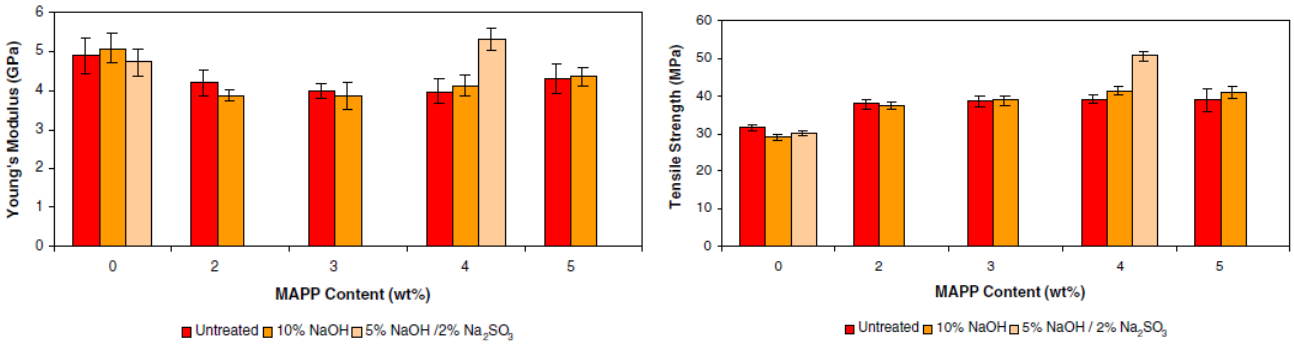
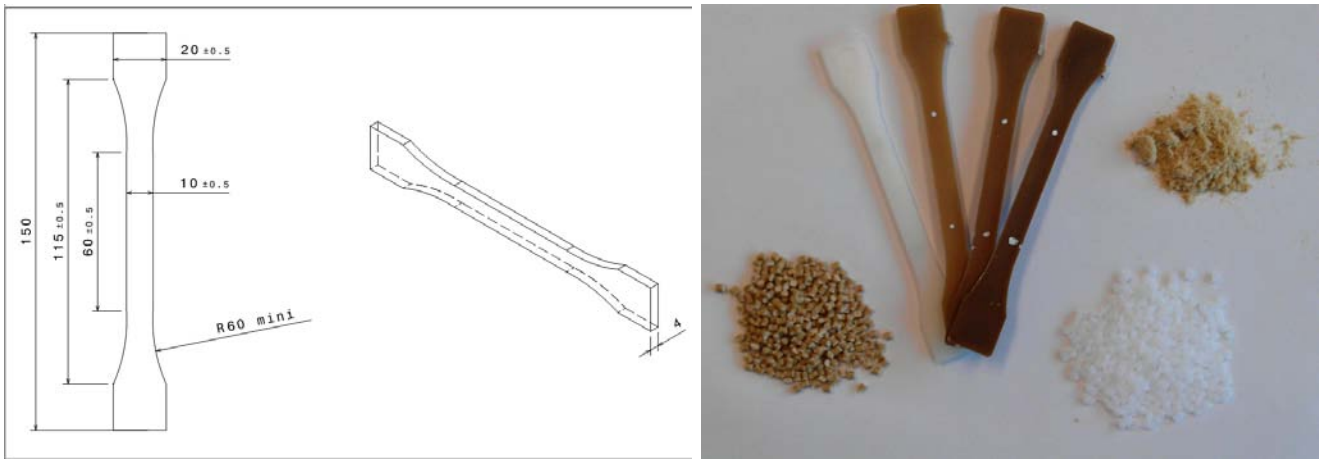


FIGURE 1.5.5 – Influence des traitements sur les propriétés de composite PP/40%w, d'après BECKERMANN et PICKERING[14]

Sur le graphique figure 1.5.5, la teneur en agent de couplage n'a pas d'influence sur les propriétés du composite renforcé par des fibres non traitées. Les auteurs expliquent ce phénomène par la disponibilité des groupes hydroxyles *OH* de la fibre. En d'autres termes, l'ajout de 2% de *PP-g-MA* est suffisant pour saturer toutes les liaisons possibles. Le traitement préalable de la fibre permet alors de libérer certains groupes par destruction des composés amorphes et donc de favoriser l'adhésion [14] et ainsi améliorer les propriétés finales des composites.

1.6 Description des composites de l'étude

La littérature (section 1.3) met en évidence l'existence de nombreuses fibres naturelles d'origines différentes, or la valorisation des ressources de proximité est une préoccupation grandissante, les fibres étudiées dans le cadre de cette thèse ont été choisies de telle sorte à être disponibles en Lorraine : le CHANVRE. Cependant, au commencement, le pôle fibres supportait un projet de mise en place d'une structure, les Chanvriers de l'Est, ayant pour but final la transformation des fibres de chanvre pour l'industrie, mais la structure n'était que à ces balbutiements et ne pouvait pas nous fournir en chanvre. Le chanvre utilisé provient donc d'un centre de recherche basé à Poitiers.



(a) Dimension des éprouvettes de caractérisation injectées (b) Photographie des coumpounds et des éprouvettes injectées

FIGURE 1.6.1 – Composites élaborés pour notre étude

La matrice de ces composites est un polypropylène, polymère de grande consommation dont la température de mise en forme ($< 200\,°C$) permet l'utilisation de fibres d'origine végétale.

De plus, les fibres de chanvre ont vocation première de remplacer les fibres de verre dont les principales applications industrielles concernent les composites à fibres courtes. Ce travail de thèse s'intéressera à l'étude d'un composite à matrice PP renforcé par des fibres courtes de chanvre.

Des matériaux composites à matrice polypropylène renforcée par des fibres courtes de chanvre ont été élaborés par le centre de recherche Valagro à Poitiers. Au commencement de ce projet, les matériaux commercialement disponibles étaient constitués d'un copolymère à block polypropylène SABIC PP313MNK40 de grade d'injection, avec un indice de fluidité à chaud de 90 g/10min mesuré selon la norme ISO1133, renforcé par des fibres courtes de longueur moyenne 250 μm et de rapport d'aspect ($R = L/\varnothing$) moyen de 8. La longueur maximale des fibres est de l'ordre du millimètre.

Les composites nécessaires à cette étude ont été élaborés par compoundage par extrusion/granulation sur une extrudeuse bi-vis corotative Clextral BC21 d'une puissance moteur 9 kW, la longueur du fourreau est de 600mm soit un rapport L/d de 24. Quatre formulations ont été étudiées et seront désignées, dans la suite du manuscrit, PPC0 pour la matrice vierge et PPC5, PPC10 et PPC20 pour les composites renforcés par 5%, 10%, 20% en masse de fibres de chanvre respectivement.

Les éprouvettes nécessaires à notre étude ont été réalisées par moulage par injection sur une presse ARBURG modèle Allrounder 1000-420C-2500. Les paramètres d'injection sont fournis dans le tableau 5.1 en annexe A. Les dimensions de ces éprouvettes sont indiquées sur la figure 1.6.1. L'indice de fluidité est relativement élevée dans un soucis de mise en forme, en effet

durant le process de mise en forme l'enrobage des fibres doit être suffisant afin d'obtenir une interface fibres/matrice convenable.

1.7 Problématique

A l'heure actuelle, l'utilisation des composites à matrice polymère renforcée de fibres naturelles semble être limitée aux applications de faibles performances mécaniques (tableau de bord, rétroviseurs, matériaux de construction, ...). Les chercheurs s'efforcent alors de valider leur potentialité à remplacer les composites à fibres synthétiques pour des applications de plus hautes performances, en étudiant précisément leur comportement mécanique, leur endommagement et leur mode de rupture ainsi que leur vieillissement. Par conséquent, les études sur les composites à fibres naturelles s'articulent autour de trois champs d'investigation principaux :

- la mise en forme, de nombreuses études s'intéressent à l'impact de la mise en forme afin d'élaborer le composite optimal, en travaillant non-seulement sur l'adhésion fibres / matrice mais également sur l'amélioration de la « formabilité ».
- les problèmes liés à l'absorption d'humidité et au vieillissement de ce type de composites et de leur impact sur leur comportement mécanique.
- le comportement thermomécanique, souvent limité au comportement quasi-statique et à la détermination de propriétés supposées élastiques. Ces études sont également accompagnées par des modèles semi-empiriques, de type Halpin–Tsai [44, 45, 15] de plus en plus performant, afin de prédire les propriétés élastiques des composites en tenant compte de facteurs d'efficacité et d'orientation.

Cependant, le comportement des composites à matrice polymère renforcée de fibres courtes peut être fortement non-linéraire. La description de leur comportement mécanique, à partir de propriétés élastiques, a donc ses limites.

Bien que la formulation et la mise en forme n'aient pas été abordées dans cette étude basée sur des composites de nuances « industrielles », une étude précise de la microstructure complexe, qui en résulte, a été entreprise de façon à vérifier l'absence de porosité et d'agrégats, et d'évaluer l'orientation, la répartition des fibres et enfin à une échelle plus fine la forme, l'état de surface et éventuellement la tortuosité des fibres.

Ainsi cette thèse se propose de développer une approche prédictive du comportement mécanique non-linéaire des composites tenant compte de l'orientation, de la répartition spatiale des fibres ainsi que de leur facteur géométrique $(L, \varnothing)$ et de l'endommagement.

Cette modélisation s'appuiera sur une démarche expérimentale de caractérisation du comportement mécanique et de l'endommagement de la matrice seule et de composites à matrice thermoplastique (PP) renforcée de fibres courtes de chanvre élaborés à différent taux de renforts. La température et le taux d'humidité résiduelle seront soigneusement contrôlés afin de

s'assurer que ses paramètres n'interviendront pas dans les mécanismes d'endommagement mis en évidence. L'étude de l'endommagement des matériaux composites utilise de nombreuses techniques différentes (émission acoustique, microscopie, ultrasons, ...). Ces études démontrent que l'amorçage de l'endommagement est localisé à l'interface fibres/matrice (décohésion, déchaussement, ...) et/ou dans la matrice (par fissuration ou cavitation, ...). L'endommagement des matériaux étudiés fera donc l'objet d'études approfondies en vue de sa modélisation. Les méthodes utilisées (MEB, tomographie, thermographie infrarouge) permettront de caractériser les mécanismes d'endommagement des composites PP/chanvre. De plus, la propagation de l'endommagement sera également évaluée.

Le comportement mécanique des composites sera prédit via un modèle éléments-finis reproduisant la microstructure complexe des composites à fibres courtes, dans lequel les lois constitutives du comportement de la matrice prendront en compte l'endommagement révélé expérimentalement et seront implémentées dans Abaqus® via une routine Fortran.

Chapitre 2

Caractérisation de la microstructure

2.1 Introduction

Les propriétés des composites à fibres courtes peuvent dépendre fortement du procédé de mise en forme (orientation préférentielle des fibres, distribution spatiale...). La méconnaissance de ce procédé (injection...) peut engendrer des pièces dont la tenue mécanique est médiocre (agrégations de fibres, porosités, dégradation des fibres naturelles...).

Les pièces obtenues par injection de thermoplastiques renforcés par des fibres courtes présentent généralement une structure cœur-peau avec de nombreuses couches correspondant à des orientations différentes. Ainsi trois couches sont classiquement admises, les zones directement en contact avec les parois du moule qui subissent un refroidissement rapide engendrant une orientation des fibres qui peut être considérée comme aléatoire, les couches en peau dans lesquelles les fibres s'orientent suivant la direction d'écoulement et les couches à cœur avec une orientation perpendiculaire à la direction d'écoulement [111]. La microstructure après injection des éprouvettes de polypropylène (PP) chargé de fibres de chanvre courtes ($<$ 1mm) a été caractérisée par des analyses d'images obtenues par tomographie aux rayons X. En effet, parmi les différentes méthodes utilisables (microscopie optique, électronique, ...), la tomographie aux rayons X donne accès à plus d'informations *ex-situ* en un seul essai et nécessite le moins de préparation des échantillons.

Ce chapitre débute par une brève présentation de la théorie de l'écoulement et des outils mathématiques disponibles pour décrire l'orientation de fibres courtes dans un thermoplastique. Il se poursuit par une présentation du principe de la tomographie aux rayons X. Ce chapitre se conclut par la description de la microstructure des composites PP/Chanvre que nous étudions.

2.2 Influence de l'écoulement sur l'orientation des fibres

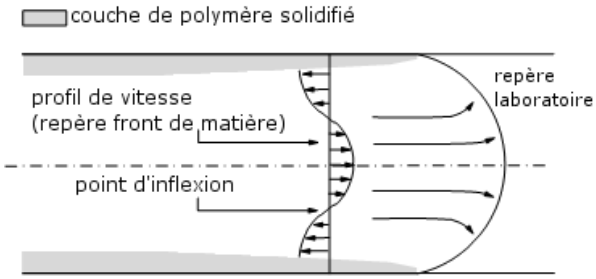
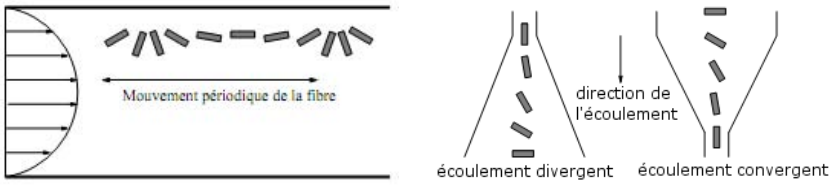


FIGURE 2.2.1 – Ecoulement suivant l'effet fontaine, d'après REDJEB[107]

En injection de thermoplastiques renforcés, les contraintes lors de l'écoulement et le remplissage du moule ont pour effet d'orienter préférentiellement les fibres. Ainsi certains auteurs s'intéressent à la prise en compte de ces contraintes pour prédire numériquement l'orientation des fibres avant injection, on peut citer pour exemple les travaux de DRAY BENSAHKOUN [40] et de REDJEB [107] qui ont prédit numériquement les tenseurs d'orientation des fibres de pièces complexes via le logiciel Moldflow®.

L'écoulement lors du remplissage se fait sous l'effet fontaine (voir figure 2.2.1) et la compétition entre les deux types d'écoulement (cisaillement et élongation) va tendre à orienter les fibres. Une fibre dans un écoulement où réside principalement dans le fluide des contraintes de cisaillement va être animée d'un mouvement périodique sans orientation stable. Lorsque le fluide est, au contraire, soumis à un écoulement dont les contraintes tendent à étirer le fluide (élongationnel), les fibres s'orientent suivant la direction d'étirement du fluide (voir figure 2.2.2), les pièces injectées peuvent donc présenter une structure cœur-peau complexe [107].



(a) Cisaillement simple (b) Ecoulement élongationnel

FIGURE 2.2.2 – Orientation des fibres suivant le type d'écoulement,d'après REDJEB[107]

Afin d'illustrer cette structure complexe, les auteurs utilisent souvent l'exemple du disque injecté par son centre. KARPOV et KAUFMAN [68] furent les premiers à s'intéresser à ces structures, et ont mis en évidence une structure à couches symétriques par rapport au plan médian du disque. Une couche notée A proche des parois où les fibres ne possèdent aucune orientation préférentielle, une couche de peau où les contraintes de cisaillement sont importantes et orientent les fibres selon la direction d'écoulement, une couche à cœur D où les fibres s'orientent

perpendiculairement à la direction d'écoulement consécutivement aux contraintes d'élongation prépondérantes. Selon la finesse de l'analyse, des couches de transitions C avec une orientation aléatoire peuvent être observées. La figure 2.2.3 illustre cet exemple. L'épaisseur de ces couches dépend fortement des paramètres du procédé d'injection et de la viscosité du fondu, il est alors possible d'obtenir des pièces dont les fibres sont orientées selon les attentes des applications visées.

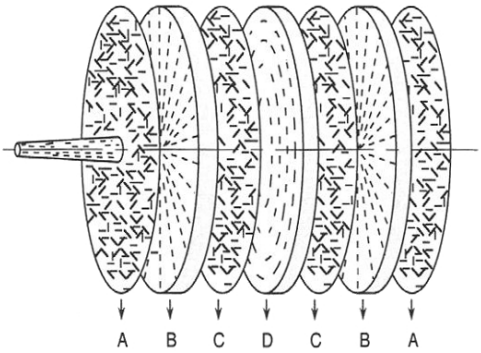


FIGURE 2.2.3 – Orientation des renforts dans un disque injecté par le centre. (Woebcken, 1971)

2.3 Description mathématiques de l'orientation

L'orientation des fibres peut être exprimée, de façon équivalente, suivant les coordonnées cartésiennes d'un vecteur unitaire représentant la direction principale de la fibre (axe principal d'inertie) ou à l'aide de deux angles (θ, ϕ), comme le montre la figure 2.3.1.

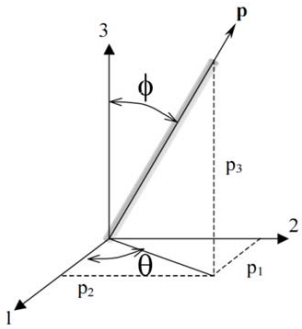


FIGURE 2.3.1 – Orientation des fibres

L'état d'orientation peut alors être analysé suivant plusieurs méthodes donnant des niveaux d'informations différents :

- coefficient d'orientation d'HERMANS
- tenseurs d'orientation du 2ème ou du 4ème ordre
- fonction de distribution d'orientation $\psi(\phi, \theta)$

2.3.1 Coefficient d'orientation d'Hermans

Ce coefficient a été dans un premier temps utilisé pour décrire, de façon qualitative, l'orientation moyenne des chaînes de macromolécules dans les polymères. Par la suite son utilisation a été étendue à la description de l'orientation moyenne des renforts dans les composites. Ainsi Templeton [115] a élaboré un modèle permettant de prédire la contrainte ultime de composite en tenant compte de l'orientation moyenne des fibres via la définition d'un coefficient d'orientation basé sur le coefficient d'Hermans [56]. Cette technique impose le choix d'un axe de référence, l'orientation des macromolécules est alors définie par un angle par rapport à cet axe (voir figure 2.3.2).

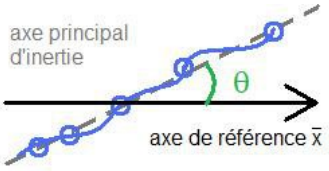


Figure 2.3.2 – Schématisation du facteur d'Hermans

D'après la littérature sur les composites à fibres naturelles [20], il est possible d'avoir une idée sur l'existence d'une orientation privilégiée via la détermination du facteur d'orientation d'Hermans, celui-ci est alors exprimé par la formule 2. 1 :

$$f_x = \frac{3}{2} < \cos^2 \phi_x > -\frac{1}{2} \tag{2. 1}$$

où ϕ_x est l'angle entre la fibre et l'axe de référence, noté ici $\overline{x}$. Ce coefficient peut varier de $-\frac{1}{2}$ à 1 avec trois valeurs remarquables recensées dans le tableau 2.1.

TABLEAU 2.1 – Valeurs remarquables du facteur d'Hermans

f_x	**signification**
1	les fibres sont orientées parallèlement à l'axe de référence
0	pour une distribution aléatoire dans l'espace ($< \cos^2 \phi_x >= \frac{1}{3}$ [40])
$-\frac{1}{2}$	les fibres sont orientées perpendiculairement à l'axe de référence

Afin d'obtenir le plus d'informations possibles, cette étude doit être conduite suivant deux axes de référence différents : suivant la direction d'écoulement notée $\overline{x}$ et suivant l'axe orthogonal au plan d'écoulement noté $\overline{z}$. Les informations fournies par cette méthode permettent

uniquement de statuer qualitativement sur l'existence ou non d'un axe d'orientation préférentiel mais ne permettent pas de reproduire la microstructure des composites avec précision.

Il est possible de fournir des informations sur l'état d'orientation des fibres via des outils mathématiques plus précis, les tenseurs d'orientation (2ème et 4ème ordre) et les fonctions de distribution d'orientation. Ces méthodes sont largement utilisées dans la littérature pour décrire l'état d'orientation dans les modélisations du comportement mécanique [38, 39, 126]. Ainsi, les tenseurs d'orientation du 2ème ordre couplés aux lois de la mécanique des milieux continues parviennent à reproduira le comportement complexe des composites à matrice thermoplastique renforcée de fibres courtes [6].

2.3.2 Fonction de distribution de l'orientation

Dans un thermoplastique chargé de fibres, les particules peuvent s'orienter dans différentes directions. Prager [103] fut l'un des premiers à s'intéresser à la statistique des orientations de particules en définissant une fonction de distribution d'orientation. En effet, une description complète de l'état d'orientation des fibres dans un composite nécessite l'utilisation d'une fonction de distribution d'orientation $\psi\left(\overline{P}, t\right)$, ou de manière équivalente $\psi\left(\theta, \phi, t\right)$, qui exprime la probabilité d'obtenir une fibre ayant une certaine orientation $\overline{P}$ au temps t. Ainsi la probabilité P de trouver une fibre entre les angles $(\theta, \theta + d\theta)$ et $(\phi, \phi + d\phi)$ est donné par l'équation :

$$P = \int_{\theta}^{\theta+d\theta} \int_{\phi}^{\phi+d\phi} \psi\left(\theta, \phi\right) \sin\left(\theta\right) d\theta d\phi \tag{2. 2}$$

2.3.3 Tenseurs d'orientation d'ordre 2 ou 4

L'outil mathématique présenté dans la section précédente (paragraphe 2.3.2) offre une quantité d'information maximale mais cette distribution $\psi\left(\phi, \theta\right)$ n'est pas souvent explicitement connue et difficilement prédictible. De plus, le sens de cette fonction n'est pas toujours explicite et est souvent intégrée dans un modèle, par exemple dans le modèle de Langevin pour décrire la variation d'entropie dans les caoutchoucs. Nous l'utiliserons pour reproduire numériquement l'orientation des fibres dans les composites PP/Chanvre étudiés. Ainsi Hand [53] définit un tenseur d'orientation, noté $\overline{\overline{a_2}}$, pour décrire la microstructure d'un fluide chargé. Ce tenseur est défini comme la moyenne spatiale du double produit tensoriel de $\overline{p}$ (vecteur directeur de la fibre) :

$$\overline{\overline{a_2}} = \int \overline{p} \otimes \overline{p} \cdot \psi\left(\overline{p}\right) d\overline{p} \tag{2. 3}$$

Dans une base orthonormée $(\overline{e}_1;\overline{e}_2;\overline{e}_3)$, a_{11}, a_{22} et a_{33} correspondent à la probabilité qu'une fibre soit alignée suivant $\overline{e}_1$, $\overline{e}_2$ et $\overline{e}_3$ respectivement. En d'autres termes, si la composante a_{11} est égale à 1 alors toutes les fibres sont orientées suivant la direction $\overline{e}_1$. Par ailleurs, si elle prend la valeur 0 alors toutes les fibres sont perpendiculaires à $\overline{e}_1$, c'est à dire qu'elles appartiennent au plan $(\overline{e}_2\,;\overline{e}_3)$. De plus ces composantes diagonales ne sont pas indépendantes, en effet elles représentent une probabilité alors la somme $(a_{11}+a_{22}+a_{33})$ doit être égale à 1. Les composantes $a_{ij} \quad avec \quad i \neq j$ quantifient la dissymétrie de la distribution d'orientation par rapport aux directions $\overline{e}_i$ ou $\overline{e}_j$. La figure 2.3.3 illustre les valeurs prises par les composantes du tenseur $\overline{\overline{a_2}}$ pour différentes orientations dans le cas tridimensionnel.

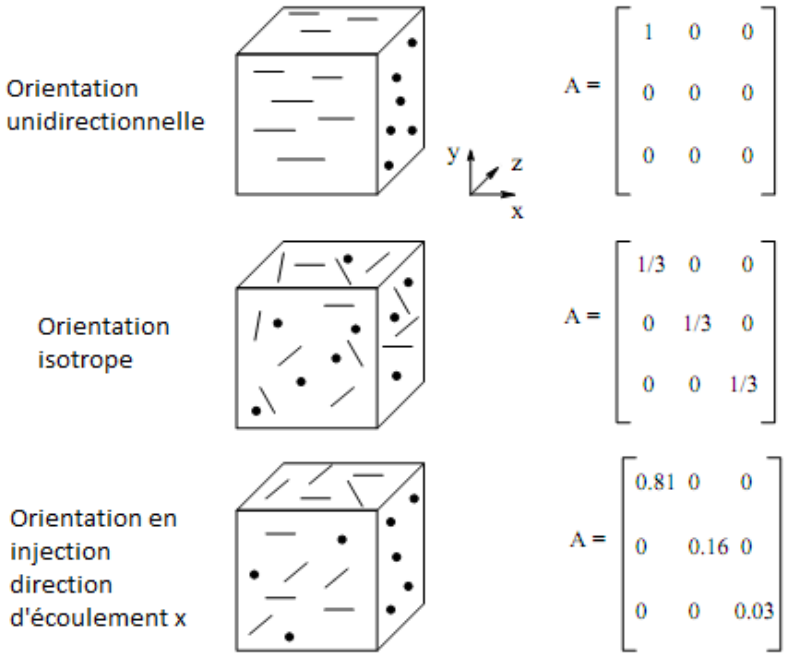


FIGURE 2.3.3 – Exemple de tenseur d'orientation $\overline{\overline{a_2}}$ dans un cas tridimensionnel

Soit une fibre d'orientation $\overline{p} = \begin{pmatrix} \sin\phi\cos\theta \\ \sin\phi\sin\theta \\ \cos\phi \end{pmatrix}$, le tenseur d'orientation s'écrit alors

$$\overline{\overline{a_2}} = \begin{pmatrix} \sin^2\phi\cos^2\theta & \sin^2\phi\cos\theta\sin\theta & \sin\phi\cos\theta\cos\phi \\ \sin^2\phi\sin\theta\cos\theta & \sin^2\phi\sin^2\theta & \sin\phi\sin\theta\cos\phi \\ \sin\phi\cos\theta\cos\phi & \sin\phi\sin\theta\cos\phi & \cos^2\phi \end{pmatrix} \tag{2. 4}$$

Connaissant les vecteurs directeurs de toutes les fibres, la détermination du tenseur d'orientation global correspond uniquement à une opération de moyenne sur tout le volume de l'échantillon. Cependant le passage de la fonction de distribution d'orientation au tenseur d'orientation

d'ordre 2 fait perdre de l'information. Pour compléter cette description, certains auteurs (par exemple ALTAN *et al.* [3]) utilisent un tenseur d'ordre 4 définit comme suit :

$$\widetilde{a_4} = \int \overline{p} \otimes \overline{p} \otimes \overline{p} \otimes \overline{p} \cdot \psi\left(\overline{p}\right) d\overline{p} \tag{2. 5}$$

Ce tenseur est également symétrique (majeure et mineure) et unitaire, seules 14 composantes sont indépendantes. Il est très difficile de prédire ce tenseur, les auteurs utilisent donc des relations de fermeture pour trouver une approximation en fonction du tenseur d'ordre 2 (exemple approximation quadratique : $a_{ijkl} = a_{ij} \cdot a_{kl}$) [107].

2.4 La tomographie aux rayons X appliquée à la caractérisation de la microstructure

2.4.1 Principe de la tomographie aux rayons X

Cette section est destinée à expliquer le principe de la tomographie aux rayons X basée sur l'absorption [82] et à présenter le matériel utilisé dans le cadre de ce travail.

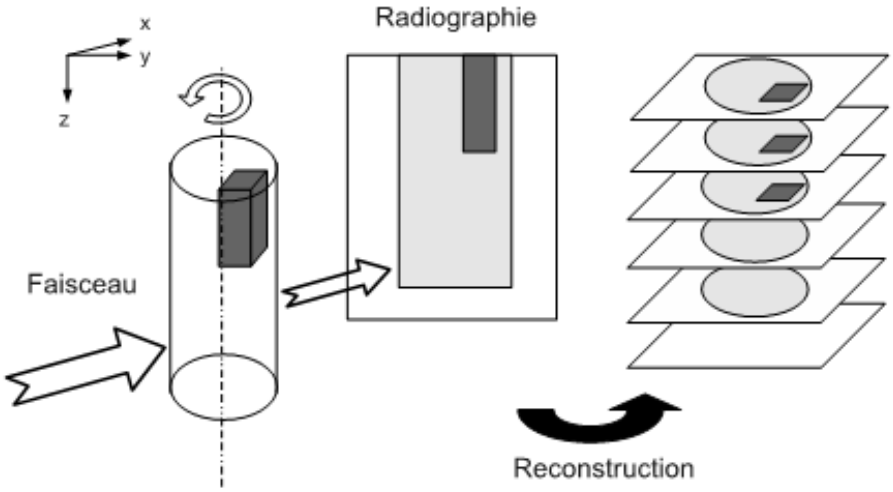
La tomographie aux rayons X permet d'obtenir une image tridimensionnelle de l'échantillon à analyser. Cet échantillon est placé dans un faisceau de rayons X d'intensité I_0, l'intensité I est transmise, la quantité de photons X transmis dépend du matériau (coefficient d'atténuation μ) et de la longueur d'onde du faisceau émis, suivant la loi de Beer - Lambert (équation 2. 6) :

$$I = I_o \exp\left(-\mu \cdot x\right) \tag{2. 6}$$

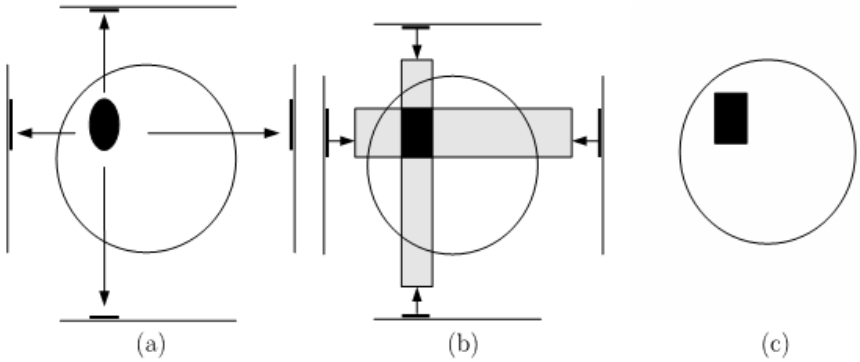
La radiographie obtenue est donc une projection des informations d'atténuation le long du trajet des photons X. Il est alors nécessaire de réaliser une série de plusieurs radiographies afin de reconstruire le volume selon un algorithme de rétro-projection. Les fichiers obtenus sont des coupes de l'objet tridimensionnel suivant des plans d'étude. Les schémas de la figure 2.4.1 résument le principe énoncé ci-dessus.

La grande variété de tomographes disponibles et de matériaux testés rend difficile une description précise des performances de la tomographie aux rayons X [116]. En effet, la résolution spatiale dépend, non seulement de l'objet testé (taille, coefficient d'atténuation, ...), mais aussi du tomographe (puissance du faisceau, type de détecteur, ...). En règle générale, la résolution spatiale est donnée par le rapport L/n, où L est la taille de l'objet et $n \times n \times n$ est le nombre de voxels de l'élément volumique. Ainsi, le type de tomographe, utilisé par la suite, possède une résolution moyenne de l'ordre de $1/2000^{ème}$ de la taille du spécimen. Le bruit vient également perturber les mesures. Une partie de ce bruit est irréductible. Il provient de la double

nature, corps /onde, du faisceau incident. Il devient alors difficile de segmenter les images composées de phases de densité proche. Les masses volumiques proches du PP, $900\,\mathrm{kg}\cdot\mathrm{m}^{-3}$, et du chanvre,$1500\,\mathrm{kg}\cdot\mathrm{m}^{-3}$, engendrent des images avec des gradients de composition. Ces gradients rendent difficile la détection précise des bords des fibres. Une analyse d'image adéquate (détection des bords, filtre, binarisation, ...) pallie, en partie, cette limitation et rend possible la détection correcte des fibres de chanvre dans une matrice PP.



(a) Acquisition des projections



(b) Principe de la rétro-projection : (a) projection, (b) rétro-projection, (c) image reconstruite

FIGURE 2.4.1 – Principe de la tomographie à rayons X, d'après CARMONA[29]

2.4.2 Caractérisation de la microstructure

Deux niveaux de microstructure peuvent être décrits pour les composites PP/chanvre selon l'échelle considérée. A l'échelle du thermoplastique, la microstructure du PP peut être décrite, par des techniques de diffraction aux rayons X, en terme de phases cristallines (α et/ou β), d'orientation des chaînes macromoléculaires et de taille des sphérolites. A l'échelle du composite : la microstructure du composite est alors décrite en terme d'orientation et de répartition des fibres de chanvre et de fraction volumique.

Le polymorphisme du PP brièvement abordé au chapitre 1 section 1.2.3 suggère un comportement mécanique différent du PP suivant le pourcentage de phase α et β. Ainsi Papageorgiou *et al.* [93] ont observé le comportement en traction uniaxiale d'un polypropylène composé à 100% de structure cristalline α et d'un PP présentant les deux structures α et β. Leur étude met en évidence des propriétés significativement différentes après le pic d'écoulement (une contrainte et une déformation à rupture plus importante pour le PP contenant une fraction de phase β). Ces différences s'expliquent par le comportement des phases α et β. En effet, la phase α du PP présente une plus faible déformabilité et une plus grande rigidité apparente comparée à la phase β qui elle est plus ductile, de même la contrainte et la déformation à rupture y sont plus élevées [117, 58]. Cependant, même si les fibres naturelles sont considérées comme le siège de la nucléation des sphérolites de PP dans les composites, aucune preuve de l'action β-nucléant des fibres naturelles n'a pu être trouvée [129, 102]. La caractérisation de la microstructure de nos échantillons se limitera donc à la description de la microstructure à l'échelle du composite (répartition et orientation des fibres de chanvre) et permettra ainsi de conclure sur la capacité éventuelle de nos fibres à agir comme renforts dans nos composites et de statuer sur l'anisotropie induite par l'ajout de fibres.

Les acquisitions concernant notre étude ont été réalisées sur un tomographe Nanotom Phoenix X-ray (figure 2.4.2) disponible à l'institut Jean Lamour (*IJL*) de l'Université de Lorraine basé à Nancy.

Figure 2.4.2 – Photographie du tomographe aux rayons X

Les acquisitions se composent de 1000 projections sur 360°. Les principaux paramètres d'acquisition sont résumés dans le tableau 2.2.

TABLEAU 2.2 – Réglages du tomographe aux rayons X

Puissance	$13,6\,W$
Taille du spot	$3\,\mu m$
Taille du Voxel	$6,25\,\mu m$

Ces 1000 projections permettent d'obtenir une représentation de nos composites en trois dimensions (illustration donnée en figure 2.4.3).

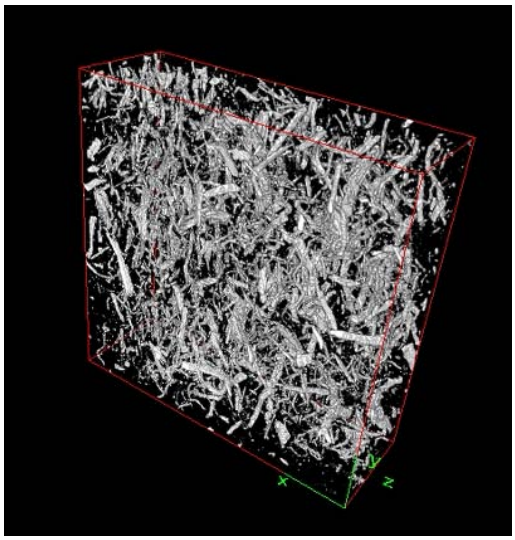


FIGURE 2.4.3 – Représentation du volume reconstruit pour un PPC5

Cependant cette représentation ne fournit pas de données quantitatives pour mettre en place la caractérisation prévue, un traitement de ce volume a alors été mis en place et chacune des fibres est alors enregistrée comme un nuage de voxels pour lequel son barycentre et ses axes principaux d'inertie peuvent être déterminés en faisant l'hypothèse que la densité de chaque voxel est identique. La figure 2.4.4 présente une coupe du volume obtenue après la détection de chaque fibre et leur enregistrement en nuage de voxels distinct.

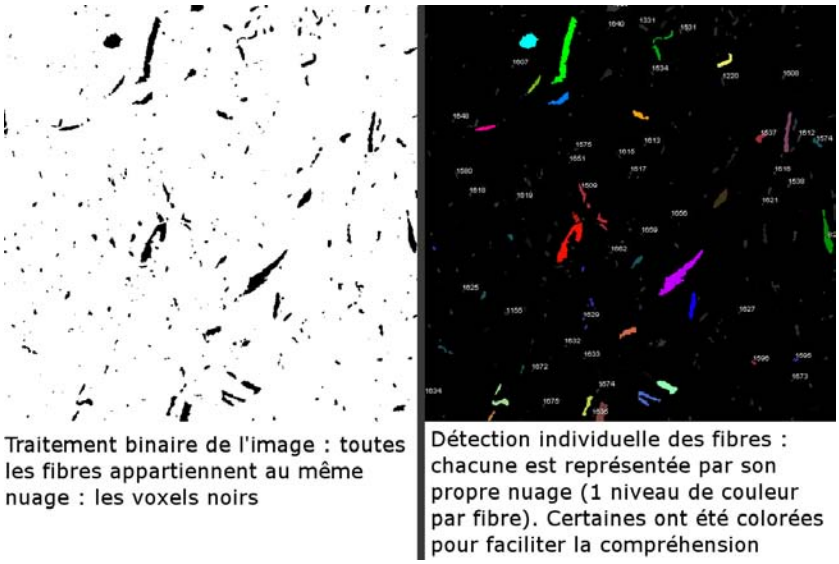


FIGURE 2.4.4 – Résultats de la détection d'objets et de l'enregistrement des fibres en nuage de voxels

2.5 Orientation des fibres dans les composites PP/Chanvre étudié

Parmi les trois niveaux de description décrits dans la section 2.3, c'est à dire par des scalaires, par des tenseurs et par des fonctions de répartition, seuls les deux derniers permettent d'obtenir les informations nécessaires pour statuer sur l'anisotropie et le potentiel renforçant des fibres. De plus, l'algorithme de génération automatique de microstructure de composites PP/chanvre développé dans la suite de ce travail, doit être alimenté de données statistiques or la détermination du coefficient d'HERMANS n'est pas suffisant, la suite de ce chapitre est consacrée à la discussion des résultats obtenus avec les deux autres méthodes.

2.5.1 Tenseurs d'orientation

La méthode de traitement des images issues d'observations en tomographie aux rayons X donne accès au vecteur directeur correspondant à l'axe principal d'inertie de chacune des fibres. L'orientation des fibres n'est plus ici représentée par une fonction de répartition continue mais revêt ici un caractère discret. En effet, l'orientation de chaque fibre du composite est connue. L'équation 2. 3 du tenseur global d'orientation prend la forme de l'équation 2. 7.

$$a_{ij} = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^{N} \sum_{j=1}^{N} p_i \cdot p_j \tag{2. 7}$$

Les équations 2. 8, 2. 9 et 2. 10 présentent les composantes diagonales, seules composantes qui peuvent être interprétées en terme d'orientation des fibres, pour les composites PPC5, PPC10 et PPC20 respectivement.

$$PPC5 \qquad a_{11} = 0,396 \; a_{22} = 0,411 \; et \; a_{33} = 0,193 \tag{2. 8}$$

$$PPC10 \qquad a_{11} = 0,397 \; a_{22} = 0,407 \; et \; a_{33} = 0,196 \tag{2. 9}$$

$$PPC20 \qquad a_{11} = 0,403 \; a_{22} = 0,401 \; et \; a_{33} = 0,197 \tag{2. 10}$$

Ces résultats permettent de mettre en évidence que les composantes a_{11} et a_{22} sont sensiblement égales indiquant une probabilité identique de trouver une fibre orientée suivant l'un de ces axes ($\overline{1}$ ou $\overline{2}$). De plus, la composante a_{33} est différente de 0 mais reste faible par rapport aux deux autres indiquant que peu de fibres s'orientent suivant l'axe $\overline{3}$ qui correspond à l'axe perpendiculaire au plan d'injection. Dans tous les composites PP/Chanvre étudiés, les fibres tendent à s'orienter majoritairement de façon orthotrope dans le plan d'injection.

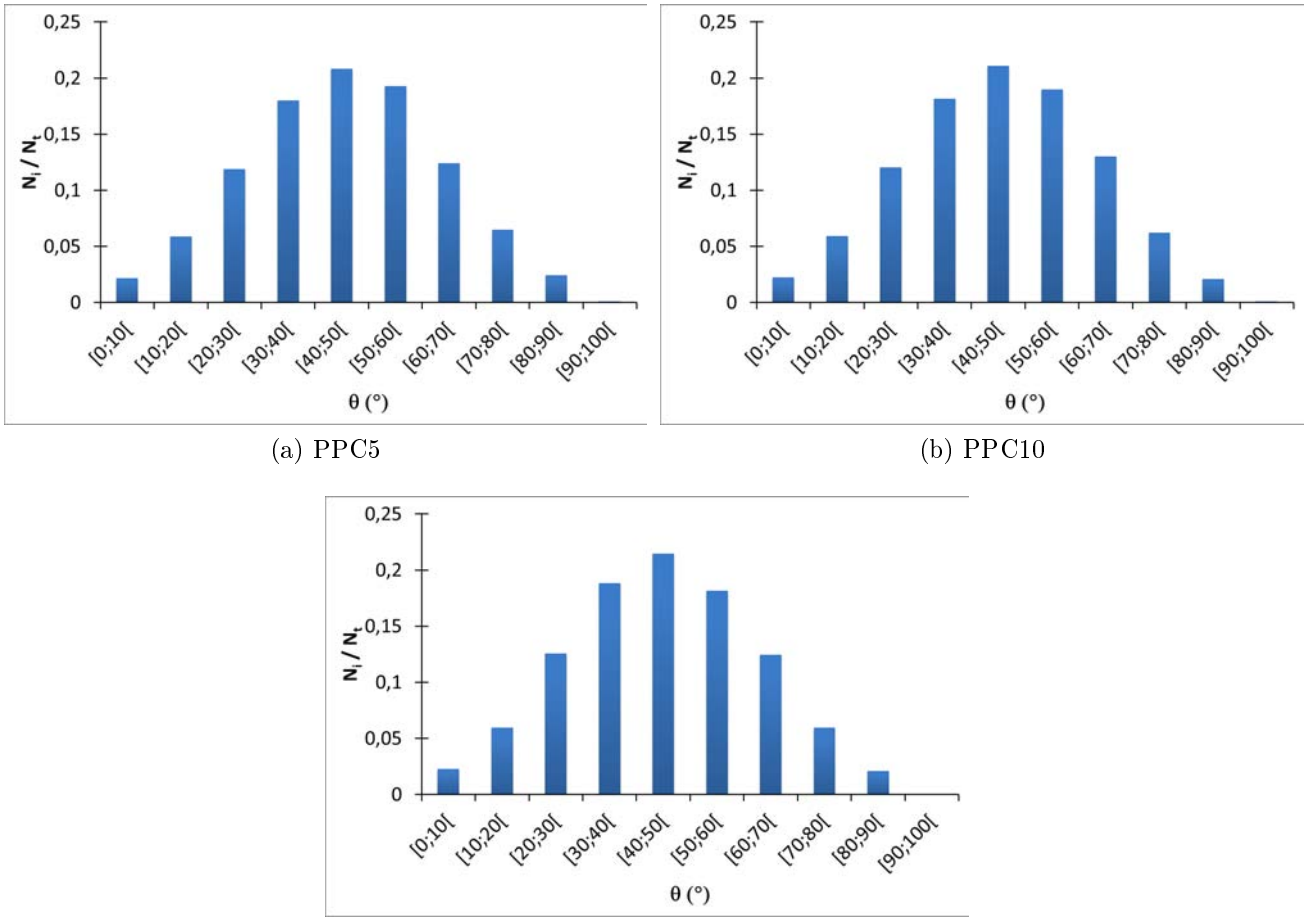
2.5.2 Fonctions de répartition d'orientation

Les informations données par la détermination des composantes du tenseur d'orientation sont précieuses mais ne donnent pas de précision sur l'angle moyen des fibres par rapport aux différents axes. Les fonctions de répartition des angles sont alors calculées.

Pour rappel, l'orientation des fibres est définie comme sur la figure 2.2.2 où l'axe $\overline{1}$ correspond à la direction de l'écoulement et l'axe $\overline{3}$ est orthogonal au plan d'injection. Pour décrire complètement toutes les orientations possibles la demi-sphère d'orientation est suffisante, c'est à dire $\theta \in [0, \pi[$ et $\phi \in [0, \pi[$.

L'analyse des angles définissant l'orientation des fibres a été conduite, dans un premier temps, sous l'hypothèse d'indépendance des angles θ et ϕ. La fonction de répartition de l'angle θ permet de décrire l'orientation des fibres dans le plan d'injection.

Un angle θ_{moyen} de 45° indiquerait que les axes $\overline{1}$ et $\overline{2}$, qui définissent le plan d'injection, sont équivalents et traduirait une orientation quasi-isotrope dans ce plan. Les résultats obtenus pour les composites PP/Chanvre analysés sont présentés sur la figure 2.5.1. Ces graphiques montrent une répartition centrée et symétrique par rapport à un angle $\theta = 45°$ confirmant les conclusions apportées par la détermination des tenseurs d'orientation, à savoir une répartition isotrope dans le plan d'injection.



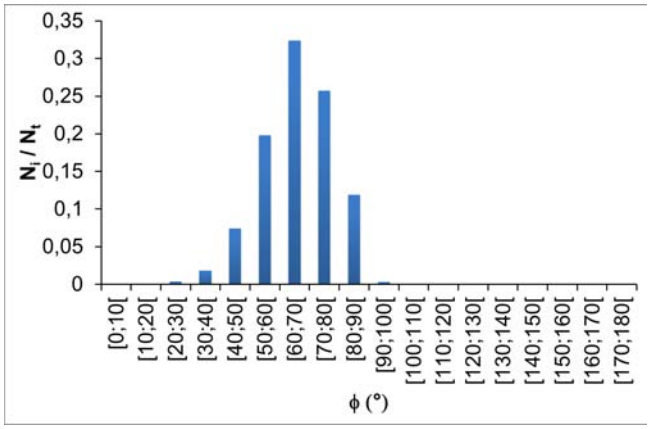
(a) PPC5

(b) PPC10

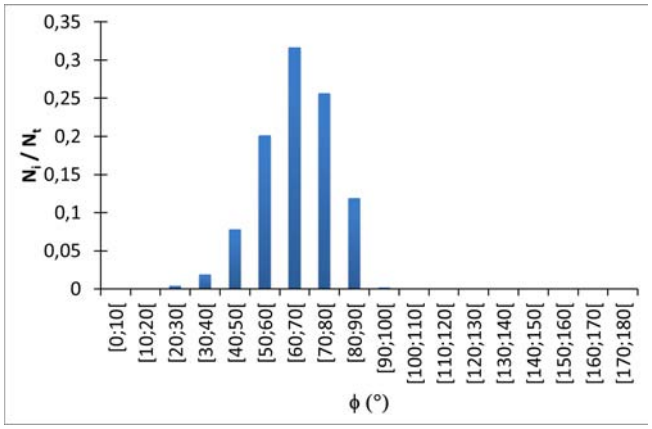
(c) PPC20

FIGURE 2.5.1 – Histogrammes de répartition d'orientation de l'angle θ

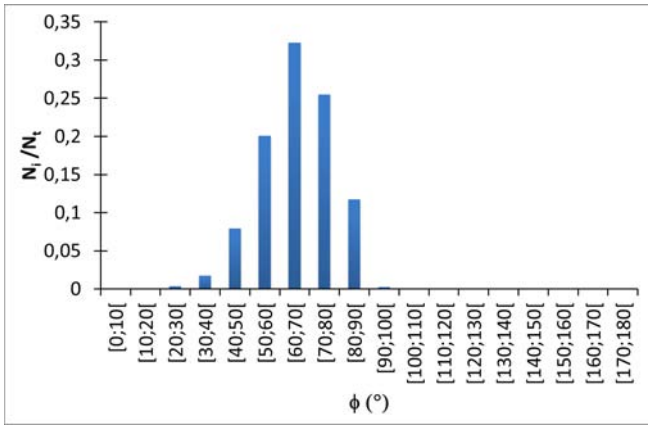
L'angle ϕ traduit l'inclinaison des fibres par rapport au plan d'injection, l'origine choisie est telle qu'un angle ϕ égale à 90° signifie que la fibre est contenue dans le plan d'injection. Les résultats pour cet angle sont présentés dans la figure 2.5.2. Ces histogrammes montrent que l'angle ϕ_{moyen} est de l'ordre de 75°, suivant la théorie sur l'injection des thermoplastiques chargés de fibres courtes [40, 107], celles-ci devraient s'orienter préférentiellement dans le plan d'injection. Mais ces études portent généralement sur des fibres plus longues, de l'ordre de 3mm à 6mm, qui n'ont pas la mobilité nécessaire pour s'orienter hors-plan alors que les fibres de chanvre présentes dans les composites PP/Chanvre de cette étude sont plus petites, leur longueur moyenne est de l'ordre de $250\mu m$. Leur mobilité dans le fondu est donc suffisante pour obtenir une orientation légèrement hors plan d'injection.



(a) PPC5



(b) PPC10



(c) PPC20

FIGURE 2.5.2 – Histogrammes de répartition d'orientation de angle ϕ

Les histogrammes des figures 2.5.1 et 2.5.2 considèrent que les deux angles sont indépendants, et approximent donc la fonction de distribution 3D ($\psi(\theta, \phi) \approx \psi(\theta) \cdot \psi(\phi)$). Il est possible de faire la même analyse en considérant le cas tridimensionnel. La demi-sphère d'orientation formée par le couple d'angle (θ, ϕ) est alors découpée en 324 classes d'orientation différentes, permettant le tracer de la fonction de distribution d'orientation 3D (voir figure 2.5.3). Cette étude confirme les conclusions apportées par l'étude en considérant les angles indépendants.

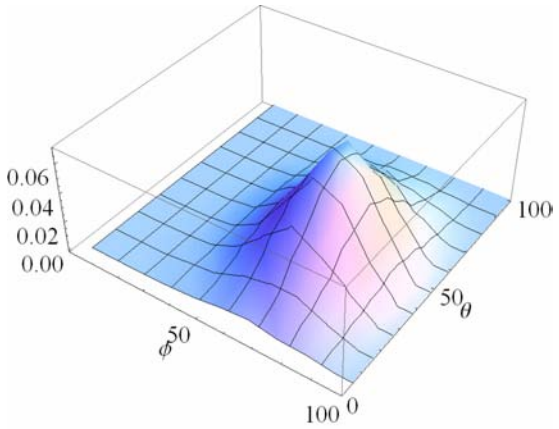


FIGURE 2.5.3 – Fonction de répartition d'orientation 3D pour le PPC5

Les trois compositions présentent une distribution d'orientation identique gouvernée par la cinématique du fondu lors de l'injection et de la fluidité de la matière. Les paramètres d'injection sont sensiblement les mêmes d'après les indications fournies par le fabricant (voir tableau 5.1 en annexe 151). De plus l'indice de fluidité à chaud mesuré par nos soins est semblable pour toutes les compositions (90, 87, 86 et 82 g/10min pour les compounds PPC0, PPC5, PPC10 et PPC20 respectivement).

2.6 Distribution spatiale dans nos composites

2.6.1 Théorie

KARNEZIS *et al.* [67] comparent plusieurs méthodes permettant de décrire l'état de distribution de renforts dans une matrice à partir de micrographies 2D, parmi toutes celles proposées la détermination de la fonction de distribution spatiale $h(r)$ semble être la plus intéressante puisqu'elle n'est pas sensible à un paramètre de découpage, en quadrats par exemple, et est directement adaptable en 3D. Sa formulation 2D est décrite par la relation 2. 11.

$$h(r) = \frac{N_{ar}}{N_a} \tag{2. 11}$$

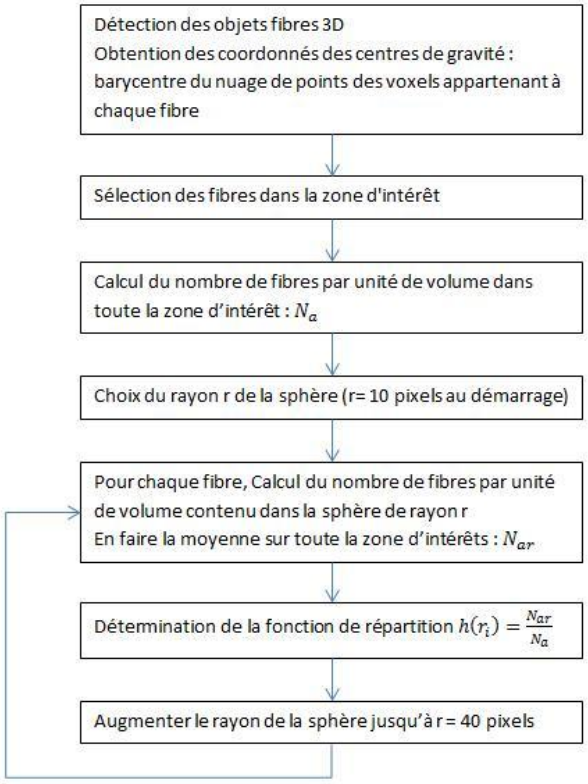
avec

N_{ar} nombre moyen de fibre par unité de surface contenu dans un disque de rayon r

N_a nombre moyen de fibre par unité de surface dans tout l'échantillon

La littérature [54, 95] montre que dans le cas d'une distribution aléatoire de renforts la fonction de répartition spatiale prend une valeur constante égale à 1, dans ce cas, cette distribution suit une distribution dite de Poisson. Dans le cas d'une distribution présentant des agglomérats, la fonction de distribution suit alors une loi exponentielle qui décroît rapidement vers 1.

Algorithme 2.1 Procédure pour déterminer la fonction de distribution



Cette méthode a été étendue à un cas tridimensionnel selon la procédure 2.1 en considérant dans l'équation 2. 11, non plus des disques et des unités de surface mais des sphères et des unités de volume. Le volume sondé en tomographie RX est de $600 \times 600 \times 200$ voxels, une zone d'intérêt plus petite est sélectionnée au centre de ce volume, de telle sorte qu'en permanence le volume de la sphère soit contenu dans la zone explorée (voir figure 2.6.1) et ce afin de limiter les effets de bord. Le rayon de cette sphère varie de 10 à 40 pixels.

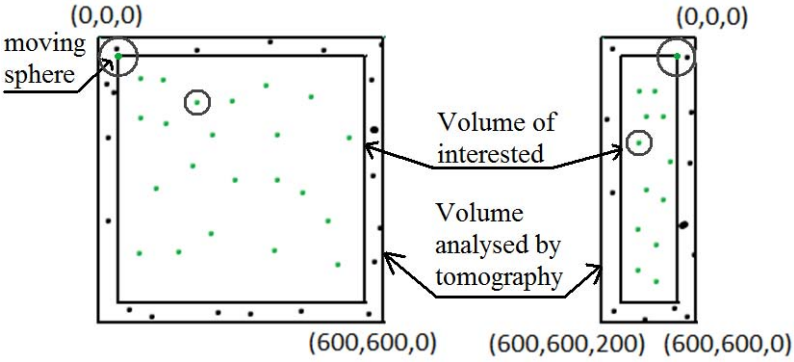


FIGURE 2.6.1 – Volume étudié

2.6.2 Résultats

Les centres de gravité des fibres sont obtenus en déterminant le barycentre du nuage de voxels constituant chacune des fibres via le logiciel ImageJ et son plugin 3D object counter [22]. Les fichiers contenant les coordonnées de ces centres de gravité ont été ensuite analysés via un programme Visual Basic. La valeur des fonctions de distribution $h(r)$ ainsi que leur écart-type σ^a sont donnés pour chacune des compositions dans le tableau 2.3. Ces données montrent que la fonction de répartition spatiale prend une valeur constante égale à 1 indiquant une répartition aléatoire des centres de gravité, cela signifie en d'autres termes qu'en moyenne aucune région présentant un agglomérat de fibres n'a pu être détectée.

TABLEAU 2.3 – Informations statistiques sur les fonctions de répartition $h(r)$

	PPC5		PPC10		PPC20	
Rayon [pixels]	$h(r)$	σ^a	$h(r)$	σ^a	$h(r)$	σ^a
10	0.954	0.250	0.865	0.274	1.099	0.261
20	1.057	0.205	1.056	0.218	1.095	0.257
30	1.039	0.217	1.037	0.198	1.037	0.269
40	1.025	0.224	1.023	0.205	1.013	0.249

2.7 Conclusion du chapitre

Cette étude tomographique a permis de valider l'arrangement des fibres dans nos échantillons initiaux. Selon les résultats obtenues, la répartition spatiale des fibres de chanvre peut être considérée comme aléatoire. En effet, l'étude sur les centres de gravités des fibres n'a détecté aucune zone de fibres agglomérées. De plus, l'orientation des fibres est sensiblement conforme aux théories [121, 108, 40] sur l'injection de thermoplastiques chargés de fibres courtes. En effet, les fibres semblent préférentiellement s'orienter de façon isotrope dans le plan d'injection. Mais une orientation privilégiée semble ressortir de cette analyse, les fibres de chanvre très courtes présentes dans les composites ont suffisamment de mobilité pour s'orienter en moyenne hors-plan d'injection ($\phi_{moyen} = 75°$). Cette étude statistique de la microstructure servira à alimenter l'algorithme permettant de générer automatiquement la microstructure d'un modèle numérique de renforts fibreux en prenant en compte la distribution d'orientation et de répartition des fibres ainsi que leur forme.

Chapitre 3

Comportement thermomécanique

3.1 Introduction

L'étude du comportement des composites à fibres naturelles repose principalement sur une investigation de leurs principales originalités. En effet, comme pour tout composite, il est indispensable de mieux connaître les spécificités de la matrice, destinées à l'intégration de fibres d'origine végétale. Cependant, le point délicat abordé dans la littérature réside essentiellement dans l'influence, sur le comportement thermomécanique, des caractéristiques des fibres naturelles : longueur, diamètre, éventuellement tortuosité, l'effet de leur état de surface sur l'interface fibres/matrice et enfin leur caractère hydrophile. Ainsi, afin de limiter ce dernier impact, tous les essais ont été effectués dans une enceinte thermique régulée en température. La teneur en eau des composites, facteur particulièrement influent dans les composites à fibres végétales a été contrôlée afin d'en quantifier l'effet éventuel. Comme l'objectif final est d'établir un modèle prédictif du comportement mécanique des composites à fibres naturelles, une démarche expérimentale a été établie afin de mieux cerner les éléments de la loi de comportement prépondérants dans les phénomènes observés. A cet effet, une première étude a été conduite afin de quantifier la part visqueuse de la déformation par une analyse DMA. Ces études ont été complétées par des essais classiques de traction uniaxiale monotone jusqu'à rupture dans le domaine quasi-statique ($\dot{\varepsilon}\,(s^{-1}) \in [10^{-4}, 10^{-2}]$). Ces essais ont montré une prépondérance des phénomènes d'endommagement. Différentes méthodes ont alors été mises en place afin de caractériser les mécanismes d'endommagement et leur évolution (thermographie infra-rouge, tomographie aux rayons X, microscopie électronique). L'évolution des processus dissipatifs inhérents au développement d'endommagement a fait l'objet d'une étude articulée autour d'essais complexes de type charge-décharge-maintien permettant de mieux rendre compte l'influence des fibres de chanvre dans les mécanismes mis en place.

3.2 Synthèse du comportement des composites à fibres naturelles

Un bilan des différents axes de recherche sur les composites à renforts naturels est proposé dans la section 1.7 du chapitre 1, cette section s'intéressera donc plus particulièrement au comportement des composites à matrice thermoplastique PP renforcés par des fibres végétales, observé en traction uniaxiale.

Parmi le grand nombre de fibres naturelles décrites dans la littérature, les fibres de chanvre font partie des plus prometteuses. Ainsi MUTJÉ *et al.* [88] ont étudié des composites PP/chanvre dont la composition en fibre s'étend de 20% à 40% en masse et, afin de garantir une compatibilisation correct : la teneur en l'agent de couplage (MAPP) de 0% à 8% en masse. Cette étude met en avant la qualité renforçante des fibres de chanvre sur les propriétés en traction, en effet les auteurs obtiennent un module de Young qui augmente avec la fraction massique de chanvre (d'environ 1200 MPa pour le PP à 3500 MPa pour un composite PP 40% de chanvre) et une contrainte ultime à rupture qui dépend principalement de la teneur en agent de couplage (tableau 3.1). De plus, ces auteurs montrent que les propriétés des composites PP/chanvre peuvent atteindre 80% des propriétés des composites PP à fibres de verre de longueur proche de celle des fibres naturelles (figure 3.2.1).

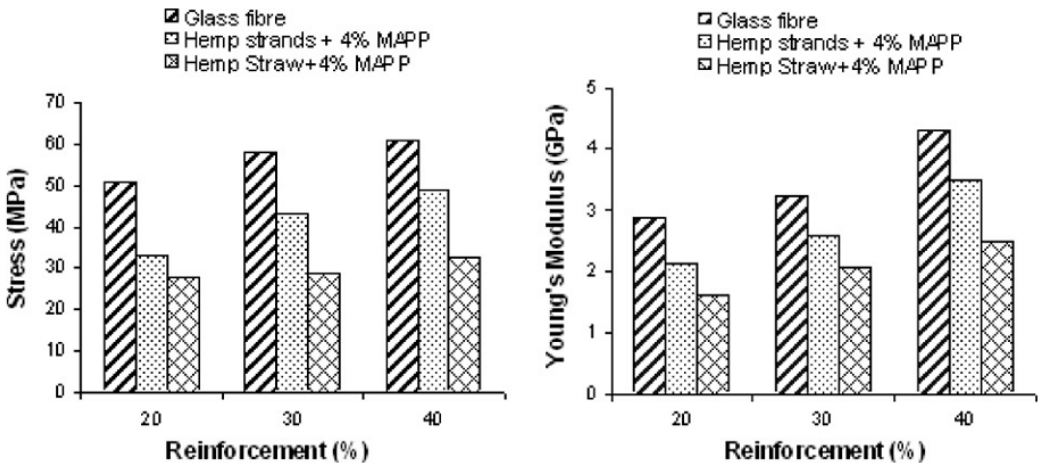
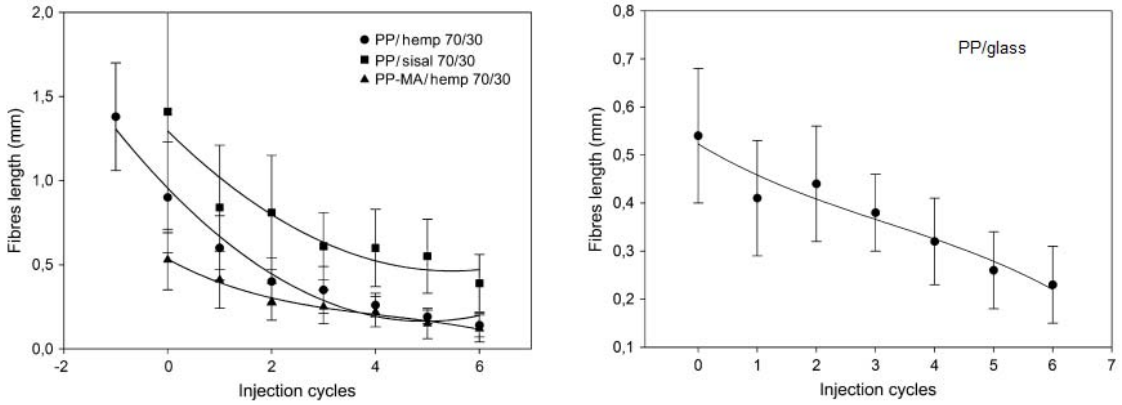


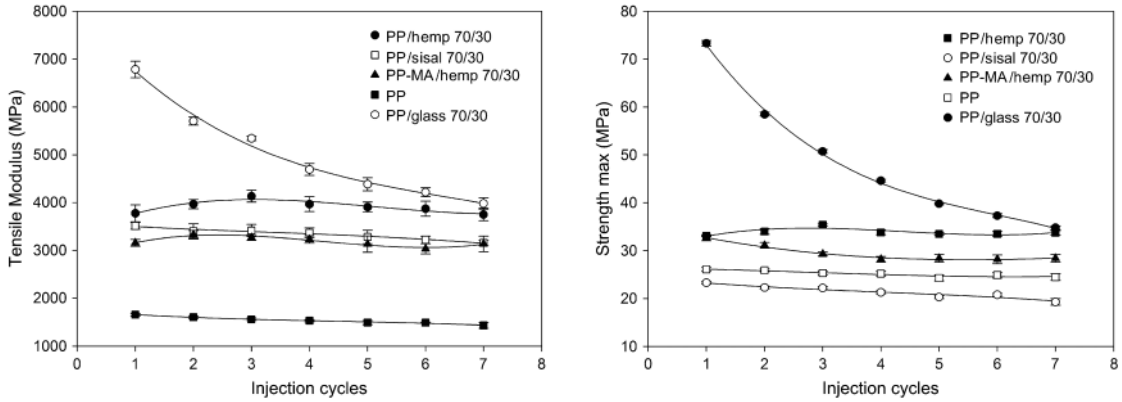
FIGURE 3.2.1 – Comparaison PP/Chanvre et PP/Fibre de verre, d'après MUTJÉ *et al.* [88]

Les différentes études sur la détermination des propriétés des composites de PP/Chanvre sont complétées par BOURMAUD et BALEY [25] qui s'intéressent à l'impact du recyclage sur les composites à PP/fibres de chanvre et PP/Sisal. Les propriétés mécaniques et les paramètres microstructuraux (longueur et diamètre des fibres) sont examinés après plusieurs cycles successifs de mise en forme. L'évolution de ces paramètres est comparée à celle des composites à fibres de verre. Il en ressort que les cycles successifs engendrent une diminution plus im-

portante du rapport d'aspect ($R = {}^{L}/\varnothing$) des fibres naturelles que des fibres de verre. Cette différence provient de la structure en faisceau des fibres naturelles plus facile à briser que les fibres unitaires de verre. Néanmoins, les propriétés des composites à fibres de chanvre résistent mieux aux recyclages que les composites à fibres de verre (figure 3.2.2). En effet, les mises en forme successives des composites à fibres synthétiques provoquent une diminution de la masse molaire du PP et fait apparaître une décohésion fibre/matrice responsable de la chute de leurs propriétés. Dans le cas des composites PP/chanvre, l'interface étant beaucoup plus faible, cette décohésion est présente dès le premier cycle et explique la faible influence du recyclage sur les propriétés mécaniques en traction. Cette étude est complétée par une étude du recyclage sur les propriétés en nanoindentation [27]. Il est important de noter que le recyclage reproduit dans ces études ne tient pas compte des effets du vieillissement qui aurait lieu dans un cycle de vie réel.



(a) Evolution de la longueur des fibres



(b) Evolution des propriétés mécaniques

FIGURE 3.2.2 – Influence du recyclage sur des composites PP /fibres de chanvre et PP / fibres de verre [25]

La faible interface des fibres naturelles est également soulignée par LI *et al.* [79] qui montrent sur des observations au microscope électronique à balayage (MEB) une interface entre fibre et

matrice fondamentalement différente avec ou sans traitement qui se traduit par des propriétés mécaniques (module d'Young et contrainte maximale de traction) beaucoup plus faibles pour les composites sans traitement préalable des fibres.

(a) sans traitement (b) avec traitement

FIGURE 3.2.3 – Observations MEB, d'après LI *et al.* [79]

De même, BECKERMANN et PICKERING [15] s'intéressent aux paramètres gouvernant la qualité de renforts dans les composites à matrice thermoplastique renforcés par des fibres et mettent en évidence deux paramètres prépondérants, la longueur des fibres et la contrainte admissible de l'interface. Une longueur minimum de la fibre sera nécessaire pour supporter pleinement la charge (figure 3.2.4). Cette longueur est appelée longueur critique l_c. De plus, des mesures sont effectuées pour déterminer la contrainte maximale τ admissible en cisaillement par l'interface pour un composite polypropylène (PP) / fibres de chanvre et une valeur de $\tau = 15.4\,\text{MPa} \pm 4\,\text{MPa}$ est obtenue, valeur supérieure à la plupart des composites thermoplastiques à renforts naturels de la littérature [57, 118, 120], soulignant ainsi le potentiel des composites PP/Chanvre.

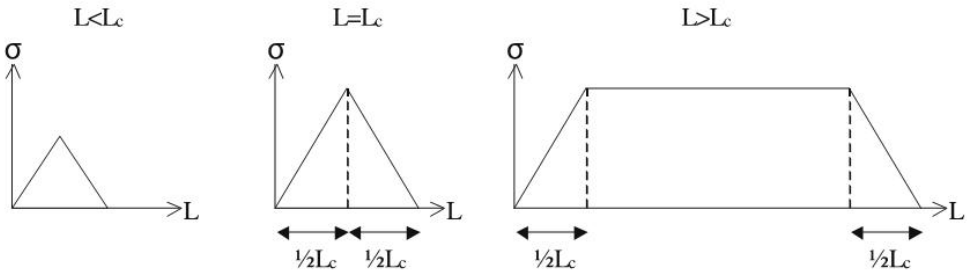


FIGURE 3.2.4 – Illustration du concept de longueur critique l_c dans les composites à fibres, d'après BECKERMANN et PICKERING[15]

TABLEAU 3.1 – Propriétés de traction des composites PP/chanvre, selon MUTJÉ *et al.* [88]

Composition chanvre (%)	MAPP (%)	contrainte à rupture (MPa)	σ^a	déformation à rupture (%)	σ^a	module de Young (MPa)	σ^a
0	0	27,56	0,50	9,28	0,21	1135	58
20	0	29,51	0,65	3,43	0,08	2133	59
20	2	30,73	0,54	3,31	0,06	2052	59
20	4	33,32	0,38	3,63	0,19	2143	150
20	6	34,68	0,41	3,96	0,08	2146	92
20	8	36,25	0,90	3,91	0,05	2162	51
30	0	32,86	0,45	3,11	0,09	2618	208
30	2	37,21	1.04	3,13	0,20	2658	81
30	4	43,43	0,99	3,72	0,21	2605	152
30	6	42,36	1,54	3,52	0,25	2598	84
30	8	39,80	0,92	3,36	0,16	2627	113
40	0	32,84	0,88	2,92	0,17	3498	281
40	2	44,08	1,46	3,45	0,17	3491	183
40	4	48,81	1,85	3,74	0,10	3504	100
40	6	48,68	1,11	3,72	0,23	3470	129
40	8	46,20	2,04	3,45	0,19	3554	98

σ^a : écart-type

3.3 Essais préliminaires : la mesure du taux d'humidité

Selon la littérature les propriétés des composites à fibres naturelles dépendent fortement de la teneur en eau des composants. DHAKAL *et al.* [37] ont étudié l'effet de l'absorption d'eau sur les propriétés mécaniques (traction et flexion trois points) de composites à matrice thermodurcissable, résine polyester insaturé (UPE), renforcés par des fibres de chanvre. Comme le montre la figure 3.3.1, il n'y a pas de tendance claire sur l'influence de l'absorption sur la contrainte ultime admissible du composite. A faible taux de renfort, l'amélioration de la contrainte ultime peut être expliquée par un meilleur enchevêtrement des chaînes polymères, ou par un gonflement des fibres venant « boucher » les cavités [66]. Pour un taux de renfort plus important, l'absorption d'humidité affaiblit le composite. De plus, l'eau agit comme un plastifiant sur les fibres et augmente la déformation admissible avant rupture des composites[37].

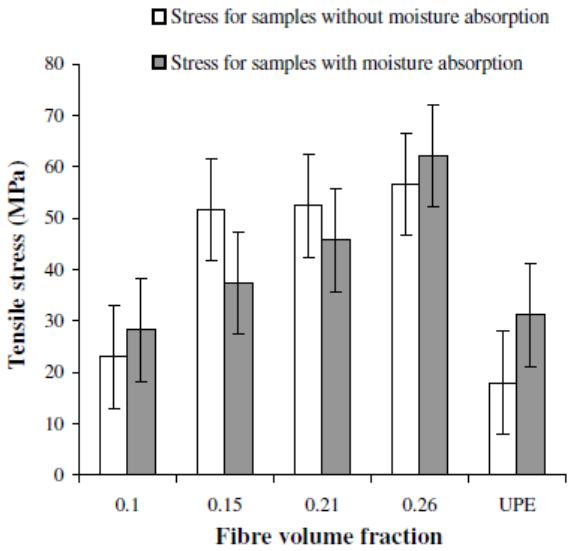


Fig. 7. Tensile stress versus fibre volume fraction.

(a) Contrainte Ultime

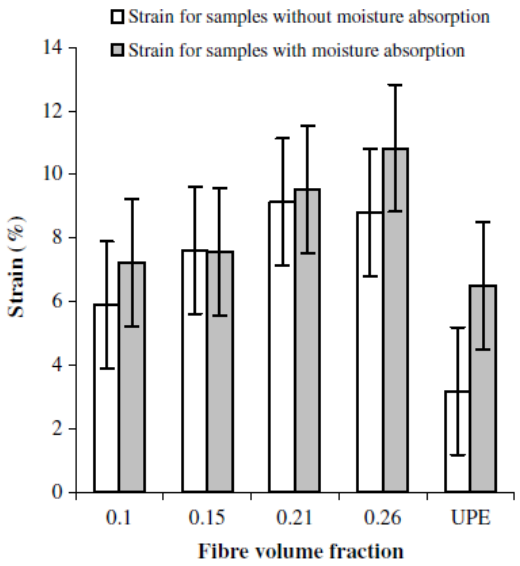


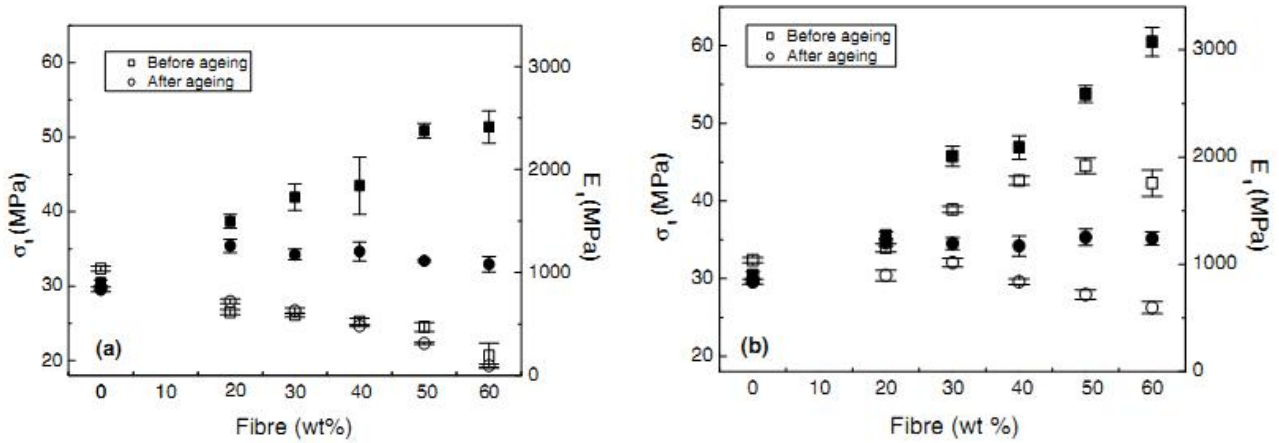
Fig. 8. Tensile strain versus fibre volume fraction.

(b) Déformation à rupture

FIGURE 3.3.1 – Résultats des tests de traction, d'après DHAKAL *et al.* [37]

De même, ARBELAIZ *et al.* [7] ont montré que l'augmentation de la teneur en eau dans les composites PP/lin modifie le module « de Young » et la contrainte à rupture des composites (figure 3.3.2). Cet effet a aussi été mis en évidence par BEG et PICKERING [16] lors de leur étude sur l'influence du vieillissement (suivant la norme ASTM D570 - 98) sur les propriétés de composites PP/Kraft, soulignant que la majeure partie de l'humidité est absorbée via les fibres végétales. La présence de groupes (OH) rend effectivement les fibres naturelles très peu

résistantes à l'absorption d'eau. Cette propriété est donc potentiellement responsable d'une mauvaise stabilité dimensionnelle des composites et d'une interface médiocre entre fibres et matrice engendrant des propriétés mécaniques modestes [37].



(a) sans modification de la matrice

(b) Avec modification de la matrice : Ajout de 5% en masse de E23-modifié

FIGURE 3.3.2 – Variation de la contrainte à rupture (symboles pleins) et du module de Young (symboles vides) de composite PP/lin avant et après vieillisement dans de l'eau distillée, d'après ARBELAIZ *et al.*[7]

Une teneur en eau différente des composites PP/chanvre pourrait alors se traduire par une modification forte de leur comportement et ainsi perturber nos conclusions. Pour s'affranchir de cette possibilité, le taux d'humidité a été contrôlé par un échantillonnage avant les essais sur un appareil Brabender Messtechnik Aquatrac (figure 3.3.3).

FIGURE 3.3.3 – Photographie de l'appareil utilisé pour la mesure de l'humidité

La fraction d'eau dans les échantillons, mis sous vide (3 à 5 mbar), est obtenue par la mesure de la variation de pression dû à la réaction entre l'humidité dégagée par l'échantillon lors du chauffage (jusqu'à une température imposée de 130°C) et un réactif l'hydrure de calcium (CaH_2). Cette réaction produit de l'hydrogène, responsable de l'augmentation de la pression,

et d'autres sous-produits selon la formule 3. 1. Cette augmentation de pression est directement liée à la quantité de dihydrogène produit et donc à la teneur en humidité des échantillons.

$$CaH_2 + 2\,H_2O \rightarrow Ca\,(OH)_2 + 2\,H_2 \tag{3. 1}$$

La teneur moyenne ainsi que l'étendue des mesures sont représentées sur le graphique de la figure 3.3.4. Cette étude a permis de prouver que la teneur en eau des éprouvettes est relativement faible. En effet, la quantité d'eau contenue dans les échantillons de PP est quasi-nulle (0.058%), l'ajout de fibres de chanvre augmente cette valeur dans les composites mais reste faible ($\sim$ 0.2%). En effet, Alamari et Low [2] obtiennent des composites dont l'eau représente une augmentation de la masse de composite époxy/fibres de cellulose d'au minimum 5%. Les différences ainsi obtenues entre les différentes compositions PP/chanvre ne sont pas significatives. Le comportement mécanique des composites ne sera donc pas perturbé par l'humidité des éprouvettes.

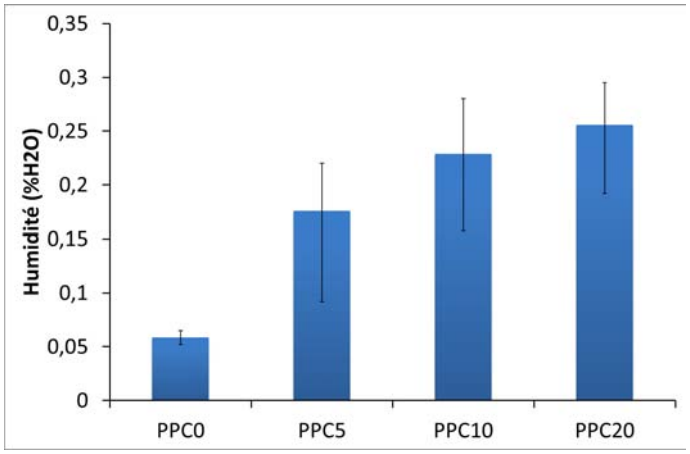


Figure 3.3.4 – Teneur en eau de nos échantillons PP/Chanvre

3.4 Comportement viscoélastique en petite déformation

La courte introduction du comportement des matériaux polymères présentée au chapitre 1 section 1.2 souligne la forte dépendance à la vitesse de sollicitation et à la température de la réponse viscoélastique des matériaux à base polymère. Il est possible d'étudier le comportement viscoélastique en petite déformation en fonction de ces deux paramètres (temps ou fréquence et température) via des analyses mécaniques dynamiques (*dynamic mechanical Analysis* DMA). Ces études donnent accès aux propriétés viscoélastiques en fonction de la température et de la fréquence de sollicitation. De plus, ces essais mettent en évidence les températures de transitions caractéristiques des matériaux polymères, telle que la température de transition α de la phase amorphe.

3.4.1 Principe des essais sur un analyseur mécanique dynamique

Le principe de mesure d'un essai DMA sera décrit ici en quelques lignes. Lors d'un essai DMA, une force périodique souvent sinusoïdale de faible amplitude est appliquée à un échantillon et génère une déformation également périodique sinusoïdale de même fréquence mais déphasée d'un angle δ. Un schéma du fonctionnement d'une machine permettant une telle mesure est proposé sur la figure 3.4.1.

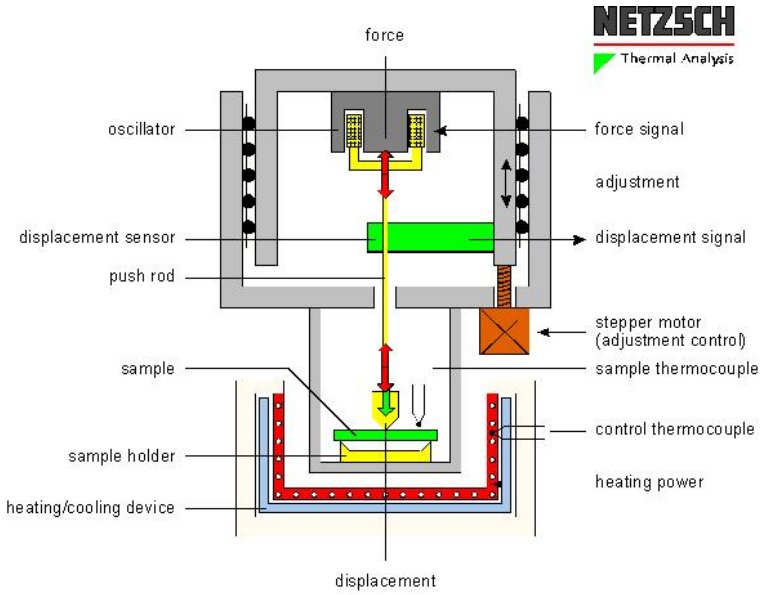


FIGURE 3.4.1 – Composition d'un analyseur DMA Netzsch

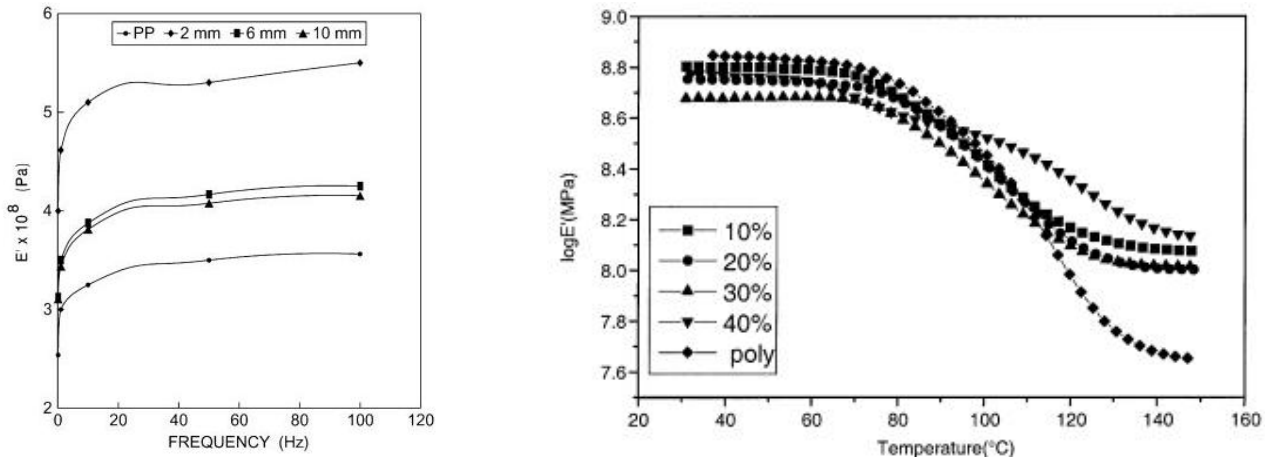
Cet outil permet de mesurer les changements de propriétés viscoélastiques des matériaux en fonction de la fréquence et de la température et donne accès aux grandeurs physiques telles que les modules complexes $E^* = E' + \jmath \cdot E''$; où E'est le module de conservation et E''est le module de dissipation ; et le facteur de perte $\tan\delta = \frac{E''}{E'}$.

3.4.2 Résultats des DMA

Parmi la littérature sur les composites à fibres naturelles, peu d'articles s'intéressent aux propriétés viscoélastiques obtenues via DMA, néanmoins JOSEPH *et al.* [61] étudient l'influence des fibres de Sisal sur les propriétés viscoélastique de composites PP/Sisal en analysant particulièrement l'effet du traitement chimique, de la longueur des fibres et de la composition sur le comportement des composites et ont mis en évidence une augmentation du module de conservation avec la teneur en fibre mais contrairement à l'idée classiquement admise, l'augmentation de la longueur des fibres ne garantit pas de meilleures propriétés aux mélanges. En effet, pour JOSEPH *et al.*, les propriétés maximales du composite PP/Sisal ont été obtenues

pour des fibres de longueur 2 mm par rapport aux composites à fibres de longueur 10 mm et 6 mm (figure 3.4.2a).

POTHAN *et al.* [101] ont montré que l'effet de l'augmentation de la teneur de fibres de banane dans les composites résines polyester, est différent selon que la température d'essai est inférieure ou supérieure à la température de transition α associée à la transition vitreuse (T_g). En effet, les résultats de POTHAN *et al.* de la figure 3.4.2b indiquent qu'une augmentation de la fraction de fibres engendre une diminution du module pour des températures inférieures à la température de transition α et une diminution pour des températures supérieures à T_g. Pour les auteurs, au dessus de la T_g les fibres de banane agissent donc comme une phase cristalline dans les polymères semi-cristallins (chapitre 1 section 1.2.2).



(a) Composites PP/Sisal à 80°C, d'après JOSEPH *et al.* [61]

(b) Composites Polyester / Banane, d'après POTHAN *et al.* [101]

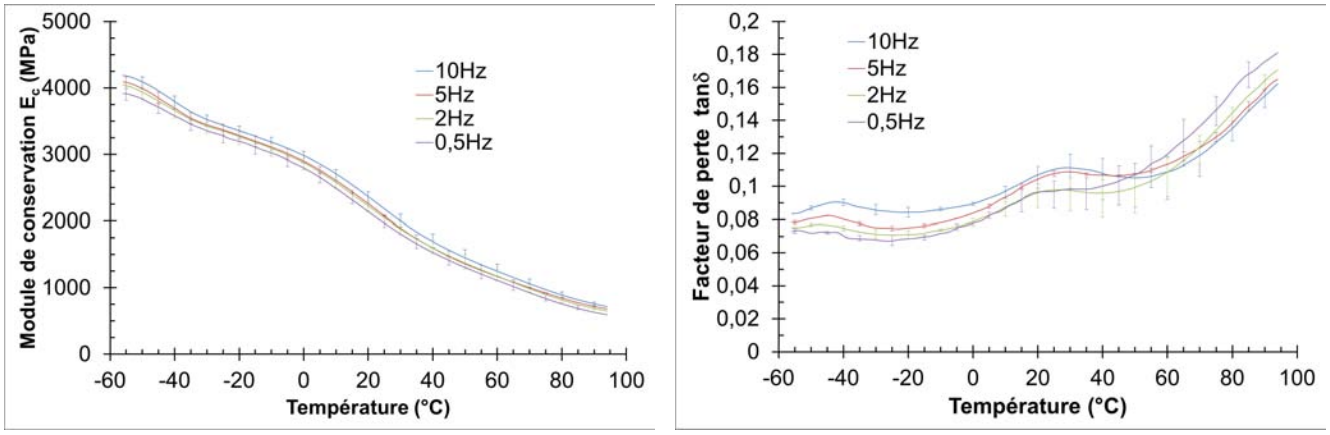
FIGURE 3.4.2 – Modules de conservation de composites à renforts naturels

Le comportement viscoélastique des composites à fibres de chanvre de notre étude a été déterminé sur un analyseur Netzsch DMA 242 sur un gamme de température allant de −60 °C à 100 °C à 4 K/min pour quatre fréquences (0.5 Hz, 2 Hz, 5 Hz *et* 10 Hz). Seules les courbes moyennes et la dispersion de trois essais sont présentées dans cette section. La dispersion des essais est ajoutée aux graphiques par l'intermédiaire de barres d'erreur verticales indiquant la valeur des extrema obtenus pour la série d'essais.

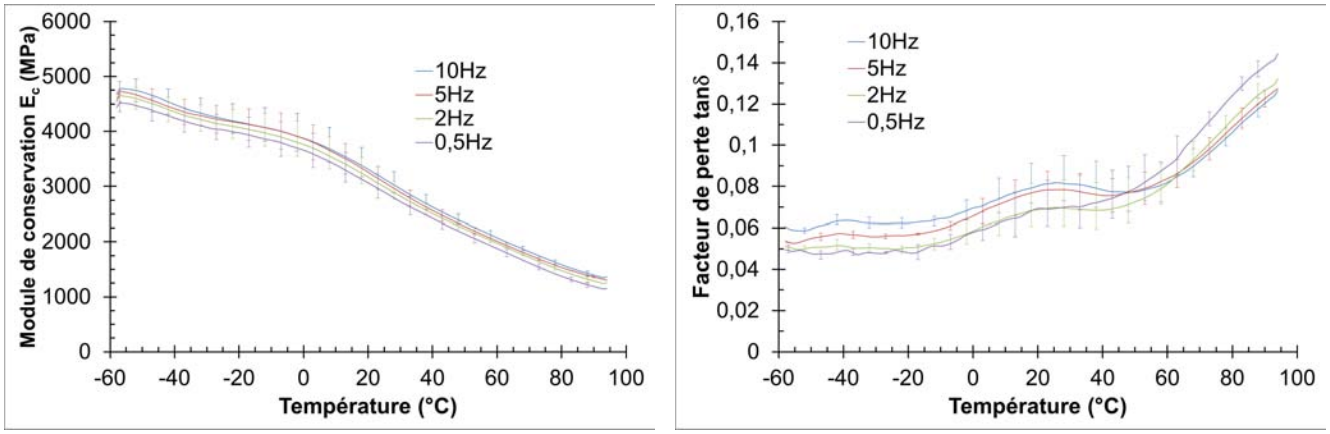
La principale transition caractéristique des composites à base polymère est la transition α, associée à la transition vitreuse, matérialisée sur les courbes de DMA par un pic du facteur de perte. Les essais menés sur les composites PP/Chanvre mettent en évidence deux pics, l'un aux alentours de −45 °C et l'autre autour de 25 °C. Ces deux pics sont visibles quelque soit

la composition et sont donc associés aux relaxations du PP, la dernière correspond donc à la relaxation α de la phase amorphe du PP.

Les valeurs des différents facteurs de perte sont faibles, de l'ordre de 0.12 au pic de transition α. Les valeurs obtenues sont similaires à celles obtenues par JOSEPH *et al.* [61] sur des composites PP/Sisal et soulignent des capacités amortissantes relativement faibles des composites. De plus, selon la théorie de l'équivalence temps-température des matériaux à base polymères, l'augmentation de la fréquence provoque un décalage de la courbe vers les températures élevées, le décalage obtenu sur les composites PP/chanvre étudiés est faible. Les influences de la fréquence et de la température sur les propriétés viscoélastiques (E_c et $\tan\delta$) pour deux formulations sont représentées sur les graphiques de la figure 3.4.3.



(a) PPC0

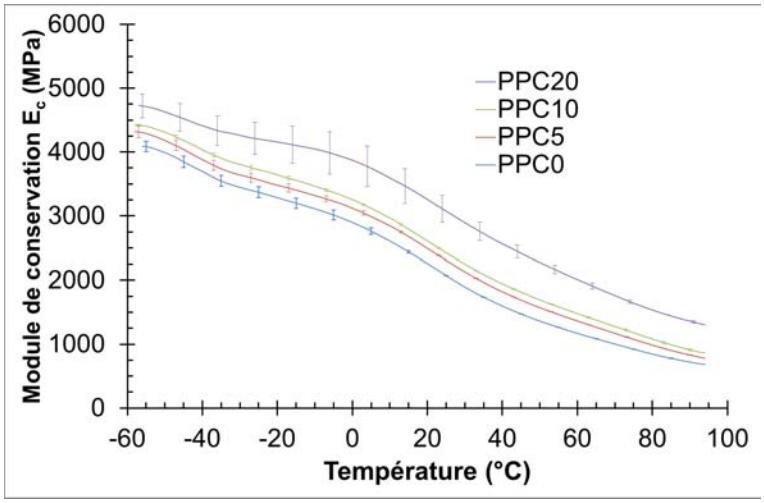


(b) PPC20

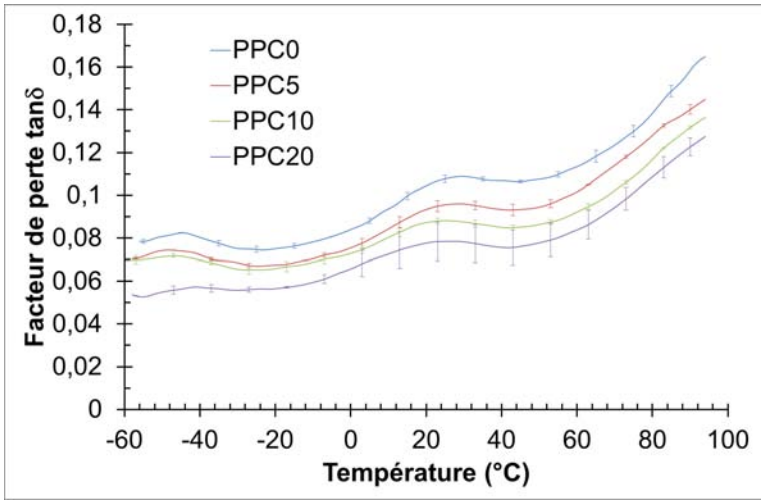
FIGURE 3.4.3 – Evolution des propriétés viscoélastiques de composites PP/Chanvre obtenues par DMA

Une fréquence de comparaison a été sélectionnée (5 Hz) pour mettre en évidence l'influence du chanvre sur les propriétés viscoélastiques des composites, et a montré le rôle renforçant des

fibres de chanvre dans le polypropylène. En effet, les courbes de la figure 3.4.4 montrent un module de conservation augmentant et un facteur de perte diminuant avec la fraction massique de chanvre. On note également que le bénéfice obtenu par l'augmentation de la fraction massique de chanvre de 5% à 10% est très faible, les deux groupes de courbes (module de conservation et facteur de perte) sont très proches. Ces conclusions indiquent que, sous réserve de maîtriser le procédé de mise en forme, l'augmentation de la fraction massique de fibres de chanvre au-delà de 20% en masse permettrait d'obtenir des composites dont le module complexe serait supérieur à ceux obtenus lors de cette étude.



(a) Module de conservation E_c



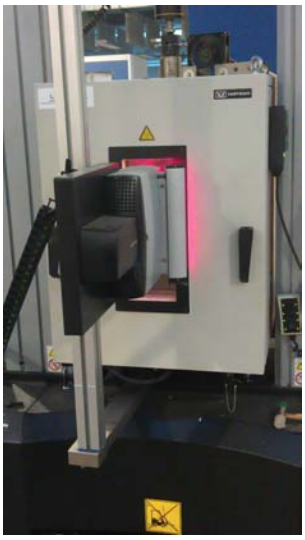
(b) facteur de perte $\tan\delta$

FIGURE 3.4.4 – Influence du Chanvre sur les propriétés viscoélastiques des composites PP/Chanvre

3.5 Essai monotone de Traction Uniaxiale

Afin de quantifier l'influence du chanvre sur le comportement des composites PP/Chanvre, des essais de traction uniaxiale monotone jusqu'à rupture ont été conduits à différentes vitesses de déformation dans le domaine quasi-statique. Ces essais ont été réalisés sur une machine de traction standard Instron modèle 5585H équipée d'un extensomètre vidéo Instron AVE 2663-821, d'une cellule d'effort de 10 kN et d'une enceinte thermique permettant de réaliser les essais à température contrôlée. Des photographies de la configuration machine utilisée sont fournies sur la figure 3.5.1.

(a) Sans l'enceinte thermique



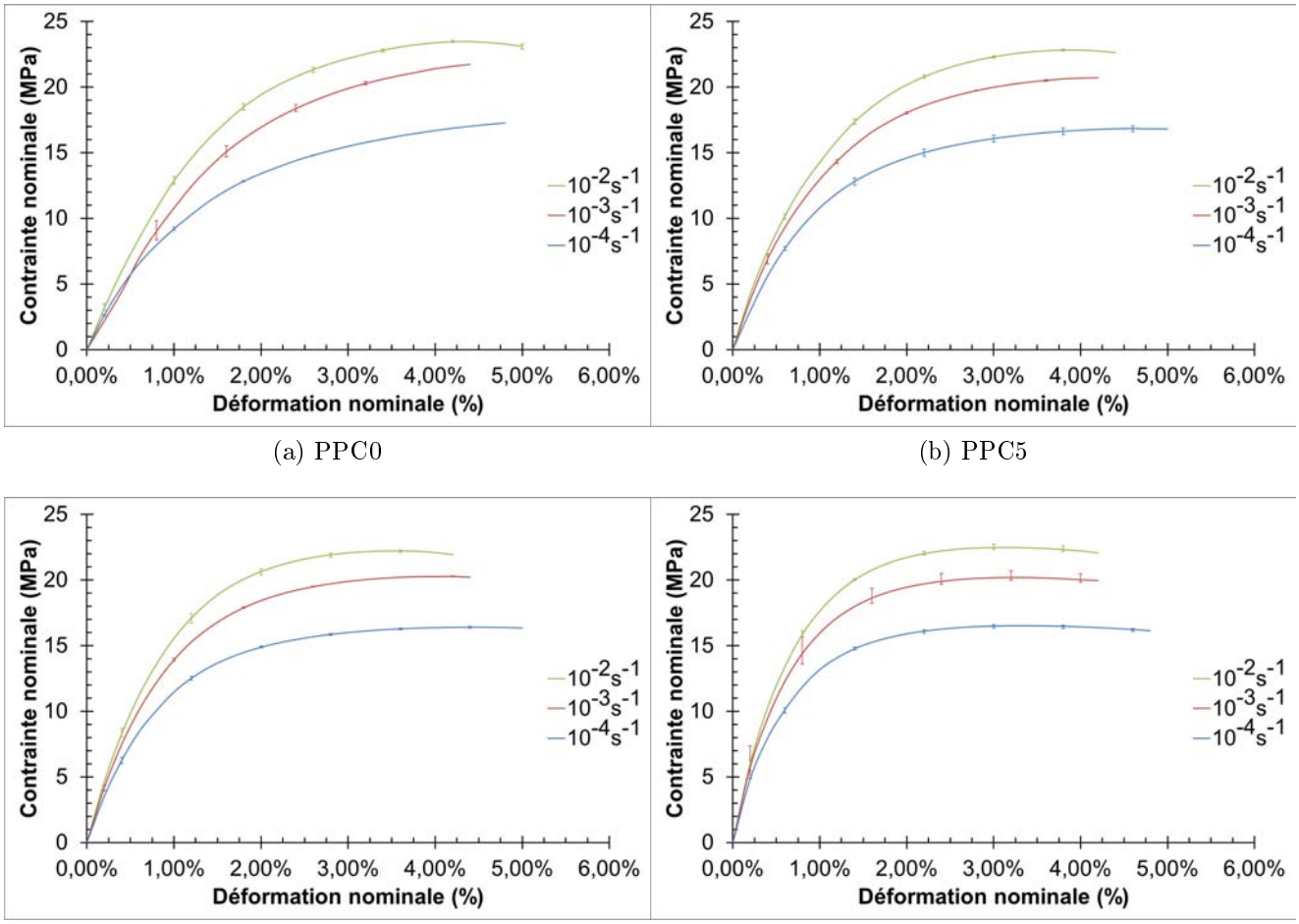
(b) Essai en cours

FIGURE 3.5.1 – Photographies du montage utilisé pour les essais de traction

L'étude expérimentale réalisée en DMA (voir section 3.4.2) a montré une température de transition α entre 20°C et 30°C pour l'intégralité des formulations étudiées, afin de s'affranchir des effets de la température sur le comportement, il était nécessaire de réaliser tous les essais à la même température. Les contraintes technologiques lors des essais ont conditionné le choix de la température à 30°C.

Cette étude se limite au domaine quasi-statique, les vitesses de déformation sélectionnées sont donc de $10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$, $10^{-3}\,\mathrm{s}^{-1}$ et $10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$. La vitesse réelle de déformation a été contrôlée à chaque essai et la précision est suffisante pour mentionner, dans les résultats, uniquement les vitesses de déformation voulues.

Pour chaque formulation et chaque vitesse de déformation, les essais ont été reproduits à 5 reprises, seules les courbes moyennes avec leur dispersion ont été reproduites dans ce manuscrit.



(a) PPC0 (b) PPC5

(c) PPC10 (d) PPC20

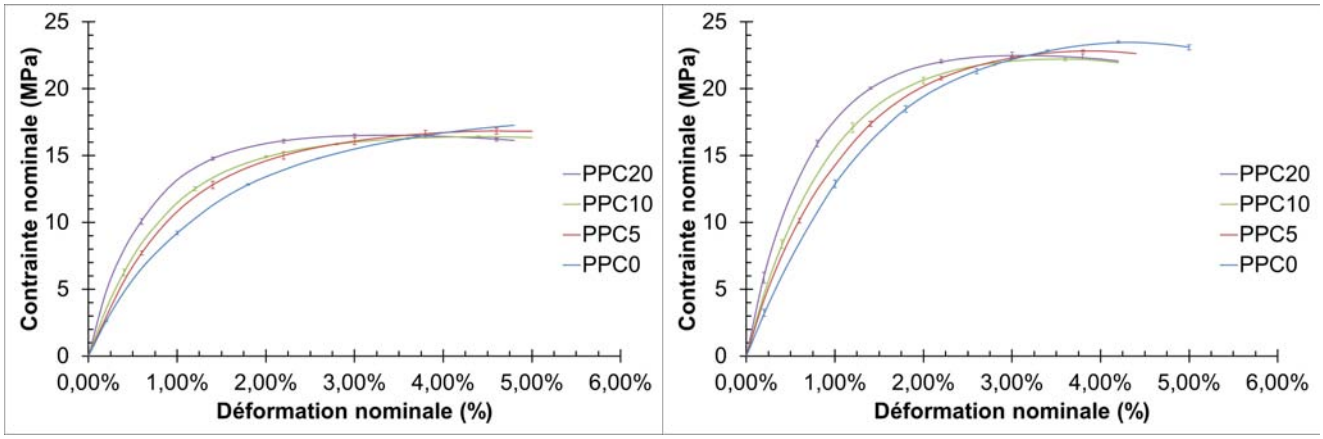
FIGURE 3.5.2 – Influence de la vitesse de déformation sur le comportement des formulations de composites PP/Chanvre

Pour chaque formulation, les courbes contrainte-déformation de la figure 3.5.2 suggèrent une forte sensibilité du comportement des composites à la vitesse de déformation jusqu'à la ruine de l'échantillon pouvant être expliquée en partie par la dépendance à la vitesse de sollicitation des matériaux visco-élasto-plastiques. Cependant, l'analyse DMA a montré l'existence de déformations viscoélastiques relativement faibles et ne suffit pas à justifier à elles-seules cette forte sensibilité. Celle-ci est surtout due au mode de rupture de ces composites, en effet l'observation des échantillons après essai montre que la rupture s'est produite sans propagation de striction de façon, qui peut être qualifiée *a priori* de « quasi-fragile » (figure 3.5.3). De manière générale, leur comportement dépend fortement de la vitesse de sollicitation. Selon la littérature, un matériaux « quasi-fragile » est souvent un matériaux dont la microstructure est hétérogène, par exemple un composite à fibre dont la longueur des charges est non-négligeable par rapport à la taille de la structure pourra éventuellement être qualifié de « quasi-fragile » [12, 13]. Le comportement de tel matériau est non-linéaire et présente des boucles d'hystérésis dû princi-

palement à un endommagement dissipatif par micro-fissuration de la matrice et déchaussement des fibres [73, 85] engendrant une perte de rigidité de la structure par endommagement [97, 32]. Les essais mis en place dans la suite serviront à confirmer cette hypothèse.

FIGURE 3.5.3 – Photographies des éprouvettes *post-mortem*

Affin de quantifier l'effet du chanvre, les courbes contrainte-déformation pour une même vitesse de déformation ont été tracées sur les graphiques de la figure 3.5.4.



(a) $\dot{\varepsilon} = 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ (b) $\dot{\varepsilon} = 10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$

FIGURE 3.5.4 – Influence du Chanvre sur le comportement en traction de PP/Chanvre pour différentes vitesses de déformation

La première constatation concerne la contrainte ultime supportée par les différentes formulations. En effet, pour chacune des vitesses, aucune amélioration de la contrainte à rupture n'est observable, l'ajout des fibres de chanvre ne modifie donc pas la contrainte ultime supportée par la matrice qui est de l'ordre de 16 MPa pour $\dot{\varepsilon} = 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$. Cette tendance est assez courante dans la littérature sur les renforts naturels, les auteurs expliquent cette tendance par la formulation même des composites, extraction des fibres, résistance de l'interface fibres/matrice (section 3.1)...

De plus, comme déjà observé en DMA (section 3.4.2) l'ajout de chanvre augmente la rigidité initiale des composites, en effet les valeurs du tableau 3.2 montrent clairement une augmentation de module tangent initial avec la teneur massique de chanvre.

TABLEAU 3.2 – Module tangent initial lors des essais monotones (MPa)

	PPC0	**PPC5**	**PPC10**	**PPC20**
$10^{-4}\,s^{-1}$	1199	1469	1767	2427
$10^{-3}\,s^{-1}$	1279	1889	2090	2873
$10^{-2}\,s^{-1}$	1578	2107	2318	3008

Cependant, les modules tangents calculés pour des déformations de 2% et 3% diminuent avec la fraction massique de chanvre, cet effet est d'autant plus marqué que les déformations sont proches de la déformation à rupture (figure 3.5.5). Cette chute du module tangent est vraisemblablement due au développement de l'endommagement.

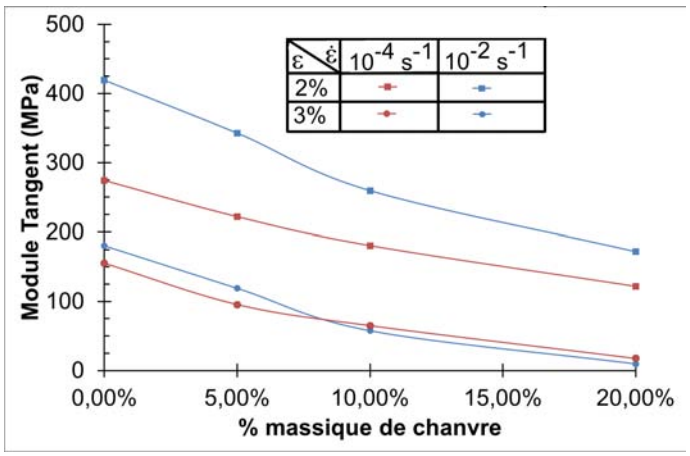
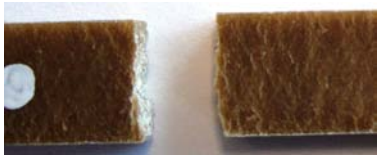


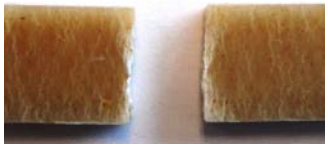
FIGURE 3.5.5 – Evolution du module tangent en fonction de la fraction massique de chanvre

De plus, l'observation visuelle des éprouvettes *post-mortem* (figure 3.5.6) a amené à formuler une hypothèse sur la dépendance de l'évolution de l'endommagement à la vitesse de sollicitation. A faible vitesse de déformation ($10^{-4}\,s^{-1}$) et faible taux de renfort (5% en masse) la zone endommagée semble être limitée à une seule et unique section alors que pour des vitesses plus importantes ($10^{-2}\,s^{-1}$) les éprouvettes présentent de multiples zones qui semblent être endommagées, sur toute la partie utile. La prochaine section sera donc dédiée à la visualisation de l'endommagement dans ces composites.

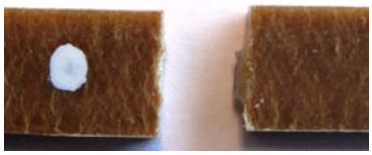
(a) PPC5 à $\dot{\varepsilon} = 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$



(b) PPC20 à $\dot{\varepsilon} = 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$



(c) PPC5 à $\dot{\varepsilon} = 10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$



(d) PPC20 à $\dot{\varepsilon} = 10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$

FIGURE 3.5.6 – Photographies *post-mortem* de la partie calibrée d'éprouvettes de traction PP/chanvre

3.6 Visualisation de l'endommagement

3.6.1 Mécanismes d'endommagement des polymères semi-cristallins

Les bandes de cisaillement et les craquelures sont deux mécanismes d'endommagement concurrentiels mais pouvant coexister dans les polymères semi-cristallins.

Les bandes de cisaillement apparaissent dans des zones de forte concentration de contrainte et se développent avec la plasticité dans le matériau. Elles sont inclinées à 45° par rapport à l'axe de sollicitation principale et sont le siège de déformation plastique nettement plus importante que dans le reste du matériau polymère. Elles apparaissent sous forme de bandes larges ou fines suivant la température et la sollicitation. Elles sont observables par un blanchissement de la matière ou par le caractère biréfringent de la matière cisaillée. Sous lumière polarisée, une tache en forme de X est observable.

Les craquelures sont un mécanisme d'endommagement généralement associé à un comportement fragile des polymères semi-cristallins. Leur création se décompose en deux étapes (figure 3.6.1) : une microcavité s'initie dans une zone où la triaxialité des contraintes est importante suivi d'une forte déformation plastique localisée autour des microcavités conduisant à une structure fibrillaire [69].

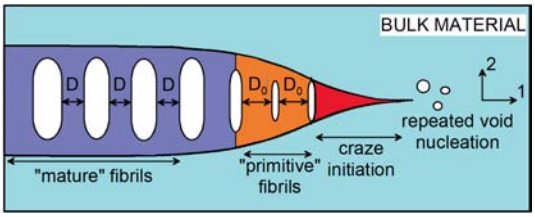


FIGURE 3.6.1 – Naissance d'une craquelure, adaptée de PONÇOT [100]

Macroscopiquement, les fissures et les craquelures sont similaires, à l'exception que des microfibrilles de polymères, perpendiculaires aux surfaces des craquelures, constituent un lien physique fort entre les lèvres de la microfissure (figure 3.6.2).

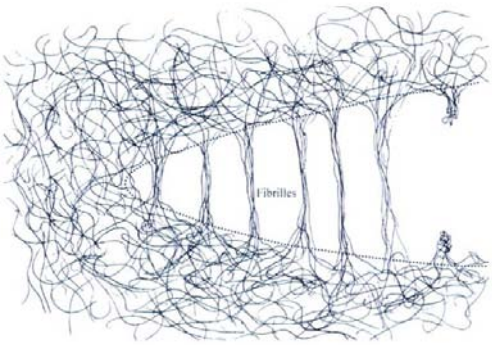


FIGURE 3.6.2 – Schéma d'une craquelure[74]

Les microcavités peuvent naître autour d'une impureté ou à l'intersection des bandes de cisaillement, perpendiculaires entre elles [47] (figure 3.6.3).

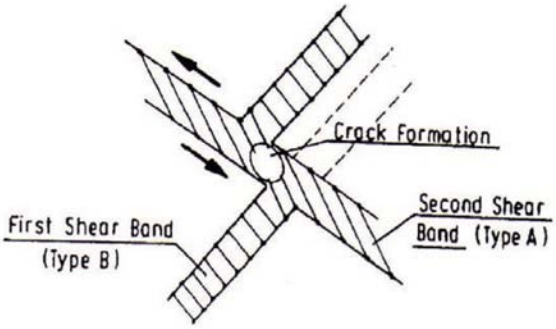


FIGURE 3.6.3 – Bande de cisaillement à 45°, d'après FRIEDRICH [47]

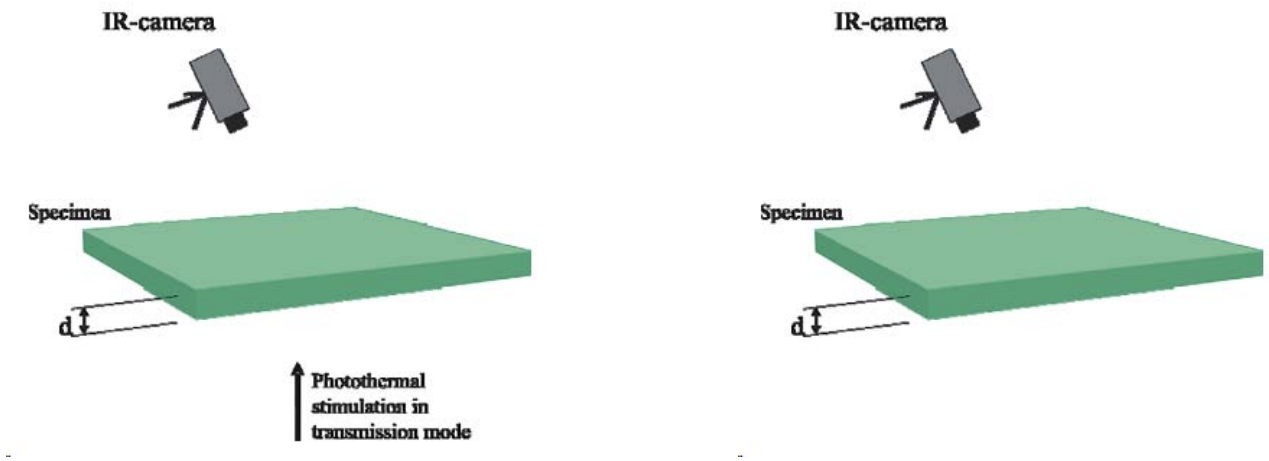
Pour les polymères semi-cristallins, les mécanismes de rupture dépendent de la température, ainsi pour $T < T_g$ la rupture s'opère par fissuration contournant les sphérolites et pour $T > T_g$ les mécanismes mis en jeu associent la déformation plastique des structures cristallines et la déformation de la phase amorphe inter-lamellaire.

3.6.2 Suivi *in-situ*

Les travaux relativement récents de KRISHNAPILLAI *et al.* [70], présentent la thermographie infrarouge (IR) comme un outil puissant pour détecter les défauts dans des structures composites complexes. Les techniques de contrôle par thermographie IR se décomposent en deux groupes (figure 3.6.4) :

- La thermographie IR dite active
  - l'échantillon est excité thermiquement par une source extérieure. La zone endommagée (zone de non contact partiel ou total) modifie localement la conductivité thermique et donc l'évolution du champ de température de la surface observée. On enregistre alors la variation de température de la surface pour discerner les zones endommagées.
- La thermographie IR dite passive
  - l'échantillon n'est soumis à aucune sollicitation thermique extérieure, on enregistre alors la variation de température de la surface dû à un phénomène dissipatif à cœur.

La thermographie IR passive permet de mettre en évidence un défaut en révélant les anomalies dans la variation du flux de chaleur émis naturellement par la pièce. Néanmoins dans un contexte de contrôle non-destructif par exemple, les structures n'émettent pas souvent de la chaleur. En perturbant l'échantillon avec une source externe et en analysant sa réponse thermique (thermographie IR active), des informations non accessibles spontanément sont décelées.



(a) Thermographie IR active

(b) Thermographie IR passive

FIGURE 3.6.4 – Schématisation des techniques de thermographie IR, adapté de STEINBERGER *et al.*[113]

TOUBAL *et al.* [119] ont couplé des essais de fatigue, sur un composite Epoxy/Carbone, à un suivi de la température par une technique de thermographie passive et ont montré que l'utilisation de cette technique permet de suivre l'évolution de l'endommagement lors de leurs essais. Les relations de thermoélasticité couplées à la thermodynamique des processus réversibles adiabatiques de solide isotrope élastique (équations 3. 2) permettent d'expliquer la variation de température théorique lors de sollicitations mécaniques. Il apparaît clairement qu'une augmentation de contrainte induit une diminution de la température et inversement.

$$\begin{cases} \triangle\varepsilon = \dfrac{(1-2\cdot\nu)}{E}\triangle\sigma + 3\cdot\alpha\triangle T \\ \\ \triangle T = -\dfrac{\alpha}{\rho C_p}\cdot T\cdot\triangle\sigma \end{cases} \tag{3. 2}$$

où

α	est la coefficient de dilatation thermique (K^{-1})
ρ	est masse volumique ($kg\cdot m^{-3}$)
C_p	est la capacité calorifique ($J\cdot kg^{-1}\cdot K^{-1}$)

Cependant l'évolution de température, lors d'un essai de fatigue, est plus complexe (figure 3.6.5). La température « de fond » ou moyenne augmentant continuellement sur le graphique indique un phénomène dissipatif continu s'accentuant (endommagement, plasticité, localisation de la déformation, ...). D'autre part, les variations successives autour de cette température, dues aux déformations élastiques, correspondent aux cycles de traction-compression alternatifs.

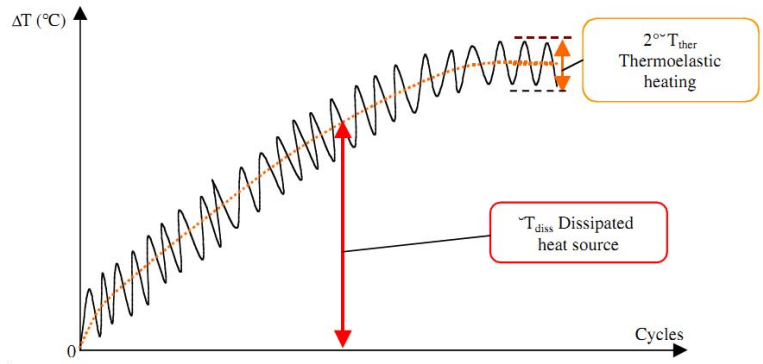
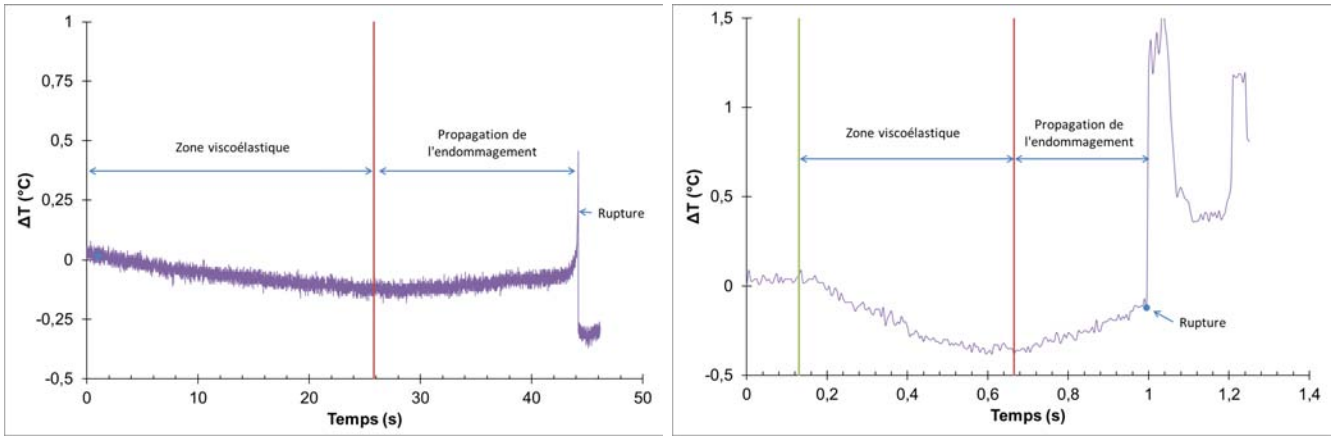


FIGURE 3.6.5 – Evolution de la température d'un composite lors d'essai de fatigue, d'après TOUBAL *et al.*[119]

Dans le cadre de cette thèse, l'évolution de la température des échantillons lors d'essais de traction uniaxiale monotone a été enregistrée via une caméra IR modèle FLIR SC7000 équipée d'un objectif de 50mm (figure 3.6.6). Les essais ont été pilotés en vitesse de traverse en s'assurant que la vitesse de déformation initiale résultante est similaire à celle utilisée pour les essais de traction uniaxiale (c'est à dire $10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ et $10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$).

FIGURE 3.6.6 – Configuration machine lors d'essai de traction uniaxiale avec enregistrement de la variation de température

La déformation plastique et l'endommagement des matériaux sont accompagnés d'une dissipation d'énergie, l'utilisation d'une caméra IR couplée à des essais de traction permet donc de mettre en évidence et de suivre les zones de dissipation forte et ainsi comprendre l'évolution de l'endommagement pendant ces essais. L'obtention de la température absolue par thermographie IR est complexe et demande une phase de calibration de l'émissivité des échantillons or la température réelle n'est pas nécessaire dans l'optique de visualiser l'amorçage et la propagation de l'endommagement dans les différentes formulations. Les différentes acquisitions ont donc été réalisées pour une émissivité de 1 et seules les tendances et les évolutions des températures sont à considérer.



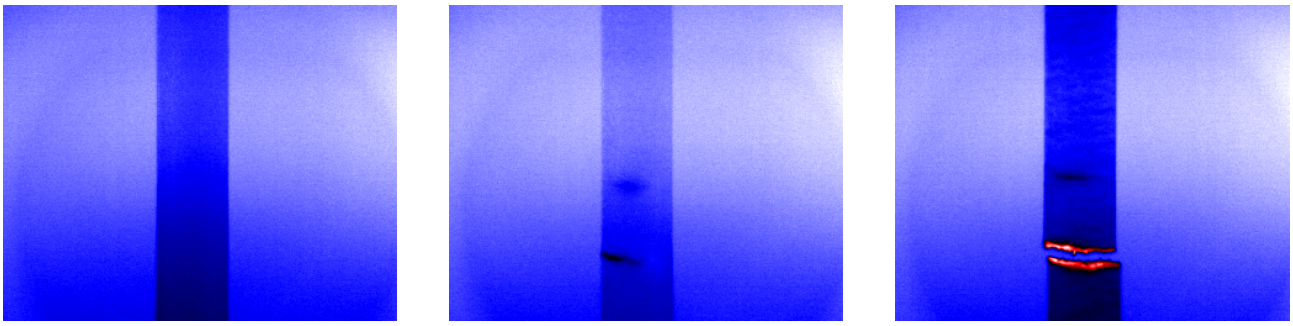
(a) $\dot{\varepsilon} = 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ (b) $\dot{\varepsilon} = 10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$

FIGURE 3.6.7 – Evolution de la température lors d'un essai de traction de PPC20

Les évolutions de température d'un point localisé sur la surface de rupture (figure 3.6.7), pour les deux vitesses de déformation, font apparaître deux domaines distincts (zone viscoélastique et zone de propagation de l'endommagement). Pendant le premier domaine, la tempé-

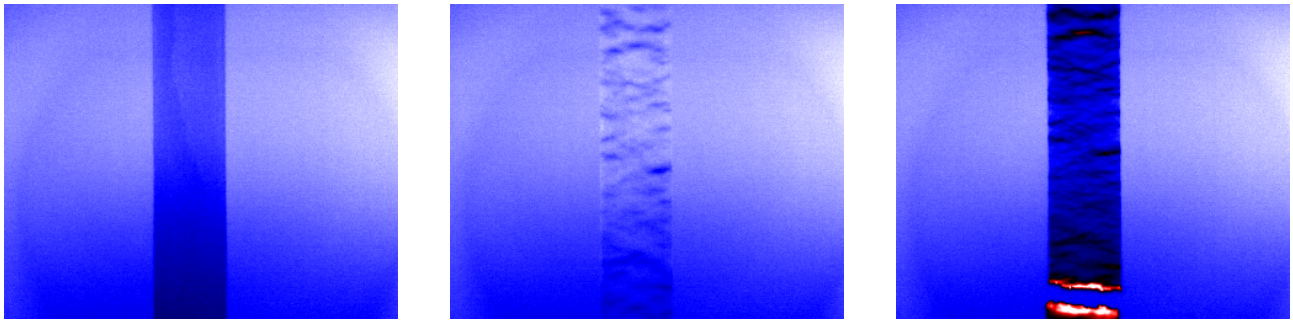
rature diminue correspondant à une zone où les déformations sont majoritairement élastiques, puis la température augmente indiquant le début de la phase de dissipation où l'endommagement s'amorce et se propage. La phase de propagation de l'endommagement (augmentation de la température) est rapidement suivie de la rupture de l'échantillon, indiquant une rupture sans signe précurseur fort et confirme davantage les conclusions des essais de traction uniaxiale sur la rupture « quasi-fragile » des composites (section 3.5).

Les thermogrammes IR aux temps caractéristiques - c'est à dire aux instants initiaux, aux débuts de l'amorçage de l'endommagement et à la rupture - pour ces deux essais sont fournis sur la figure 3.6.8. Ces images confirment l'hypothèse énoncée dans la section 3.5, après examen des éprouvettes *post-mortem* (figure 3.5.6), sur la présence de deux modes d'endommagement. En effet, à faible vitesse de déformation $10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ (figure 3.6.8a) l'endommagement s'amorce et se propage dans une seule et unique zone alors qu'à vitesse plus importante $10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$ (figure 3.6.8b) de multiples zones d'endommagement s'initient sur toute la partie utile de l'éprouvette.



température initiale — Amorçage de l'endommagement — Rupture de l'éprouvette

(a) Champ de température pour $\dot{\varepsilon} = 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$

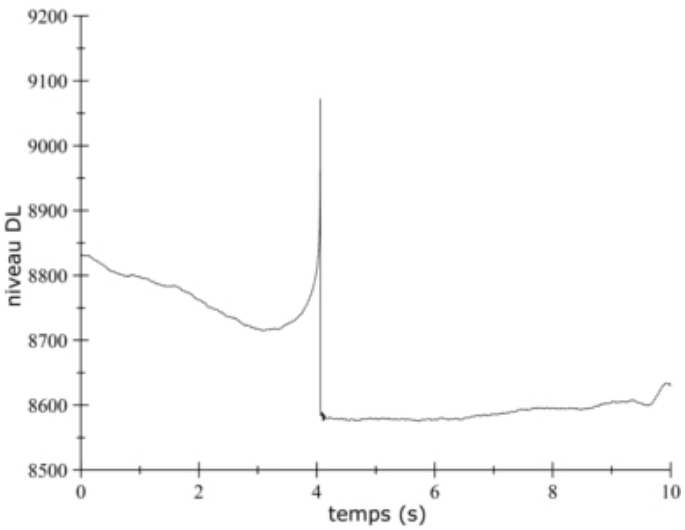


température initiale — Amorçage de l'endommagement — Rupture de l'éprouvette

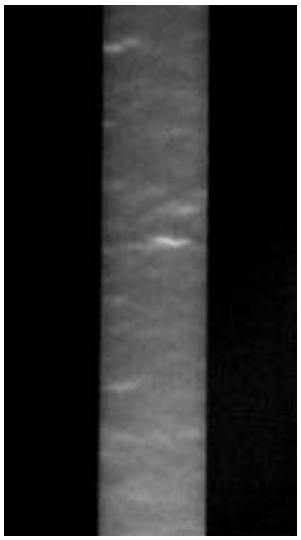
(b) Champ de température pour $\dot{\varepsilon} = 10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$

FIGURE 3.6.8 – Images en fausse couleur de l'évolution de la température de PPC20 sollicité en traction uniaxiale

Des éprouvettes de PP ont été sollicitées de la même manière et les résultats pour une vitesse de déformation de $10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$ sont présentés sur la figure 3.6.9. Ces essais permettent de conclure que le phénomène de multi-endommagement ne provient pas uniquement de la présence de nombreuses extrémités de fibres, origine de forte concentration de contrainte, mais est dû au comportement de la matrice. Cette étude a donc permis de confirmer la présence de deux modes d'endommagement suivant la vitesse de déformation, les observations *post-mortem* de la section suivante devraient permettre d'identifier les mécanismes physiques.



(a) Image de l'évolution de la température



(b) thermogramme

FIGURE 3.6.9 – Essai de traction monotone couplé IR sur du PP vierge à $\dot{\varepsilon} = 10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$

3.6.3 Observations *post-mortem*

La détection des mécanismes de rupture et leur évolution dans des composites à fibres courtes est un sujet prolifique dans la littérature. L'émission acoustique couplée à des observations microscopiques sont des outils couramment utilisés pour corréler un niveau sonore à un mode d'endommagement. Par exemple, MERAGHNI et BENZEGGAH [84] ont montré qu'il existe une corrélation entre le niveau sonore et le mécanisme physique d'endommagement correspondant dans des composites à fibres courtes orientées aléatoirement. De la même manière DE ROSA *et al.* [34] s'intéressent aux différents travaux sur l'endommagement des composites à renforts naturels et soulignent, dans leur review, que la chronologie des modes d'endommagement semble être établie mais les niveaux sonores dépendent du composite étudié (amortissement des ondes ultra-sonores différent suivant le comportement des fibres). Il est alors difficile, à partir d'un niveau, de déterminer le mécanisme d'endommagement des composites à renforts naturels.

Néanmoins, les phénomènes matriciels, les phénomènes interfaciaux, et les phénomènes liés au renfort sont les modes d'endommagement dominants de ces composites à renforts natu-

rels [23]. A faible niveau de contrainte, la décohésion fibre/matrice et la séparation axiale des fibres élémentaires sont majoritaire. En augmentant la contrainte, de nouveaux mécanismes apparaissent - le déchaussement des fibres et la microfissuration transverse de la matrice. A la contrainte maximale tous ces mécanismes sont accompagnés de multiples ruptures de fibres élémentaires. L'endommagement des fibres naturelles dépendent donc de la structure même de celles-ci et est schématisé sur la figure 3.6.10.

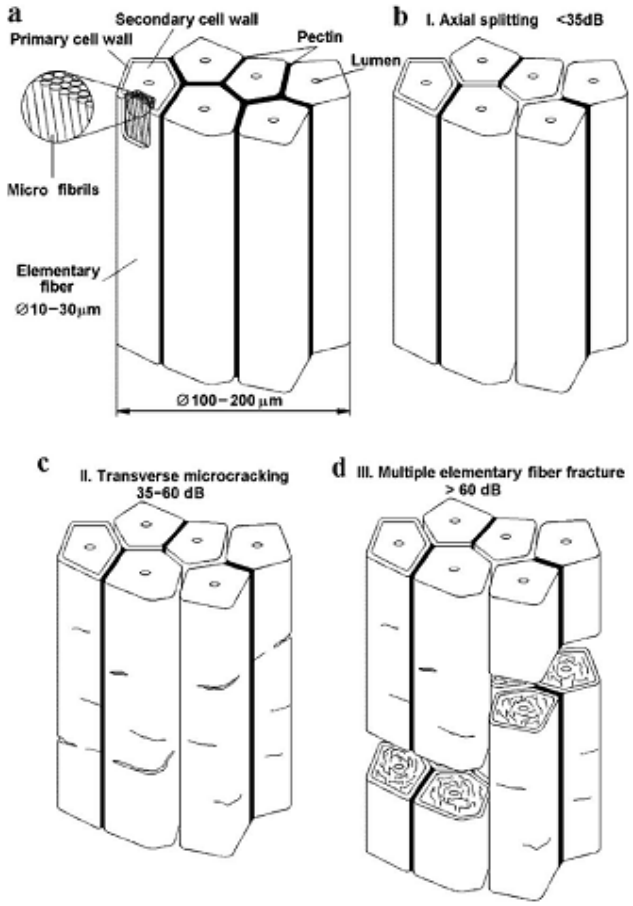


FIGURE 3.6.10 – Modes d'endommagement des fibres naturelles, d'après DE ROSA *et al.* [34]

Dans un premier temps, les faciès de rupture ont été observés en Microscopie Electronique à Balayage (MEB) en mode environnemental au LEM3 (Arts et Métiers Paris Tech centre de Metz) en collaboration avec DR RAPHAËL PESCI. Les photographies des faciès de la figure 3.6.11 montrent un endommagement longitudinal des fibres dû principalement au procédé d'extraction des fibres de chanvre de la plante expliquant les tendances observées lors des essais de traction (section 3.5), sur l'indépendance de la contrainte ultime supportée par les composites à la fraction massique de chanvre. De plus les observations semblent indiquer que les mécanismes d'endommagement sont localisés dans la matrice par fissuration transverse et/ou à l'interface fibre/matrice par décohésion - déchaussement.

FIGURE 3.6.11 – Images MEB des faciès de rupture des composites PP/Chanvre

Des informations complémentaires sur l'endommagement à cœur dans les composites PP / Chanvre étudiés ont été obtenues par des observations en tomographie aux rayons X d'éprouvettes *post-mortem*. Ces observations ont été réalisées sur le même appareil que celui ayant permis la caractérisation de la microstructure (voir chapitre 2). L'observation des éprouvettes rompues rend cependant difficile la détection des défauts, car la relaxation qui a eu le temps de se mettre en place aura fermé la plupart d'entre eux. Toutefois, la microplasticité de la matrice empêche certains défauts de se refermer et la fissuration de la matrice, visible sur les images de la figure 3.6.12, constitue le mécanisme d'endommagement majoritaire et de rupture des composites PP/Chanvre.

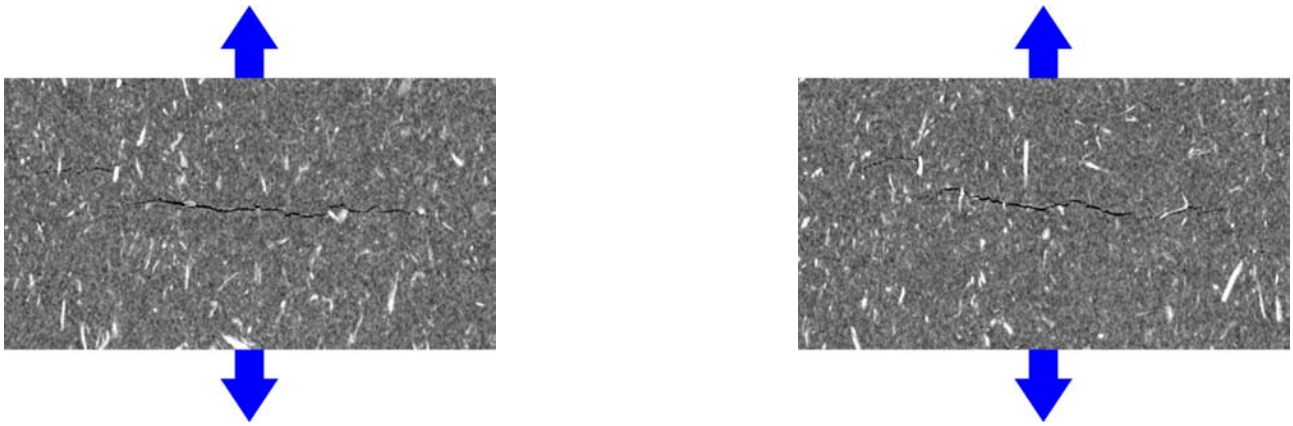
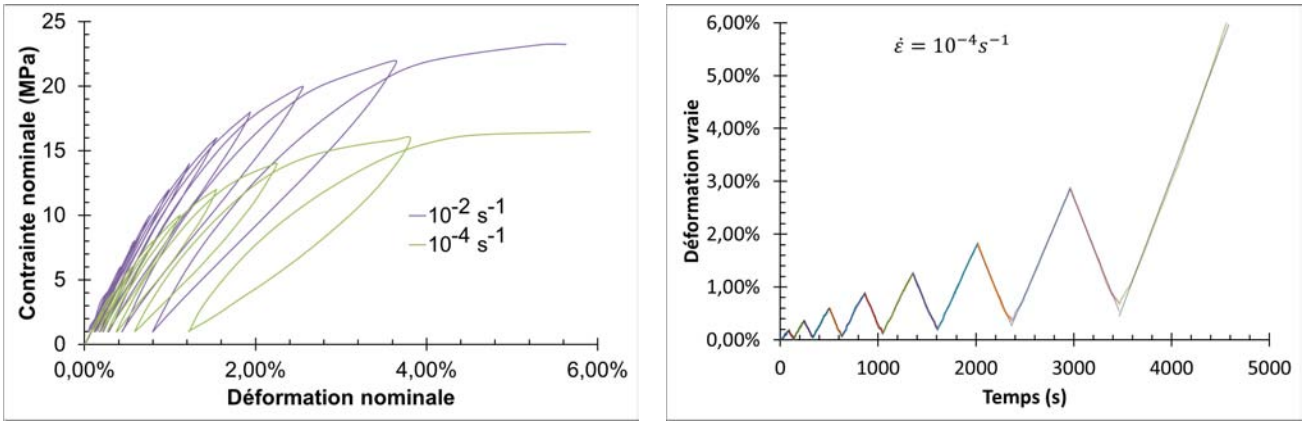


FIGURE 3.6.12 – Images en tomograhie aux rayons X de fissuration transverse de la matrice d'échantillons *post-mortem* de PPC10

3.7 Trajet de chargement complexe

La section précédente a permis d'identifier l'influence du chanvre sur le comportement global des composites PP/Chanvre. Le comportement non-linéaire des composites PP/chanvre résulte donc d'un couplage entre les comportements, anélatisque (déformation viscoélastique) et plastique, de la matrice et l'endommagement. Des essais de chargement complexe ont été réalisés pour mettre en évidence l'effet des fibres de chanvre sur les phénomènes d'hystérésis et d'endommagement et sont présentés dans cette section.

Des essais de charge-décharge à vitesse de déformation imposée ($10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ et $10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$) ont été réalisés dans les mêmes conditions que les essais de traction monotone (section 3.5), à savoir dans une enceinte à température régulée à 30°C. Ces essais consistent en des charges à des niveaux de contrainte croissants par cycle, suivies d'une décharge jusqu'à 1 MPa à vitesse de déformation imposée jusqu'à rupture de l'éprouvette. La vitesse de déformation à chaque charge et décharge est contrôlée. La réponse mécanique d'une des formulations à la sollicitation de charge-décharge décrite dans cette section est fournie sur la figure 3.7.1. L'objectif est de comprendre comment la fraction massique de chanvre modifie l'évolution des phénomènes dissipatifs (endommagement,...) au sein des composites.



(a) Courbes contrainte-déformation

(b) Contrôle de la vitesse de déformation le long d'un cycle

FIGURE 3.7.1 – Réponse du PPC5 au trajet de charge-décharge

3.7.1 L'énergie dissipée

Afin de quantifier l'importance des phénomènes dissipatifs le long du chemin de chargement, l'énergie dissipée et la fraction d'énergie dissipée ($\%E_{dissipée} = \dfrac{E_{dissipé}}{E_{totale}}$) pour chaque cycle composé d'une charge et d'une décharge ont été calculées selon le schéma de la figure 3.7.2.

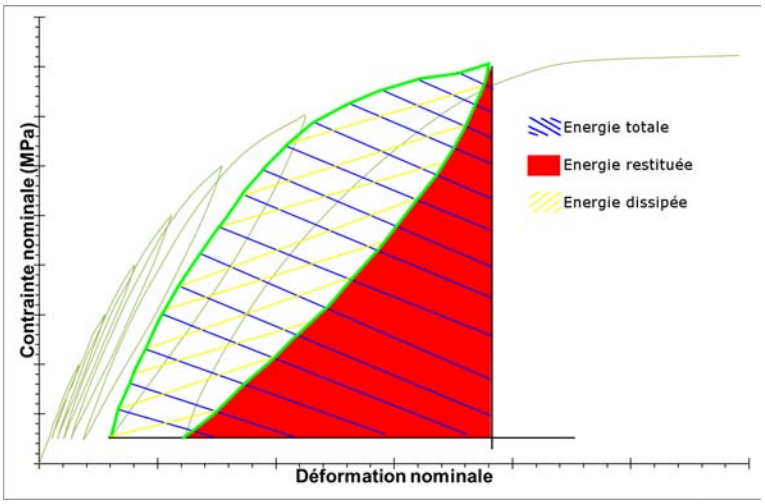
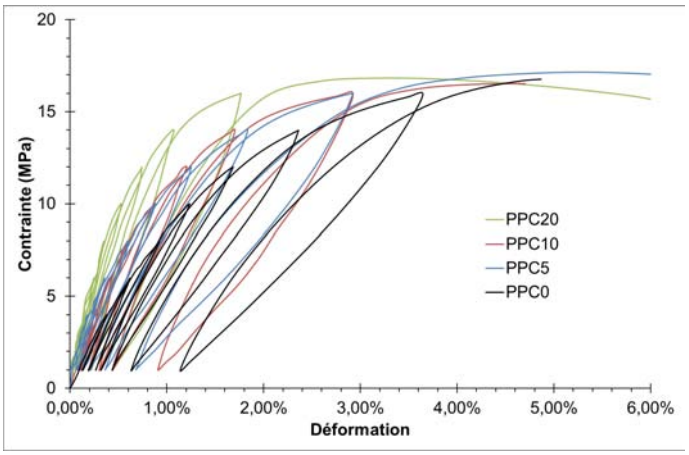


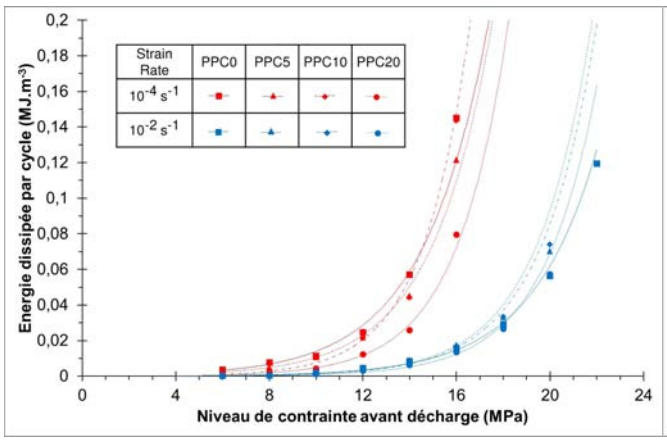
FIGURE 3.7.2 – Schématisation d la définition de l'énergie dissipée utilisée

La valeur et la fraction de l'énergie dissipée le long du chemin de chargement croissent, pour tous les composites, avec la contrainte appliquée (figures 3.7.3b et 3.7.3c), indiquant que les phénomènes dissipatifs, c'est à dire le couplage entre l'endommagement et les déformations anélastiques et viscoplastiques, sont de plus en plus importants à mesure que la contrainte appliquée est élevée. Cette remarque corrobore les tendances trouvées auparavant, à savoir de faibles déformations anélastiques dans les premières phases de la déformation obtenues en DMA et une forte sensibilité à la vitesse de déformation constatée lors des essais de traction jusqu'à rupture. L'augmentation de la rigidité avec la vitesse de déformation notée dans la section 3.5 modifie le chemin mécanique subi par le matériau. En effet, pour une même variation de contrainte, la déformation balayée est plus faible pour une vitesse de déformation de $10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$ que lors d'un essai à $10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$, d'autre part, le temps est un paramètre essentiel pour permettre à ces mécanismes de s'activer, c'est pourquoi les graphiques des figures 3.7.3b et 3.7.3c indiquent une énergie dissipée calculée, pour un niveau de contrainte fixé, plus importante pour de faibles vitesses de déformation ($10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$).

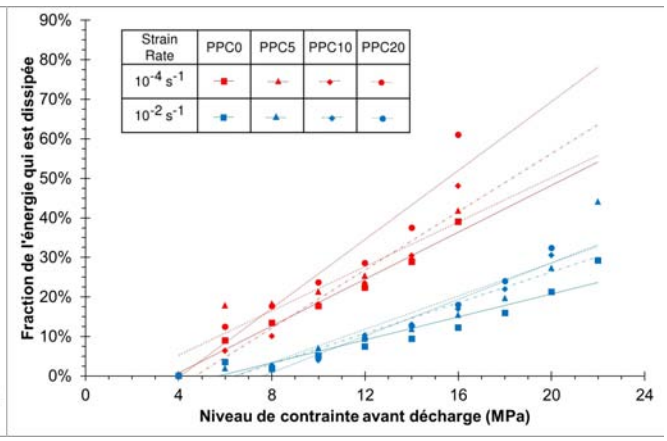
Les commentaires ci-dessus précisent que les phénomènes dissipatifs sont de plus en plus présents à mesure que la déformation augmente mais un intérêt particulier a été porté à l'effet du chanvre sur la mise en place et l'activation de ces mécanismes. Les superpositions des courbes contrainte-déformation et des énergies dissipées sont présentées sur les graphiques de la figure 3.7.3. Le rôle de rigidification des fibres de chanvre sur la matrice de PP est toujours distinguable sur la figure 3.7.3a mais la comparaison des énergies dissipées fait apparaître peu ou pas de différences significatives entre les quatre formulations indiquant que les mécanismes principaux de dissipation prennent place dans la matrice. La modélisation proposée devra donc s'intéresser à une caractérisation complète de la matrice et ses phénomènes dissipatifs (endommagement par multifissuration).



(a) Courbes contrainte-déformation



(b) Energie dissipée le long du trajet de chargement



(c) Fraction de l'énergie de déformation dissipée

FIGURE 3.7.3 – Comparaison du comportement en charge-décharge des composites PP/chanvre

3.7.2 Description de l'endommagement

KACHANOV [63, 64] introduit la théorie de la mécanique des dommages continus pour un cas isotrope de traction uniaxiale, ces travaux ont été par la suite étendus au fluage par RABOTNOV [105]. Cette théorie introduit le concept de contrainte effective basé sur la considération d'une configuration fictive non-endommagée à comparer à la configuration endommagée actuelle. De nombreuses théories, reposant sur ce concept, ont été développées pour rendre compte de l'endommagement dans les matériaux à partir de variables d'endommagement (scalaires ou tensorielles). Ces variables représentent les dégradations moyennes des matériaux dues à différents types d'endommagement à l'échelle microscopique (cavités, microfissures, ...). Les premiers développements, à l'aide de variable scalaire dans un cas d'endommagement isotrope, se sont très vite compliqués pour rendre compte de l'anisotropie révélée expérimentalement. Les variables d'endommagement sont représentées, à présent, par des tenseurs irréductibles d'ordre pair [92].

LEMAITRE [76] synthétise les différents travaux effectués dans les années 70-80 pour décrire le comportement de milieux micro-fissurés [77, 75]. Plus récemment VOYIADJIS et KATTAN [123] résument les travaux des années 90 appliquant la « mécanique des dommages continus » aux composites à matrice métallique [94] et s'intéressent plus récemment aux composites stratifiés [122, 124].

Néanmoins, dans une première approche, il est alors possible de définir une variable d'endommagement scalaire par l'affaiblissement des propriétés élastiques lors de décharges élastiques (LEMAITRE et CHABOCHE [78]). Les essais, décrits dans la section précédente, permettent donc de suivre l'évolution de l'endommagement le long du trajet de chargement par la détermination du module tangent lors des différentes décharges.

L'évolution de l'endommagement dans le PP vierge pour les deux vitesses de déformation étudiées, présentée sur la figure 3.7.4, révèle deux courbes distinctes traduisant ainsi une évolution différente des mécanismes d'endommagement en fonction de la vitesse, corroborant les conclusions issues des observations en thermographie IR.

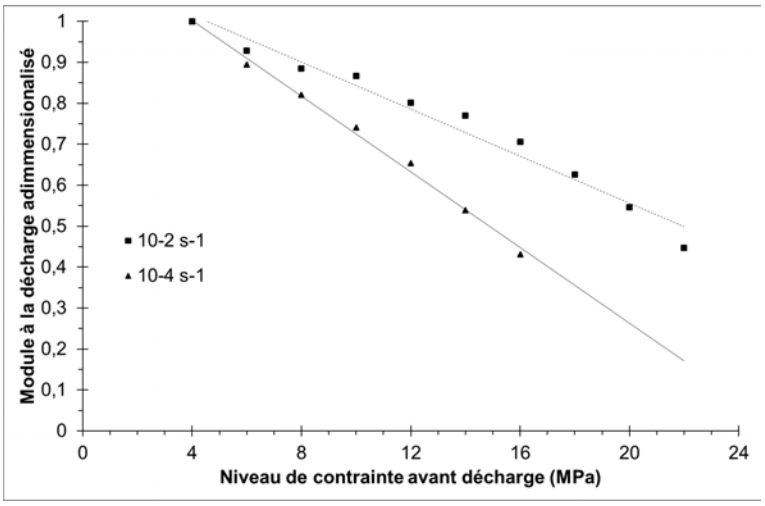
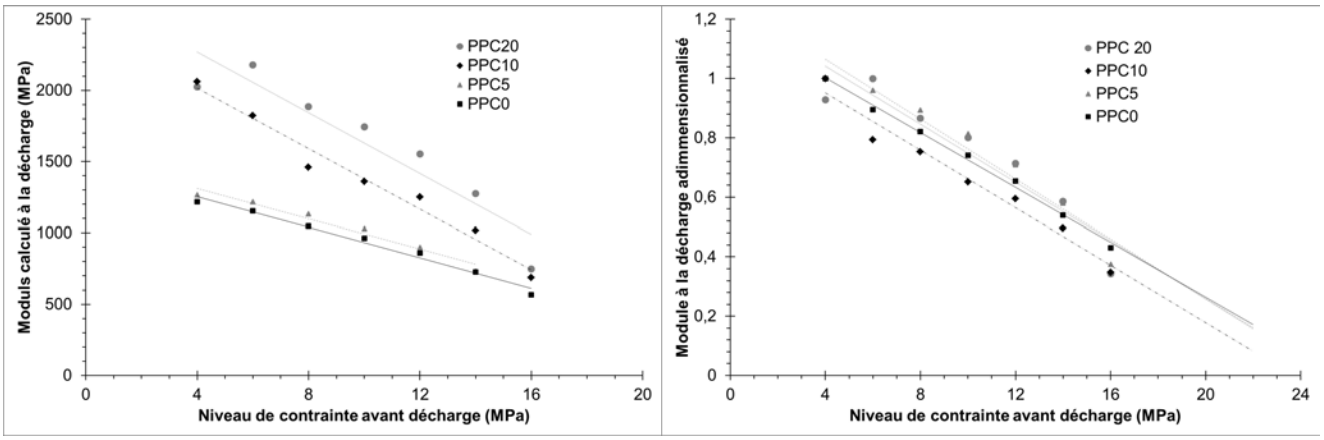
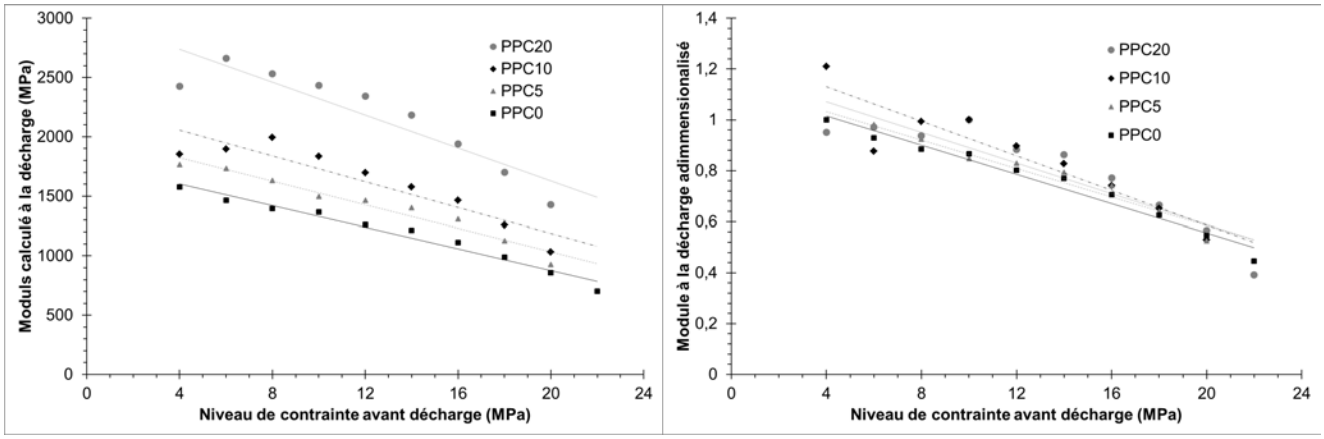


FIGURE 3.7.4 – Influence de la vitesse de déformation sur les modules à la décharge du PPC0

De plus, la comparaison des matériaux composites pour une vitesse de déformation fixée (figures 3.7.5a et 3.7.5b) confirme le rôle de renfort des fibres de chanvre, en effet l'ajout de chanvre augmente les modules tangents calculés aux décharges. Cependant la représentation des modules tangents adimensionnalisés par rapport au module tangent de la première décharge ne fait apparaître aucune différence significative dans l'évolution de l'endommagement et conforte l'idée que les mécanismes d'endommagement se situent principalement dans la matrice.



(a) $\dot{\varepsilon} = 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$



(b) $\dot{\varepsilon} = 10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$

FIGURE 3.7.5 – Evolution des modules tangents lors des cycles de charges-décharge

3.7.3 Analyse des déformations rémanentes

Un trajet de chargement similaire au précédent a été repris mais couplé à des paliers de maintien à 1MPa pendant 20 min après une charge et une décharge consécutives. Les essais ont été réalisés dans les mêmes conditions que les essais de traction monotone (voir section 3.5), à savoir dans une enceinte à température régulée à 30°C pour une vitesse de déformation de $\dot{\varepsilon} = 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$. Les trois décharges débutent après des niveaux de contrainte de 4, 8 et 16 MPa. Le but de ces essais est de mettre en évidence la présence d'une déformation rémanente dans la décomposition de la déformation totale.

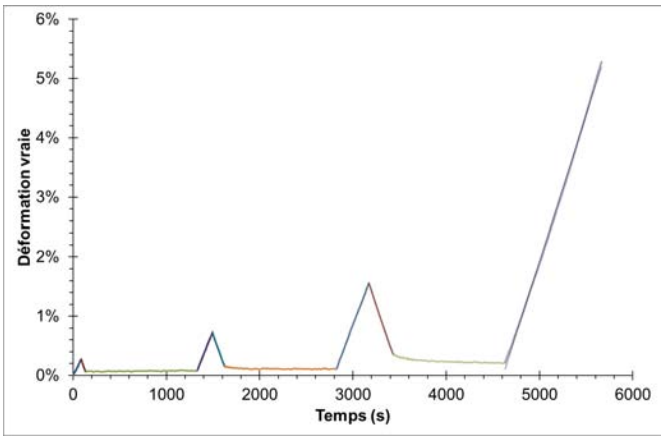
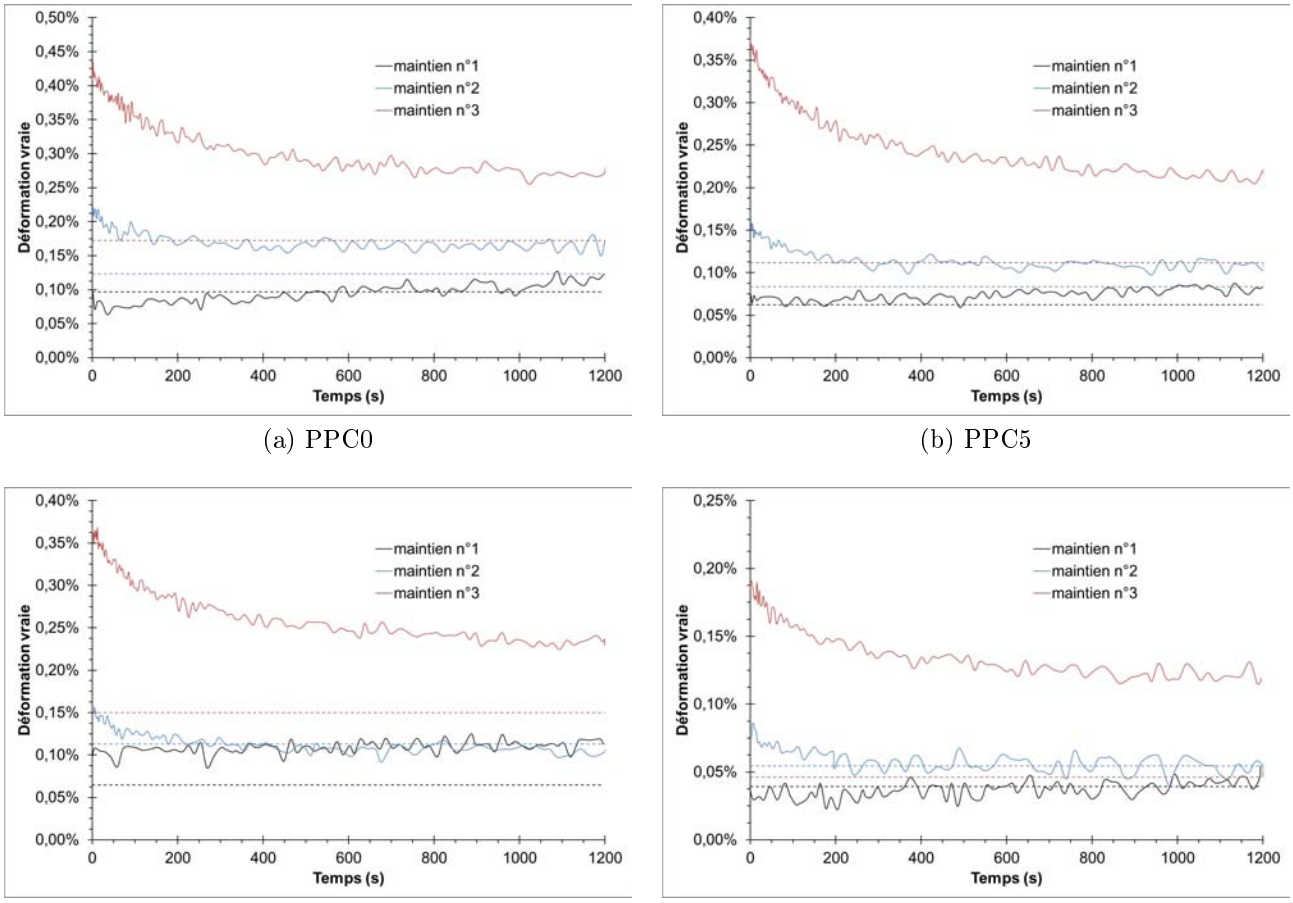


FIGURE 3.7.6 – Evolution de la déformation le long du trajet de chargement pour le PPC5

Les courbes de la figure 3.7.7 montrent une déformation qui diminue lors du maintien à 1 MPa et met en évidence une déformation recouvrable après un certain temps. Cette déformation recouvrable est plus importante si la contrainte, atteinte avant la décharge et le maintien, est plus importante.

Au bout de 20 min la déformation mesurée atteint un palier, signifiant que toute la déformation recouvrable a été récupérée, la déformation stabilisée est supérieure à la déformation qui serait atteinte sans déformation permanente, matérialisée sur la figure 3.7.7 par les lignes en pointillées. Ceci suggère la présence d'une déformation rémanente dans les composites de PP/Chanvre.



(a) PPC0

(b) PPC5

(c) PPC10

(d) PPC20

FIGURE 3.7.7 – Evolution de la déformation pendant un palier de contrainte de 1 MPa après un cycle de charge-décharge

3.8 Conclusion du chapitre

Le comportement des composites PP/Chanvre a été analysé par l'intermédiaire de plusieurs méthodes expérimentales en prêtant une attention particulière à l'influence de la fraction massique de chanvre dans le composite par rapport à la matrice seule et à la vitesse de déformation dans le domaine quasi-statique.

Ces essais ont montré que les fibres de chanvre agissaient comme éléments de renforts par l'augmentation du module de conservation en DMA et une augmentation du module tangent initial lors des essais de traction uniaxiale monotone. De surcroit, le développement de l'endommagement, dans les derniers stades de la déformation, provoque une diminution du module tangent avec l'augmentation de la fraction massique de chanvre. Par exemple le module tangent pour $\varepsilon = 3\,\%$, $\dot{\varepsilon} = 10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ de la matrice est nettement supérieur à celui du PPC20.

Le choix de la matrice est prépondérant pour expliquer le comportement du composite. En effet, la quantification des phénomènes dissipatifs par l'intermédiaire de cycle de charge-

décharge a mis en évidence que les paramètres principaux gouvernant le comportement des composites s'amorcent principalement dans la matrice. Ainsi l'endommagement et les déformations anélastiques sont gouvernés par le comportement de celle-ci. Le comportement non-linéaire est principalement viscoélastique (anélastique), puisque même si une méthode a été mise en place pour mettre en évidence l'existence d'une déformation rémanente sa mesure quantitative précise reste difficile.

Les différentes techniques expérimentales mises en place ont confirmé le mode de rupture « quasi-fragile » des composites PP/chanvre. En effet, leur comportement s'est avéré non-linéaire présentant des boucles d'hystérésis lors des essais de charge-décharge que l'on peut attribué, dans une certaine mesure, à un endommagement par fissuration de la matrice occasionnant une perte de rigidité à chaque cycle.

La modélisation développée dans la suite du travail s'appuiera fortement sur les conclusions de ce chapitre mais afin d'en simplifier la mise en place certaines hypothèses simplificatrices seront admises et leur impact sur la modélisation seront détaillées dans la discussion du chapitre 4.

Chapitre 4

Modélisation du comportement

4.1 Introduction

La modélisation du comportement de composites passe par la modélisation de chaque élément : la matrice, les renforts et l'interface.

Les essais expérimentaux (chapitre 3) ont montré que l'endommagement de la matrice par fissuration est prépondérant dans le comportement des composites. De plus les propriétés amortissantes révélées en DMA sont faibles (section 3.4.2). La modélisation de la matrice s'appuiera donc sur un formalisme micromécanique couplé aux principes de la mécanique des milieux continues. Dans ce cadre, l'hypothèse d'une matrice élastique-endommageable dont la seule source de non-linéarité est l'endommagement sera adoptée. Ces lois constitutives seront obtenues par une approche de transition d'échelle développée sur les matériaux fragiles affaiblis par des fissures multiples [18], appliquées avec succès aux matériaux du génie civil (roche,...) [127, 50, 130]. En effet, ces matériaux présentent une similitude avec les nôtres : l'endommagement et le mode de rupture. Nos conclusions sur le mode de rupture « quasi-fragile » par multi-fissuration de la matrice sont similaires.

Afin de modéliser les renforts fibreux, une structure maillée sera générée à partir des informations issues des analyses par tomographie aux rayons X (chapitre 2) permettant d'intégrer la distribution d'orientation des fibres. Les fibres de chanvre seront considérées comme des solides élastiques isotropes. Cette démarche de microstructure reconstruite offre la possibilité de prendre en compte les facteurs géométriques prépondérants dans le comportement des composites à fibres : la fraction volumique et le facteur de forme.

Ce chapitre débutera par un bref rappel des principes de base de la théorie des méthodes par changement d'échelle suivi par la présentation de la démarche développée sur les matériaux multi-fissurés et de son application au cas particulier que constitue la matrice PP. Une présentation des étapes permettant la génération d'un Volume Elémentaire Représentatif (VER) de la microstructure des renforts fibreux des composites PP/Chanvre sur le logiciel éléments-finis

Abaqus® est par la suite proposée. La dernière partie sera dédiée à la prédiction du comportement des composites PP/chanvre, une étude critique par comparaison avec les résultats expérimentaux sera proposée. Une analyse de la sensibilité de ce modèle à la longueur des renforts fibreux conclura ce chapitre.

4.2 Modélisation du comportement de la matrice

4.2.1 Principes de base des méthodes de transition d'échelle

Les méthodes par transition d'échelle dans les milieux sont généralement basées sur le problème de l'inclusion d'Eshelby [43]. Les méthodes d'homogénéisation ont pour objectif d'approximer ou d'encadrer le comportement macroscopique d'un milieu hétérogène connaissant la microstructure et le comportement thermomécanique de chacune des phases.

Soit d la dimension caractéristique d'une hétérogénéité et D la dimension de la structure, l'objectif majeur, et la condition de validité des méthodes d'homogénéisation, est de trouver une échelle de description l du Volume Elémentaire Représentatif (VER) tel que :

$$d \ll l \ll D \tag{4. 1}$$

La condition 4. 1 définit la notion de matériau macroscopiquement homogène et microscopiquement hétérogène.

La résolution de ce type de problème peut être décomposée en trois étapes :

La représentation définition du VER : taille, constituants...

La localisation analyse mécanique du VER, lien entre l'état de contrainte $\overline{\overline{\sigma}}(r)$ (déformation $\overline{\overline{\varepsilon}}(r)$) des phases r et l'état de contrainte $\overline{\overline{\Sigma}}$ (déformation $\overline{\overline{E}}$) du milieu effectif : $\overline{\overline{\sigma}}(r) = \widetilde{B}(r) : \overline{\overline{\Sigma}}$ ($\overline{\overline{\varepsilon}}(r) = \widetilde{A}(r) : \overline{\overline{E}}$), appelées équations de localisation

L'homogénéisation détermination du comportement du Milieu Homogène Equivalent (MHE)

Soit un domaine Ω de volume V, considéré comme un VER composé de N inclusions r, pour lequel on considère un champs de déplacement $\overline{u}(x) = \overline{\overline{E}} \cdot \overline{x} \quad (\forall \overline{x} \in \partial\Omega)$. Ce champs de déplacement traduit une déformation homogène au bord du domaine. Le champ de déformation local ε doit être compatible $\overline{\overline{\varepsilon}} = \frac{1}{2}(\overline{u} +^t \overline{u})$ conduit à la relation $\overline{\overline{E}} = \frac{1}{V}\int_V \overline{\overline{\varepsilon}} dV = \langle \overline{\overline{\varepsilon}} \rangle$ .Une démarche analogue en considérant une contrainte homogène conduit à l'autre équation de moyenne $\overline{\overline{\Sigma}} = \frac{1}{V}\int_V \overline{\overline{\sigma}} dV = \langle \overline{\overline{\sigma}} \rangle$

L'étape d'homogénéisation consiste à obtenir les propriétés effectives du VER à l'aide des relations de moyennes précédentes et les relations de localisation :

$$\sigma_{ij}(r) = C_{ijkl}(r)\,\varepsilon_{kl}(r) = C_{ijkl}(r)\,A_{klmn}(r)\,E_{mn}$$

$$\Sigma_{ij} = \frac{1}{V}\int_V \sigma_{ij}(r)\,dV = \frac{1}{V}\int_V C_{ijkl}(r)\,A_{klmn}(r)\,dV \cdot E_{mn}$$

d'où

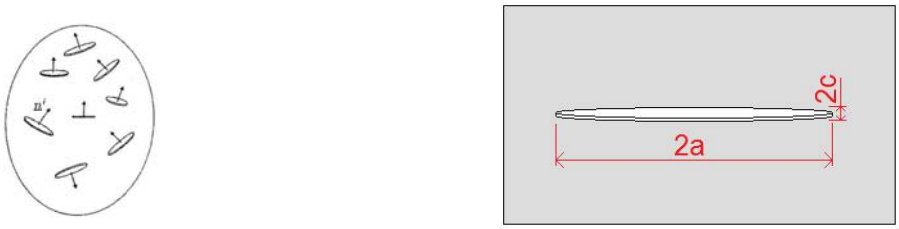
$$C^{eff}_{ijkl} = \langle C_{ijmn}(r)\,A_{mnkl}(r)\rangle = \frac{1}{V}\int_V C_{ijkl}(r)\,A_{klmn}(r)\,dV \tag{4. 2}$$

Le choix d'un schéma d'homogénéisation (Bornes de VOIGT et REUSS, Bornes d'HASHIN-SHTRIKMAN, MORI-TANAKA, ou Auto-cohérent,...) ainsi que la description du VER (forme des inclusions, description géométrique de la microstructure) permettent d'obtenir l'expression des tenseurs de localisation ($\widetilde{A}$ ou/et $\widetilde{B}$) et donc d'obtenir une approximation des propriétés effectives du milieu considéré.

4.2.2 Application aux matériaux multi-fissurés

4.2.2.1 Définition du problème

Dans le contexte de la modélisation de solides multi-fissurés, le VER est constitué d'une matrice solide élastique isotrope affaiblie par des familles de fissures de forme *penny-shaped*. Chaque famille de fissures est décrite par son rapport d'aspect noté $\epsilon = \frac{c}{a}$ et sa normale $\overline{n}$ (figure 4.2.1).



(a) (b)

FIGURE 4.2.1 – (a) Schématisation du VER et (b) forme des inclusions de type *penny-shaped*

La détermination des propriétés effectives de milieu fissuré via le formalisme micromécanique (présenté pour un seul schéma dans la section suivante) passe par la détermination du tenseur des rigidités élastiques $\widetilde{C}_f$ et du tenseur d'ESHELBY $\left(\widetilde{S}_\varepsilon\right)$ d'inclusions de forme ellipsoïdales aplaties. Ce dernier dépend non seulement du rapport d'aspect ϵ mais aussi de leur normale $\vec{n}$. Les expressions de ce tenseur pour des inclusions plongées dans un milieu infini isotrope sont disponibles dans l'ouvrage de MURA[87]. Nous donnerons ici uniquement à titre indicatif les expressions analytiques du tenseur d'ESHELBY pour une fissure de forme *penny-shaped* de normale $\overline{n} = \overline{e}_3$ définie par

$$\frac{x_1^2}{a^2} + \frac{x_2^2}{a^2} + \frac{x_3^2}{c^2} \leq 1$$

considérant un rapport d'aspect $\epsilon = \frac{c}{a}$ faible, les composantes non nulles du tenseur d'ESHELBY sont les suivantes :

$$S_{1111} = S_{2222} = \frac{13 - 8\nu^m}{32\,(1-\nu^m)} \cdot \pi \cdot \epsilon, \qquad S_{3333} = 1 - \frac{1 - 2 \cdot \nu^m}{1-\nu^m} \cdot \frac{\pi}{4} \cdot \epsilon,$$

$$S_{1122} = S_{2211} = \frac{8 \cdot \nu^m - 1}{32\,(1-\nu^m)} \cdot \pi \cdot \epsilon, \qquad S_{1133} = S_{2233} = \frac{2 \cdot \nu^m - 1}{8\,(1-\nu^m)} \cdot \pi \cdot \epsilon,$$

$$S_{3311} = S_{3322} = \frac{\nu^m}{1-\nu^m}\left(1 - \frac{4 \cdot \nu^m + 1}{8 \cdot \nu^m} \cdot \pi \cdot \epsilon\right), \qquad S_{1212} = \frac{7 - 8 \cdot \nu^m}{32\,(1-\nu^m)} \cdot \pi \cdot \epsilon,$$

$$S_{1313} = S_{2323} = \frac{1}{2}\left(1 + \frac{\nu^m - 2}{1-\nu^m} \cdot \frac{\pi}{4}\epsilon\right)$$

4.2.2.2 Détermination des propriétés effectives selon un schéma de MORI-TANAKA

L'influence de fissures plongées dans une matrice a fait l'objet de nombreuses recherches. Ainsi KACHANOV a traité ce problème de matrice - fissures par une approche directe de la mécanique de la rupture et a montré que les interactions entre fissures peuvent être prépondérantes [64, 65].

La détermination des propriétés effectives de milieu fissuré est doublement singulier [17]. En effet, les solutions sont obtenues, comme présentées par la suite, par deux passages à la limite successifs. Le premier consiste à considérer des propriétés élastiques des inclusions nulles ($\widetilde{C}_f = 0$) puis à faire tendre le rapport d'aspect ϵ vers 0, ou inversement.

De par leur adéquation aux microstructures de type *matrice-inclusions*, les différents schémas d'homogénéisation (Dilué, MORI-TANAKA, ...) offrent un cadre théorique intéressant pour estimer l'impact des fissures sur le comportement macroscopique du milieu. Cette section s'intéressera uniquement à décrire les équations permettant d'estimer les propriétés effective d'un milieu multi-fissuré selon le schéma de MORI-TANAKA (MT). Pour une description plus détaillée des concepts des autres schémas d'homogénéisation on pourra se référer au chapitre 3 du livre écrit sous la direction de BORNERT *et al.* [17].

Dans le cadre théorique du schéma de MT, les inclusions i sont plongées dans une matrice soumise à une déformation homogène au bord $\overline{\overline{E}}^m$ différente de la déformation homogène effective $\overline{\overline{E}}$. La solution du problème de l'inclusion équivalente d'ESHELBY s'écrit dans ce cas

$$\overline{\overline{\varepsilon}}^i = \left[\widetilde{\mathrm{I}} + \widetilde{P}^i_\varepsilon : \left(\widetilde{C}^i - \widetilde{C}^m\right)\right]^{-1} : \overline{\overline{E}}^m \tag{4. 3}$$

où le tenseur de HILL $\widetilde{P}^i_\varepsilon$, tel que $\widetilde{S}^i_\varepsilon = \widetilde{P}^i_\varepsilon : \widetilde{C}^m$ a été introduit. La relation de moyenne présentée dans le paragraphe 4.2.1 conduit à

$$\overline{\overline{E}}^m = \left[\varphi^m \widetilde{\mathrm{I}} + \sum_{i=1}^{N} \varphi^i \left[\widetilde{\mathrm{I}} + \widetilde{P}^i_\varepsilon : \left(\widetilde{C}^i - \widetilde{C}^m\right)\right]^{-1}\right]^{-1} : \overline{\overline{E}} \tag{4. 4}$$

Les équations 4. 3 et 4. 4 permettent de déduire le tenseur de localisation pour le schéma de MT

$$\widetilde{A}^i = \left[\widetilde{\mathrm{I}} + \widetilde{P}^i_\varepsilon : \left(\widetilde{C}^i - \widetilde{C}^m\right)\right]^{-1} : \left[\varphi^m \widetilde{\mathrm{I}} + \sum_{i=1}^{N} \varphi^i \left[\widetilde{\mathrm{I}} + \widetilde{P}^i_\varepsilon : \left(\widetilde{C}^i - \widetilde{C}^m\right)\right]^{-1}\right]^{-1} \tag{4. 5}$$

Les propriétés effectives du milieu considéré s'obtiennent alors par la relation 4. 6

$$\widetilde{C}^{eff} = \widetilde{C}^m + \sum_{i=1}^{N} \varphi^i \left(\widetilde{C}^i - \widetilde{C}^m\right) : \left[\widetilde{\mathrm{I}} + \widetilde{P}^i_\varepsilon : \left(\widetilde{C}^i - \widetilde{C}^m\right)\right]^{-1} : \left[\varphi^m \widetilde{\mathrm{I}} + \sum_{i=1}^{N} \varphi^i \left[\widetilde{\mathrm{I}} + \widetilde{P}^i_\varepsilon : \left(\widetilde{C}^i - \widetilde{C}^m\right)\right]^{-1}\right]^{-1} \tag{4. 6}$$

Dans notre cas particulier, les inclusions sont des fissures dont les propriétés élastiques peuvent être considérées comme nulles, la relation permettant d'obtenir les propriétés d'un milieu multi-fissuré s'écrit donc :

$$\widetilde{C}^{eff} = \widetilde{C}^m - \sum_{i=1}^{N} \varphi^i \widetilde{C}^m : \left[\widetilde{\mathrm{I}} - \widetilde{S}^i_\varepsilon\right]^{-1} : \left[\varphi^m \widetilde{\mathrm{I}} + \sum_{i=1}^{N} \varphi^i \left[\widetilde{\mathrm{I}} - \widetilde{S}^i_\varepsilon\right]^{-1}\right]^{-1} \tag{4. 7}$$

où $\widetilde{S}^i_\varepsilon$ est le tenseur d'ESHELBY pour une famille d'inclusions i. L'équation 4. 7 peut se mettre sous la forme en utilisant $\left\langle \widetilde{A}^j \right\rangle = \widetilde{\mathrm{I}}$:

$$\widetilde{C}^{eff} = \varphi^m \widetilde{C}^m \left[\varphi^m \widetilde{\mathrm{I}} + \sum_{i=1}^{N} \varphi^i \left[\widetilde{\mathrm{I}} - \widetilde{S}^i_\varepsilon\right]^{-1}\right]^{-1} \tag{4. 8}$$

L'évaluation de l'équation 4. 8 présente une difficulté : la détermination du tenseur $\left(\widetilde{\mathrm{I}} - \widetilde{S}^i_\varepsilon\right)^{-1}$ dépendant de l'orientation et du rapport d'aspect ϵ de la fissure. En effet, celui-ci est singulier lorsque le rapport d'aspect ϵ tends vers 0. Il est alors nécessaire de réécrire la fraction volumique de vide φ^i en introduisant un paramètre densité de fissure d^i :

$$\varphi^i = \frac{4}{3}\pi a_i^2 c_i \mathcal{N}_i = \frac{4}{3}\pi \epsilon d^i \tag{4. 9}$$

où $\mathcal{N}_i$ est le nombre de fissure par unité de volume. En injectant la relation précédente dans l'expression 4. 8, les propriétés effectives prennent la forme de

$$\widetilde{C}^{eff} = \varphi^m \widetilde{C}^m \left[\varphi^m \widetilde{\mathrm{I}} + \sum_{i=1}^{N} \frac{4}{3} \pi d^i \epsilon \left[\widetilde{\mathrm{I}} - \widetilde{S}^i_\varepsilon \right]^{-1} \right]^{-1} \tag{4. 10}$$

qui fait apparaître le terme $\epsilon \left[\mathrm{I} - \widetilde{S}^i_\varepsilon \right]^{-1}$ or on montre que cette expression admet une limite finie quand ϵ tend vers 0, notée $\widetilde{T}^i$:

$$\widetilde{T}^i = \lim_{\epsilon \to 0} \epsilon \left[\widetilde{\mathrm{I}} - \widetilde{S}^i_\varepsilon \right]^{-1} \tag{4. 11}$$

On pourra par exemple se référer à la thèse de Deudé [35] pour obtenir les composantes non nulles de ce tenseur dans le cas d'une fissure orientée. Les propriétés effectives du milieu multi-fissuré selon un schéma de MT s'écrivent alors :

$$\widetilde{C}^{eff} = \varphi^m \widetilde{C}^m : \left(\varphi^m \widetilde{\mathrm{I}} + \frac{4}{3} \pi \sum_{i=1}^{N} d^i \widetilde{T}^i \right)^{-1} \tag{4. 12}$$

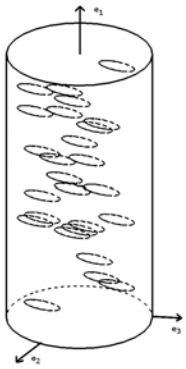


Figure 4.2.2 – Représentation d'une matrice solide affaiblie par une seule famille de fissure

Dans la suite on fera l'hypothèse que la densité de fissure est faible et que la fraction volumique de matrice est sensiblement proche de 1. De plus, les essais expérimentaux pour des essais de traction uniaxiale, ont montré un seul est unique système de fissure de normale parallèle à l'axe de sollicitation principale (figure 4.2.2), induisant une isotropie transverse du milieu multi-fissuré. Sous ces hypothèses le tenseur des rigidités effectifs s'écrit alors :

$$\widetilde{C}^{eff} \approx \widetilde{C}^m : \left(\widetilde{\mathrm{I}} + \frac{4}{3} \pi d \left(\overline{n} \right) \widetilde{T} \left(\overline{n} \right) \right)^{-1} \tag{4. 13}$$

4.2.3 Intégration de la loi de comportement élastique avec endommagement progressif

On s'intéresse maintenant à l'intégration de ce schéma d'homogénéisation dans un contexte d'endommagement progressif dans le cas d'une variable scalaire. La modélisation utilisée par la suite s'appuie donc sur l'évaluation des propriétés effectives du milieu multi-fissuré, présentée dans la section précédente (équation 4. 13) et sur les lois d'évolution de l'endommagement décrites dans ce paragraphe. On adoptera ici un raisonnement thermodynamique similaire à celui utilisé dans le contexte de la modélisation macroscopique [36, 130].

L'énergie libre Ψ macroscopique du VER (équation 4. 14) peut être formulée comme une fonction de la déformation macroscopique $\overline{\overline{E}}$ et des variables internes, composées ici uniquement du paramètre densité de fissure $d(\overline{n})$ que l'on notera par la suite d^n pour ne pas alourdir les équations.

$$\Psi = \frac{1}{2} \cdot \overline{\overline{E}} : \widetilde{C}^{eff}\left(d^n\right) : \overline{\overline{E}} \tag{4. 14}$$

Deux lois d'état peuvent donc être déduites de la forme de l'énergie libre Ψ, la première donne accès à la contrainte macroscopique et s'obtient par dérivation de 4. 14 par $\overline{\overline{E}}$:

$$\overline{\overline{\Sigma}} = \frac{\partial \Psi}{\partial \overline{\overline{E}}} = \widetilde{C}^{eff}\left(d^n\right) : \overline{\overline{E}} \tag{4. 15}$$

La seconde correspond à la force thermodynamique associée à l'endommagement et présente une analogie avec le taux de restitution d'énergie considéré en mécanique linéaire de la rupture en substituant d^n à l'aire de la fissure :

$$F^{d^n} = -\frac{\partial \Psi}{\partial d^n} = -\frac{1}{2}\overline{\overline{E}} : \frac{\partial \widetilde{C}^{eff}\left(d^n\right)}{\partial d^n} : \overline{\overline{E}} \tag{4. 16}$$

Reste à présent à décrire l'amorçage et la propagation de l'endommagement. La démarche employée ici, proposée par Andrieux *et al.* [5], consiste à coupler les résultats micromécaniques à l'approche thermodynamique dans le contexte de la formulation macroscopique. La dissipation macroscopique $\mathcal{D}$ d'un milieu avec propagation d'endommagement s'écrit :

$$\mathcal{D} = F^{d^n} \dot{d^n}$$

Nous adopterons alors un critère d'endommagement de la forme suivante :

$$f\left(d^n, F^{d^n}\right) = F^{d^n} - \mathcal{R}\left(d^n\right) \leq 0 \tag{4. 17}$$

où $\mathcal{R}\left(d^n\right)$ correspond à la résistance à la propagation de fissures, deux cas de figure peuvent alors se présenter et sont résumés dans l'équation 4. 18

$$\begin{cases} Si \quad F^{d^n} < \mathcal{R}\left(d^n\right) \quad alors \quad \dot{d^n} = 0 \quad \text{pas de propagation de l'endommagement} \\ Si \quad F^{d^n} = \mathcal{R}\left(d^n\right) \quad alors \quad \dot{d^n} \geq 0 \quad \text{possibilité de propagation de l'endommagement} \end{cases} \tag{4. 18}$$

Le formalisme de l'énergie libre et la représentation de l'endommagement via une seul variable interne induit une hypothèse sur la propagation des fissures et considère que celles-ci se propagent dans leur propre plan, c'est à dire que leur normale $\overline{n}$ reste constante. Une modélisation plus physique pourrait être obtenue en considérant des normales évolutives et seraient donc considérées comme des variables internes. Cette hypothèse simplificatrice permet néanmoins le choix d'un schéma standard de propagation similaire à celle de l'écoulement plastique et s'écrit :

$$\left| \begin{array}{l} \dot{d^n} = \dot{\lambda}\dfrac{\partial f\left(F^{d^n}, d^n\right)}{\partial F^{d^n}} = \dot{\lambda} \quad ; \quad \dot{\lambda} \geq 0 \\ soit \quad \dot{d^n} = \begin{cases} 0 \quad si \quad f\left(F^{d^n}, d^n\right) < 0 \quad ou \quad f\left(F^{d^n}, d^n\right) = 0 \; et \; \dot{f}\left(F^{d^n}, d^n\right) < 0 \\ \dot{\lambda} \quad si \quad f\left(F^{d^n}, d^n\right) = 0 \; et \; \dot{f}\left(F^{d^n}, d^n\right) = 0 \end{cases} \end{array} \right. \tag{4. 19}$$

le multiplicateur de l'endommagement $\dot{\lambda}$ est déterminé par la condition de consistance

$$\dot{f}\left(F^{d^n}, d^n\right) = 0$$

La prise en compte de la non-linéarité dans le comportement se fait de manière classique en définissant un opérateur tangent. Le point de départ consiste à différencier la première loi d'état (équation 4. 15) et conduit à :

$$\dot{\overline{\overline{\Sigma}}} = \dot{\widetilde{C}^{eff}} : \overline{\overline{E}} + \widetilde{C}^{eff} : \dot{\overline{\overline{E}}} \tag{4. 20}$$

or $\dot{\widetilde{C}^{eff}} = \dfrac{\partial \widetilde{C}^{eff}}{\partial d^n}\dot{d^n}$, ce qui conduit en considérant l'évolution de d^n à la formulation tangent suivante :

$$\dot{\overline{\overline{\Sigma}}} = \widetilde{C}_t^{eff} : \dot{\overline{\overline{E}}}$$

où $\widetilde{C}_t^{eff}$ est l'opérateur tangent (confère annexe B page 153).

$$\widetilde{C}_t^{eff} = \widetilde{C}^{eff} - \frac{1}{G}\frac{\partial F^{d^n}}{\partial \overline{\overline{E}}} \otimes \frac{\partial F^{d^n}}{\partial \overline{\overline{E}}} \quad \text{avec} \quad G = -\frac{\partial f\left(F^{d^n}, d^n\right)}{\partial d^n}$$

Pour la suite, nous considérons de manière classique (MARIGO[83]) une forme affine de la résistance à l'endommagement $\mathcal{R}(d^n) = a_0 + a_1 d^n$.

L'intégration numérique de cette loi se fera sous forme incrémentale associée à une méthode de prédiction-correction. En d'autres termes nous supposons connu l'état de contrainte au pas j (contrainte, déformation et endommagement) l'état de contrainte au pas $j+1$ est obtenu en supposant *a priori* que l'endommagement ne se propage pas. Nous vérifions par la suite si ce nouvel état de contrainte est acceptable (non-violation du critère d'endommagement $f\left(F^{d^n}, d^n\right)$) , si c'est le cas alors l'incrément est réellement élastique et nous passons au pas $j+2$. Dans le cas contraire une correction est apportée, l'endommagement se propage et on détermine la nouvelle valeur du paramètre densité de fissure d^n avec la condition de consistance et nous réévaluons l'état de contrainte au pas $j+1$. Cette démarche a été codée en Fortran et implémentée dans Abaqus®. La méthode, permettant d'identifier les paramètres de cette loi de comportement, pour la matrice, sera présentée dans la section suivante.

4.2.4 Identification de la loi de comportement de la matrice

Le modèle, développé dans ce chapitre, permettant d'obtenir le comportement avec endommagement progressif d'un matériau isotrope élastique affaibli par des micro-fissures, fait apparaître cinq paramètres. Deux correspondent au comportement élastique de la matrice non endommagée et peuvent être déterminés à partir d'essais expérimentaux, le coefficient de Poisson ν^m et le module de Young E^m, deux définissent la résistance à la propagation de l'endommagement, notés a_0 et a_1 dans la section précédente. Le dernier paramètre correspond à la densité de fissure initiale d_0^n.

Ce dernier peut être accessible par des observations du matériau dans son état initial, les composites analysés en tomographie ont montré un taux moyen de micro-porosité de l'ordre de 2%, nous ferons alors l'hypothèse que ces micro-pores sont aussi présents dans la matrice. Pour toutes les compositions modélisées ici, d_0^n sera donc égal à 0.02.

Les sollicitations de traction uniaxiale (chapitre 3 section 3.5) ont permis de déterminer le coefficient de Poisson du PP ($\nu^m = 0.4$), nous ferons l'hypothèse que celui-ci correspond à celui de la matrice non-endommagée. De plus, selon le formalisme adopté ici, le module tangent, d'environ 1200 MPa pour une vitesse de déformation de $10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ déterminé par la pente à l'origine de la courbe contrainte-déformation, correspond à celui du matériau affaibli par des micro-porosités. La valeur du paramètre du modèle E^m devra donc être supérieure à 1200 MPa et tenir compte de d_0^n. Seuls les deux paramètres liés à l'évolution de l'endommagement sont, *a priori*, inconnus.

Afin de connaître tous les paramètres liés à la modélisation du comportement en traction du PP vierge, une démarche de minimisation de l'écart entre la prédiction du modèle numérique et les essais expérimentaux a été entreprise. Cependant l'écriture de la loi de comportement en

élasticité ne permet pas de reproduire la sensibilité à la vitesse de déformation mise en évidence au chapitre 3, cela signifie qu'un jeu de paramètres est à déterminer par vitesse de déformation.

Pour cela, un modèle éléments-finis constitué d'un seul élément hexaédrique à 8 nœuds a été développé sur Abaqus®. Le volume modélisé correspond exactement à celui des composites PP/Chanvre que l'on modélisera par la suite. Nous simulerons un essai de traction piloté en déformation par des états de déformation successifs en imposant à l'une des faces de l'élément un déplacement variable permettant d'obtenir une déformation macroscopique maximale de 6%, les autres conditions aux limites sont résumées sur la figure 4.2.3.

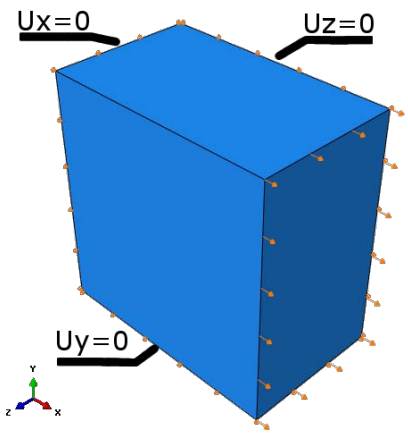


FIGURE 4.2.3 – Modèle mono-élément de PP pour validation de la routine

Les paramètres permettant d'obtenir « les meilleures prédictions » pour les deux vitesses de sollicitation sont fournis dans le tableau4.1.

TABLEAU 4.1 – Récapitulatif des paramètres de la loi de comportement du PP

Vitesse	E^m [MPa]	ν^m	a_0 [mJ · mm^{-3}]	a_1 [mJ · mm^{-3}]	d_0^n
$10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$	1600	0.4	0.05	0.001	0.02
$10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$	1700	0.4	0.15	0.05	0.02

La comparaison entre la prédiction et les points expérimentaux pour une vitesse de déformation de $10^{-4}s^{-1}$ (figure 4.2.4) semble être satisfaisante, néanmoins deux critiques majeures peuvent être formulées. L'hypothèse, simplificatrice, d'un comportement purement élastique-endommageable du PP, adoptée dans la modélisation engendre une rupture de pente dans la courbe contrainte-déformation avant la propagation de l'endommagement. De plus cette modélisation ne prend pas en considération tous les mécanismes physiques intervenant dans le comportement de la matrice (microplasticité, interaction des fissures, endommagement qui devient macroscopique), le modèle surestime la contrainte pour des déformations proches de la déformation à rupture.

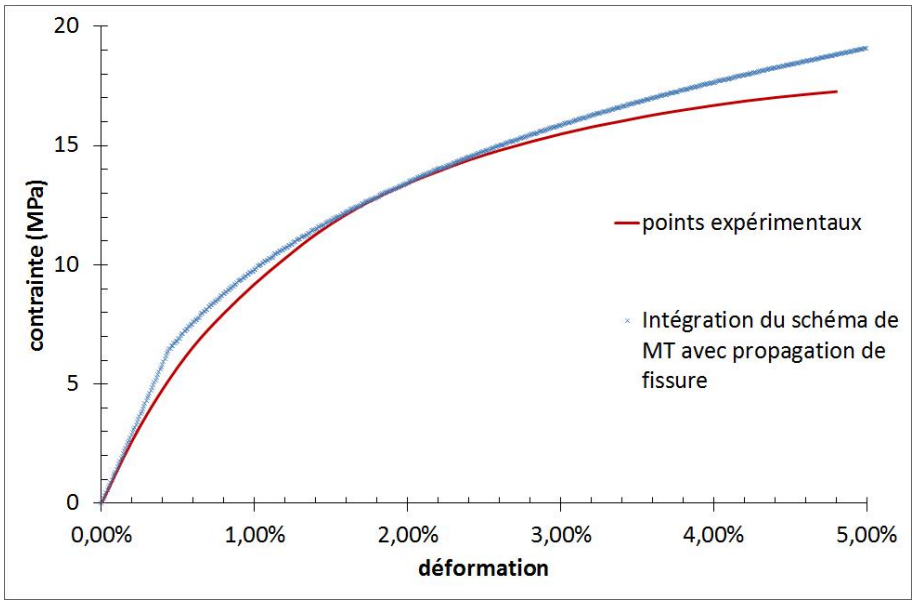


FIGURE 4.2.4 – Comparaison prédiction modèle / essai expérimental pour vitesse de déformation $\dot{\varepsilon} = 10^{-4}s^{-1}$

Le jeu de paramètres permettant de prédire le comportement en traction du PP à $10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$ (tableau 4.1) correspond à un matériau plus rigide dont le seuil initial d'endommagement est plus haut mais dont la propagation est plus rapide de manière à respecter les conclusions issues de l'étude expérimentale. Les résultats de la prédiction sont fournis sur la figure 4.2.5.

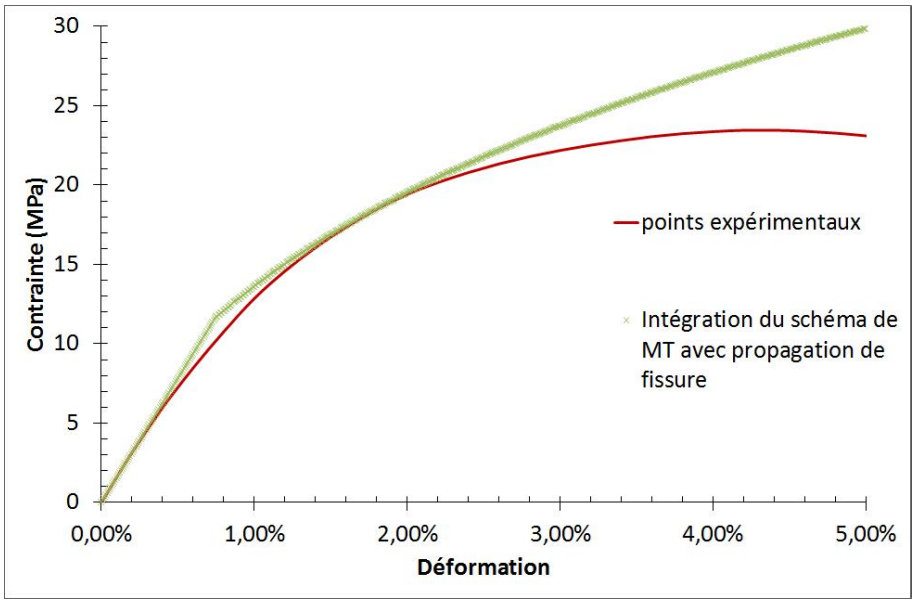


FIGURE 4.2.5 – Comparaison prédiction modèle / essai expérimental pour vitesse de déformation $\dot{\varepsilon} = 10^{-4}s^{-1}$

Malgré les hypothèses simplificatrices du modèle (élasticité, non-interaction des fissures) les prédictions pour une vitesse de déformation $\dot{\varepsilon} = 10^{-2}s^{-1}$ restent satisfaisantes. Néanmoins, les performances sont moindres comparées aux faibles vitesses de déformation ($10^{-4}s^{-1}$), en effet comme le montre la figure 4.2.5, la surestimation des contraintes pour les déformations proches de la rupture est plus importante que sur la figure 4.2.4. Ceci peut être expliqué par le nombre plus important de mécanismes plus complexes à ces vitesses de déformation. En effet, les photographies de la figure 3.5.6 laissent entrevoir un nombre plus important de fissures et donc des interactions plus fortes entre elles or celles-ci ne sont pas prises en compte dans la modélisation.

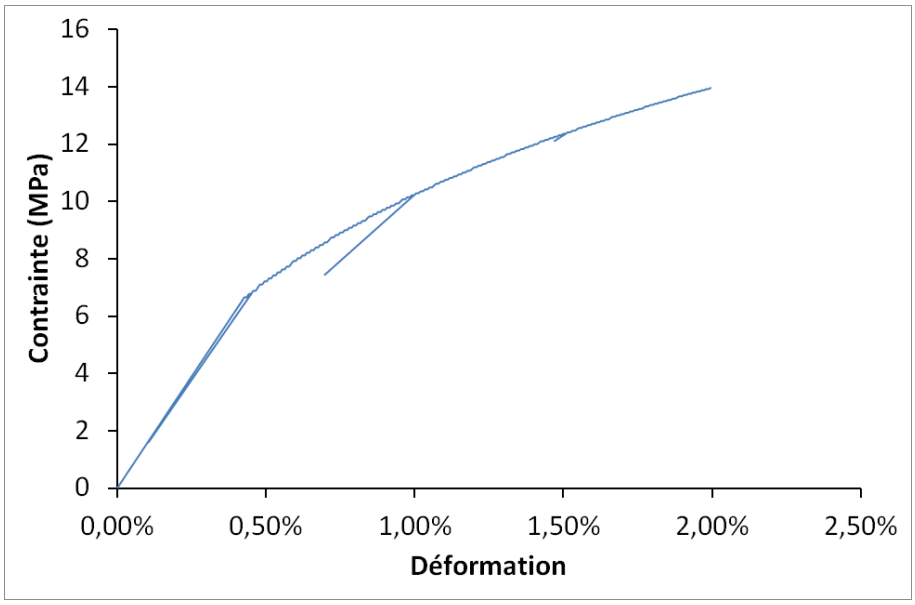


FIGURE 4.2.6 – Simulation EF d'un cycle de charge-décharge

Afin d'illustrer les limites de ce modèle, un cycle de charge-décharge similaire à celui présenté au chapitre 3 section 3.7 a été appliqué. Cette étude permet de déterminer numériquement la variable d'endommagement du paragraphe 3.7.2. L'hypothèse d'élasticité sans critère de fermeture-ouverture des fissures ne peut pas reproduire les boucles d'hystérésis observées expérimentalement (figure 4.2.6). De plus les pentes des droites des variables d'endommagement divergent de celle obtenues expérimentalement pour les deux vitesses de déformations étudiées (figure 4.2.7), soulignant ainsi que l'endommagement tel que décrit dans le modèle ne permet pas de reproduire tous les mécanismes. En effet celui-ci considère un endommagement microscopique or expérimentalement l'endommagement revêt à partir d'un certain seuil un caractère macroscopique.

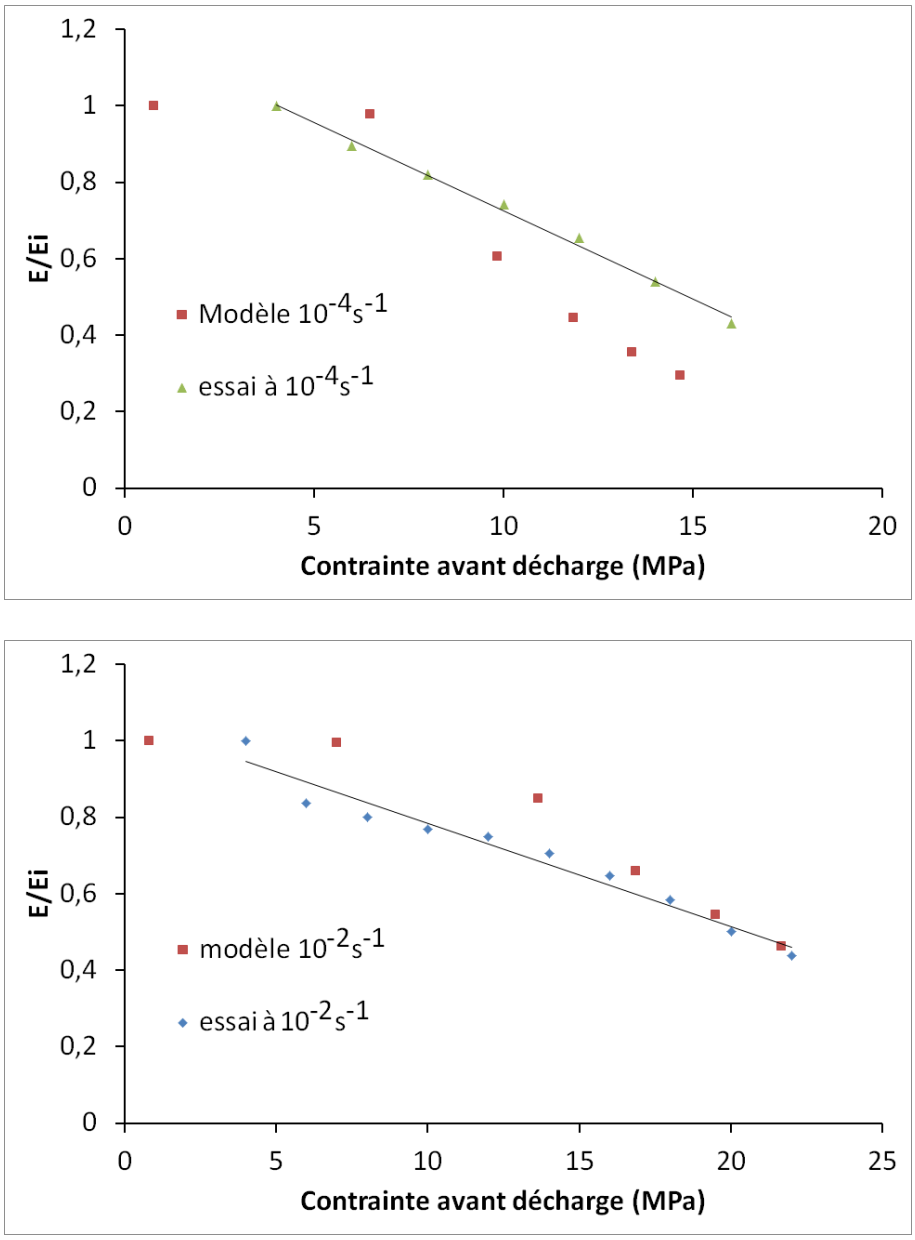


FIGURE 4.2.7 – Variable d'endommagement obtenue numériquement

4.3 Modélisation des renforts fibreux

4.3.1 Reconstruction de la microstructure

L'étude du comportement des composites PP/chanvre, décrite dans le chapitre 3, a permis de valider l'effet renforçant des fibres de chanvre (augmentation du module de conservation en DMA, augmentation de la pente à l'origine...) et la prépondérance du comportement de la matrice sur le comportement non-linéaire (endommagement par multi-fissuration, ...).

On s'intéresse à présent à la modélisation des renforts des composites PP/chanvre. Afin de rendre compte de l'interaction complexe entre les fibres, un modèle éléments-finis est généré par un algorithme de reconstruction de la microstructure à partir des données statistiques de la caractérisation de la microstructure du chapitre 2. Cette démarche est schématisée sur la figure 4.3.1.

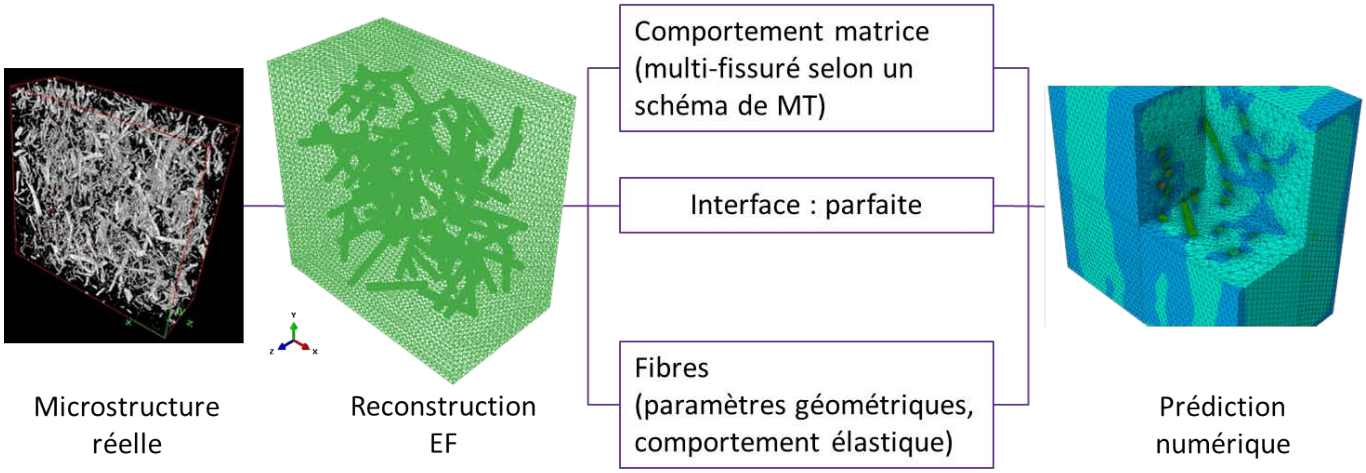


FIGURE 4.3.1 – Démarche proposée pour la prédiction du comportement des composites PP/Chanvre

4.3.1.1 La définition du VER

Il est possible à partir des images issus des observations en tomographie aux rayons X d'obtenir directement un volume maillé, mais cette technique est très gourmande en nombre d'éléments si nous voulons reproduire très finement la forme des fibres [128]. Pour maitriser et limiter le nombre d'éléments, un algorithme permettant d'intégrer la distribution d'orientation des fibres et leur longueur est élaboré. Celui-ci permet de reconstruire un modèle E-F s'appuyant sur des géométries idéales de fibres. Le volume « reconstruit » doit être suffisamment grand pour contenir un nombre suffisant de fibres permettant de rendre compte de leurs interactions. De plus, une description fine de la géométrie des fibres en terme de longueur, de diamètre, d'orientation et répartition doit être intégrée.

Le volume du modèle sera un parallélépipède de dimensions $1 \times 1 \times 0,6 mm^3$ permettant d'obtenir suffisamment de fibres pour être représentatif de l'étude statistique de la microstructure, présentée au chapitre 2, et de limiter raisonnablement le nombre d'éléments.

TAKAO et TAYA [114] ont montré que l'orientation et la répartition des fibres étaient des paramètres plus importants, pour rendre compte de l'influence de renforts dans des composites

à fibres courtes, que la fonction de distribution du rapport d'aspect ($R = \frac{L}{\varnothing}$). Toutes les fibres seront alors modélisées par des cylindres de longueur 250 μm pour un diamètre de 30 μm, représentant la valeur du rapport d'aspect moyen. La forme des fibres a été préférentiellement décrite par des cylindres plutôt que la forme classiquement admise, des ellipsoïdes. En effet, les observations des faciès de rupture au MEB ont montré que le cylindre permettrait de mieux décrire la forme générale des fibres (voir figure 4.3.2). Cependant, il faut garder à l'esprit que cette forme engendrera des effets de bords en augmentant artificiellement les contraintes dans la matrice [90].

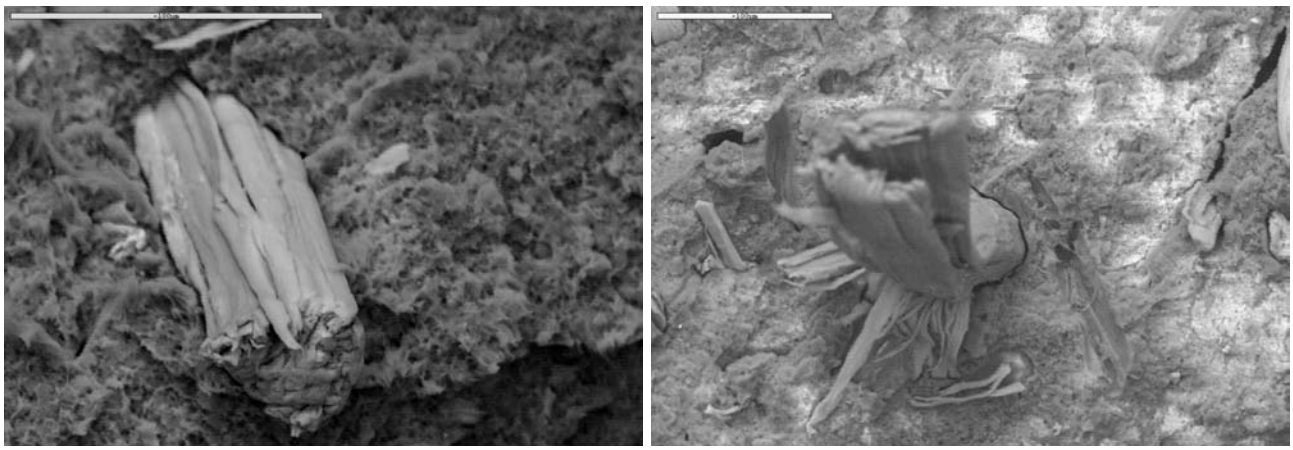


FIGURE 4.3.2 – Observations MEB de la forme des fibres de chanvre

L'élaboration des composites est effectuée de façon industrielle en considérant des fractions massiques, cependant la reconstruction de la microstructure par éléments-finis nécessite de connaitre la fraction volumique cible de chacune des compositions décrites au chapitre 1 section 1.6. La masse volumique de la matrice est connue ($\rho_{matrice} = 905\,\mathrm{kg} \cdot \mathrm{m}^{-3}$) mais celle des fibres est inconnue, la masse volumique moyenne des fibres de chanvre ($\rho_{fibre} = 1530\,\mathrm{kg} \cdot \mathrm{m}^{-3}$) de la littérature a été utilisé pour déterminer la fraction volumique cible selon l'équation 4. 21 :

$$f_v = \frac{\rho_{matrice} \cdot f_m}{\rho_{matrice} \cdot f_m + \rho_{fibre} \cdot (1 - f_m)} \tag{4. 21}$$

où f_v et f_m correspondent respectivement à la fraction volumique et à la fraction massique de fibres de chanvre. Le tableau résume les fractions massiques et volumiques cibles des différentes compositions.

TABLEAU 4.2 – Résumé des fraction massiques et volumiques des différentes compositions de composite PP/Chanvre

Désignation	f_m	f_v
PPC5	$5,00\%$	$3,02\%$
PPC10	$10,00\%$	$6,17\%$
PPC20	$20,00\%$	$12,88\%$

Le volume décrit plus haut sera considéré dans la suite comme étant représentatif du volume global de la zone utile des éprouvettes et sera traité comme tel.

4.3.1.2 Algorithme de reconstruction de la microstructure

Il s'agit ici de présenter les étapes permettant de créer automatiquement une géométrie de composites PP/Chanvre satisfaisant les conclusions tirées au chapitre 2 sur la microstructure des échantillons. La répartition des centres de gravité devra être aléatoire (pas d'agrégats). De plus, la distribution d'orientation des fibres, caractérisée par deux angles (θ, ϕ), est telle que toutes les valeur de l'angle θ, défini dans le plan d'injection, soient équiprobables (isotrope dans le plan) et que la probabilité qu'une fibre prenne une orientation ϕ_1, par rapport à la normale au plan d'injection, suit une loi normale de moyenne 75° et d'écart-type 0.5 rad.

La future géométrie (ou microstructure) est obtenue à partir d'une méthode additive de fibres programmée sous VBA, suivant l'enchaînement suivant :

- On considère que n fibres sont déjà sélectionnées et qu'elles respectent toutes les conditions énoncées ci-dessus et ne sont pas en interférence
- Les coordonnées de la fibre i sont alors générées (x_{G_i}, y_{G_i}, z_{G_i}, θ_i, ϕ_i) telles qu'elles respectent toutes les conditions énoncées ci-dessus. Les coordonnées sont alors contrôlées pour être certain que cette fibre i ne rentrera pas en interférence avec l'une des autres.
  - La distance minimale entre l'axe de la fibre i et celles des n autres fibres déjà acceptées doit être supérieur à d_{min}

    $$d_{min} = \varnothing_{fibre} + \Delta$$

    la valeur Δ est choisie pour permettre un maillage correct du volume en laissant un espace d'au moins un élément entre les fibres ($\Delta \approx \frac{\varnothing}{5}$)
    Soit $\overline{m}$ un vecteur orthogonal aux deux axes des fibres, G_i les coordonnées du centre de gravité de la fibre i et G_j celui de la fibre j, la distance entre les axes des fibres est obtenue selon la formule de l'équation 4. 22

$$d = \frac{\left|\overline{G_jG_i} \cdot \overline{m}\right|}{||\overline{m}||} \tag{4. 22}$$

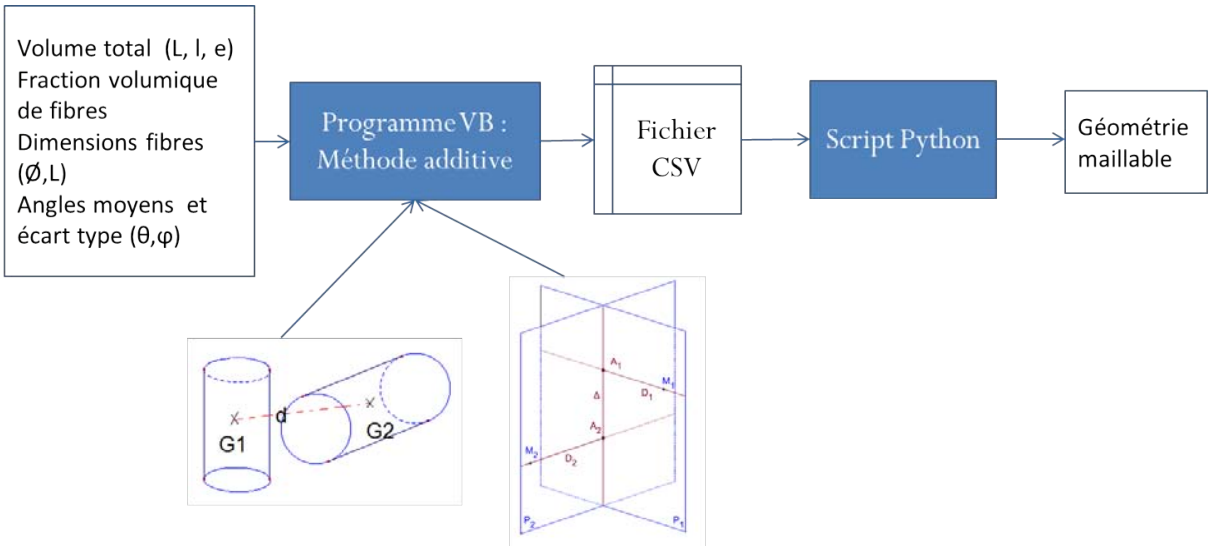
- Si la distance entre les axes n'est pas suffisante, la fibre i n'est pas acceptable si elle appartient à « la sphère d'influence » de l'une des fibres j, autrement dit si la distance entre leur centre de gravité est inférieure à la longueur des fibres
- Si la fibre i ne respecte pas ces deux conditions alors la fibre i est rejetée et un nouveau groupe de coordonnées, pour cette fibre, est généré jusqu'à l'obtention d'une fibre qui est acceptable.
- Le programme continue jusqu'à l'obtention du nombre suffisant de fibres permettant d'atteindre la fraction volumique ciblée.

Cette méthode additive, facile à mettre en œuvre, présente néanmoins un inconvénient. En effet, en considérant une seule et unique famille de fibres identiques, toutes les compositions ne sont pas accessibles. Les critères d'acceptation des fibres, afin d'interdire l'interpénétration des fibres et maintenir une qualité du maillage, limitent la fraction volumique à 8%, seul les deux premières compositions seront modélisées, à savoir le PPC5 et le PPC10. Le tableau 4.3 présente un extrait du fichier obtenu par le programme VBA développé.

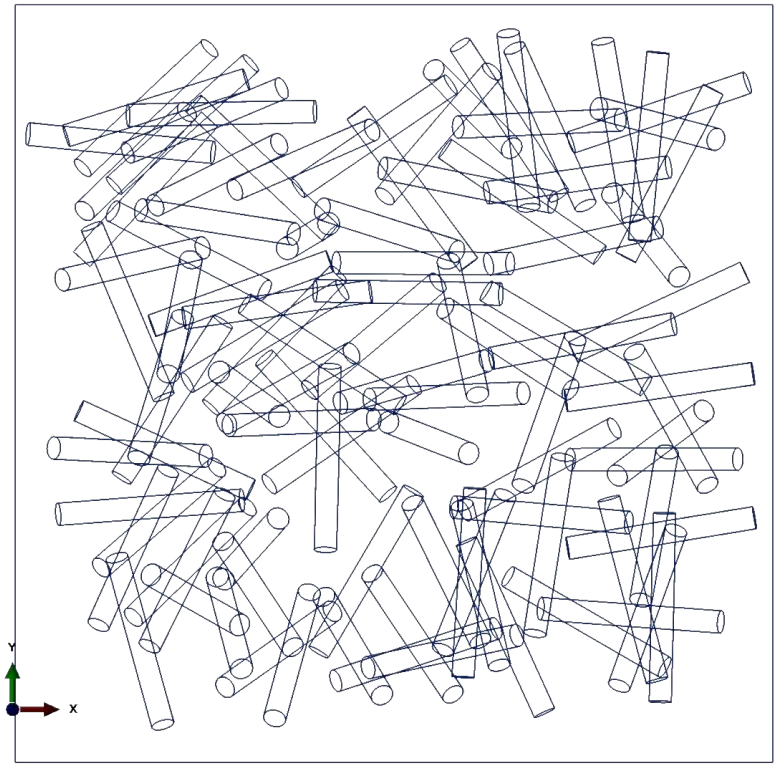
TABLEAU 4.3 – Extrait du résultat du programme VBA pour le PPC5

n°	xg	yg	zg	a	b	c	θ	ϕ
1	0,000742515	0,000768976	0,000359965	-0,960117092	-0,136837736	0,243824945	3,283161179	1,324488442
...	...	...	...	...	...	...	...	...
100	0,000164467	0,000159602	0,000404425	0,242479006	-0,882855536	0,402206456	4,980432649	1,156870771

Un script Python a été élaboré permettant une reconstruction automatique de la géométrie du VER à partir des fichiers contenant le tableau descriptif de la microstructure. Ce script est conçu pour lire dans un fichier CSV les informations nécessaires à la description de la microstructure, position et orientation des fibres, et reproduire l'assemblage fibres / matrice sur le logiciel abaqus en tenant compte du volume total et de la taille des fibres. La méthode de reconstruction exposée ci-dessus est schématisée sur la figure 4.3.3a et la géométrie non-maillée du PPC5 obtenu à l'issu de ce script est proposée sur la figure 4.3.3b.



(a) Schématisation de la méthode de reconstruction



(b) Résultats du script Python pour la reconstruction de la géométrie sous abaqus

FIGURE 4.3.3 – Démarche de reconstruction

4.3.2 Comportement des fibres

Le comportement des fibres de chanvre doit être déterminé avant de pouvoir tester la capacité de prédiction de cette stratégie de modélisation. De par leur forme, cylindrique, les fibres de chanvre pourraient être considérées comme des solides isotropes transverses ou orthotropes. Cependant très peu de travaux s'intéressent à la détermination de propriétés anisotropes des fibres. CICHOCKI et THOMASSON [31] ont calculé des propriétés d'une fibre de jute en incorporant les propriétés thermoélastiques de composites époxy/jute recueillies expérimentalement dans des modèles semi-empiriques en considérant la fibre isotrope transverse et ont mis en évidence un module transverse 5 à 10 fois inférieur au module longitudinal. Néanmoins, la détermination des propriétés, même élastiques, de fibres naturelles est un verrou majeur à l'extension de l'utilisation des composites à fibres naturelles. Afin de limiter le nombre de paramètres, les fibres de chanvre seront considérées, dans la suite de la thèse, comme des solides élastiques isotropes. La littérature [41, 59, 99] dénombre toutefois une large gamme de module élastique longitudinal sensible au diamètre et à la longueur de la fibre (figure 4.3.4).

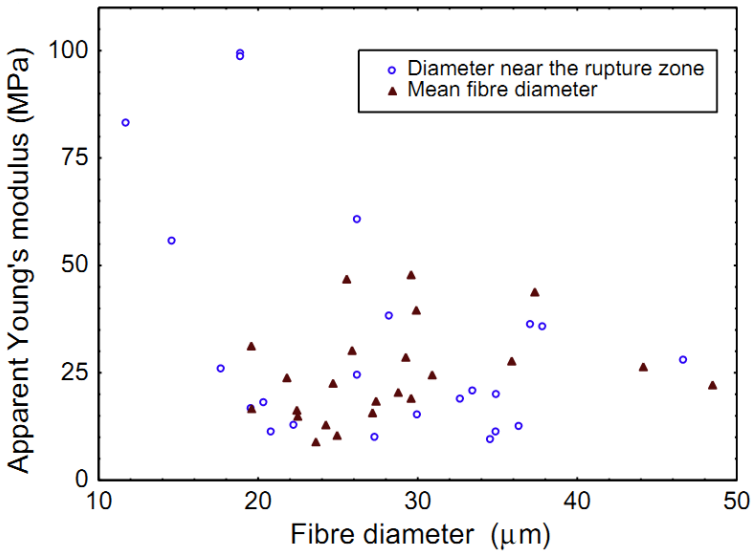


FIGURE 4.3.4 – Modules de Young possibles des fibres de chanvre, adaptée de PLACET *et al.* [99]

Les fibres présentes dans les composites PP/chanvre sont relativement courtes, de longueur moyenne 250 μm, un module, se situant dans la fourchette basse, sera arbitrairement choisi pour déterminer la capacité du modèle à reproduire le comportement des composites. Un module de Young de 7000 MPa et un coefficient de Poisson de 0.4 ont été sélectionnés pour décrire le comportement du chanvre dans tous les essais numériques.

4.4 Modélisation du comportement des composites PP / Chanvre

4.4.1 Modélisation numérique d'un essai de traction

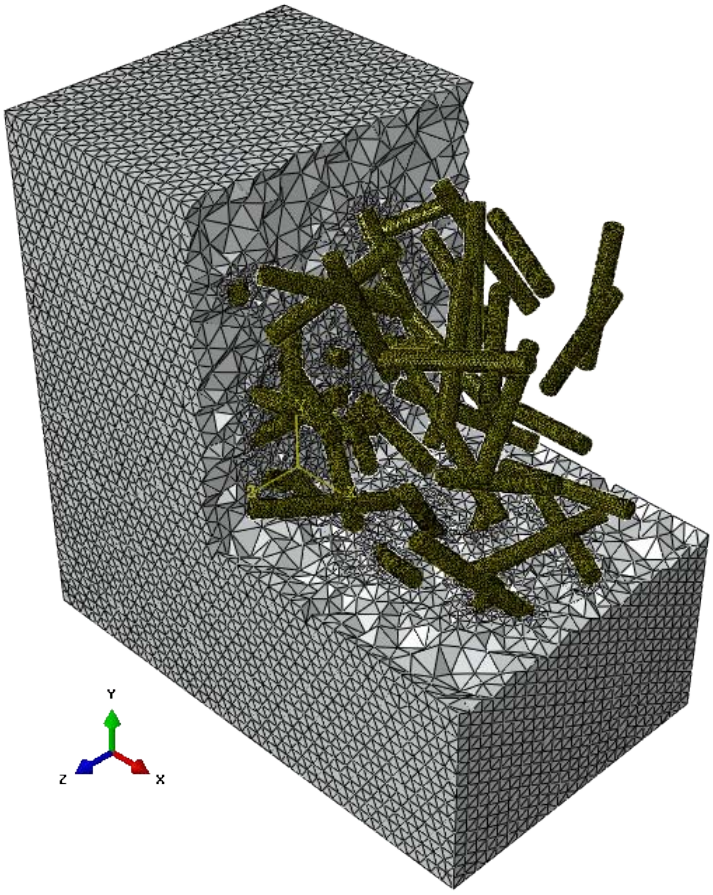


FIGURE 4.4.1 – Maillage du PPC5

Les maillages des géométries obtenues ont été réalisés sur le logiciel Hypermesh avec des éléments tétraédriques linéaires de dimension moyenne de l'ordre de $10\mu m$ (figure 4.4.1). Pour limiter le nombre d'éléments, le maillage de la matrice est plus fin à proximité des fibres et devient plus grossier à mesure que l'on se rapproche des faces extérieures (figure 4.4.2).

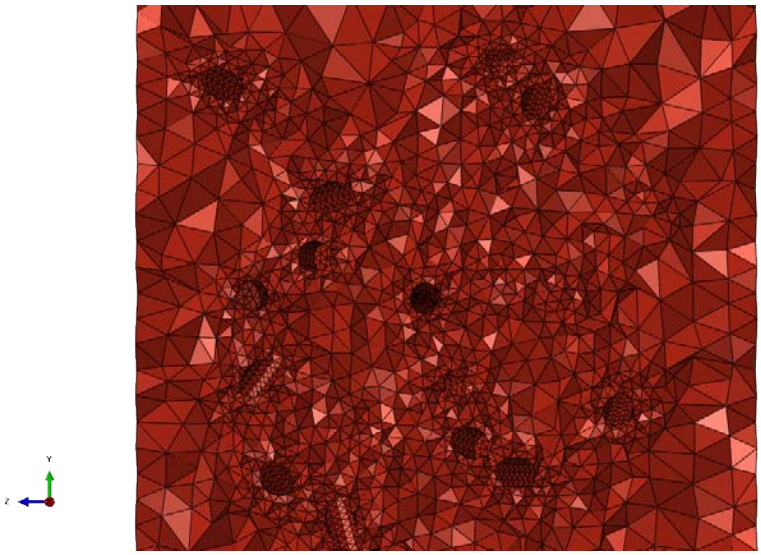
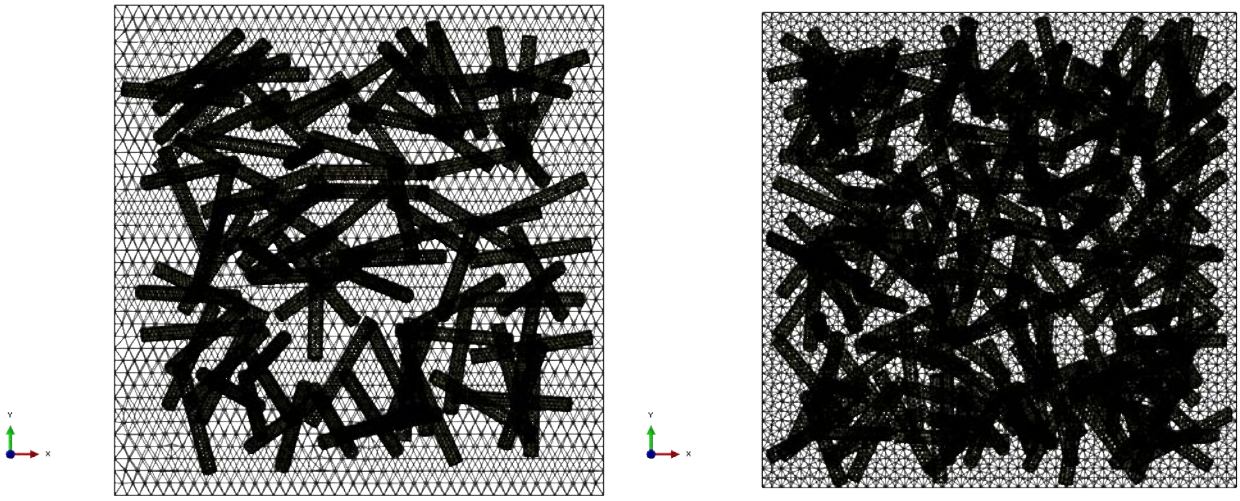


FIGURE 4.4.2 – Zoom sur le maillage de la matrice

Le tableau 4.4 recense la taille minimale des différentes compositions et la figure 4.4.3 donne une idée de l'arrangement de la microstructure pour deux compositions (PPC5 et PPC10).

TABLEAU 4.4 – Taille des problèmes

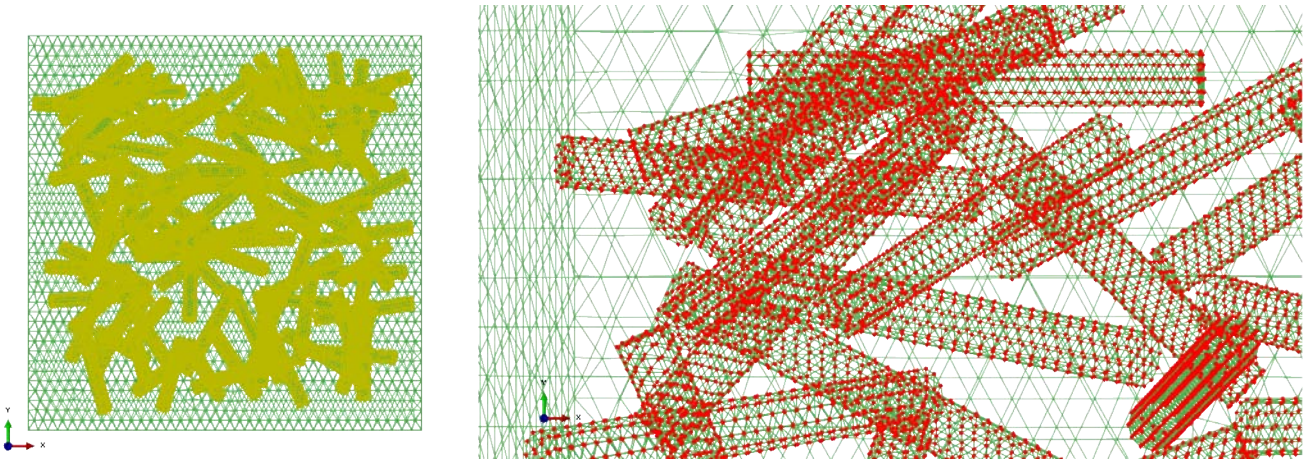
modèle	Total		Fibre		Matrice	
	éléments	nœuds	éléments	nœuds	éléments	nœuds
PPC5	936815	201802	150025	48970	786790	152832
PPC10	1025225	230892	161092	59127	864133	171765



(a) (b)

FIGURE 4.4.3 – Géométrie maillées du (a) PPC5 et (b) PPC10

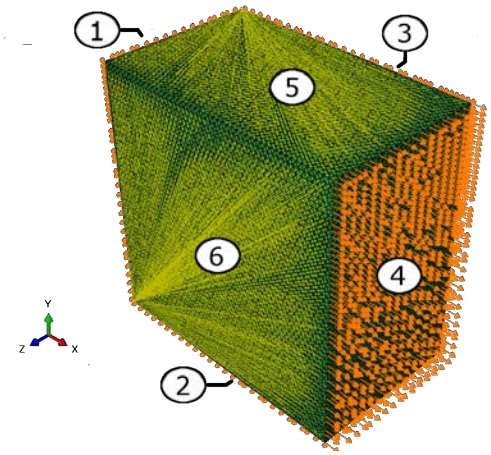
La démarche de modélisation (figure 4.3.1) nécessite de définir le comportement de l'interface, ainsi dans une première approche, celle-ci sera considérée comme parfaite. Deux modélisations sont alors possibles, la première consiste à produire un maillage dit continu pour lequel l'interface est définie par des nœuds uniques. Alors que dans la seconde chaque « nœud géométrique » de l'interface est défini par deux nœuds, dont les déplacements sont identiques, l'un appartenant à la matrice l'autre à la fibre. Cette dernière engendre une augmentation du temps de calcul par l'ajout d'équations supplémentaires mais permet, par la suite d'affiner le modèle par l'ajout d'une rigidité entre ces nœuds afin de pouvoir reproduire la décohésion. Bien que l'ajout d'un critère de décohésion ne sera pas entrepris dans le cadre de cette thèse, nous retiendrons, dans nos modélisations, la seconde (figure 4.4.4).



(a) vue globale (b) Zoom

FIGURE 4.4.4 – Liaison des nœuds de l'interface pour le PPC5

Un essai de traction sera simulé de la même manière qu'au paragraphe 4.2.4 en limitant le déplacement maximal de telle sorte que la déformation macroscopique maximale soit de 3%. Les mêmes conditions aux limites sont appliquées. De plus, le déplacement u_z de tous les nœuds de la face de normale $\overline{z}$ n'appartenant à aucune autre condition aux limites est maintenu identique par l'ajout d'une relation de contrainte entre eux, il en est de même pour le déplacement u_y des nœuds de la face de normale $\overline{y}$, ceci afin de conserver la forme du parallélépipède durant tous les échelons de déformation (figure 4.4.5).



Contraintes de symétrie :
(1) $u_x = 0$
(2) $u_y = 0$
(3) $u_z = 0$
Contraintes de planéité
(5) même déplacement u_y de tous les nœuds
(6) même déplacement u_z de tous les nœuds
Chargement
(4) $\overline{u} = \xi(t) \cdot \overline{x}$ avec $\xi(t)$ fonction linéaire en t

FIGURE 4.4.5 – Conditions aux limites et relation de contrainte pour les composites PP/chanvre

4.4.2 Prédiction numérique du comportement

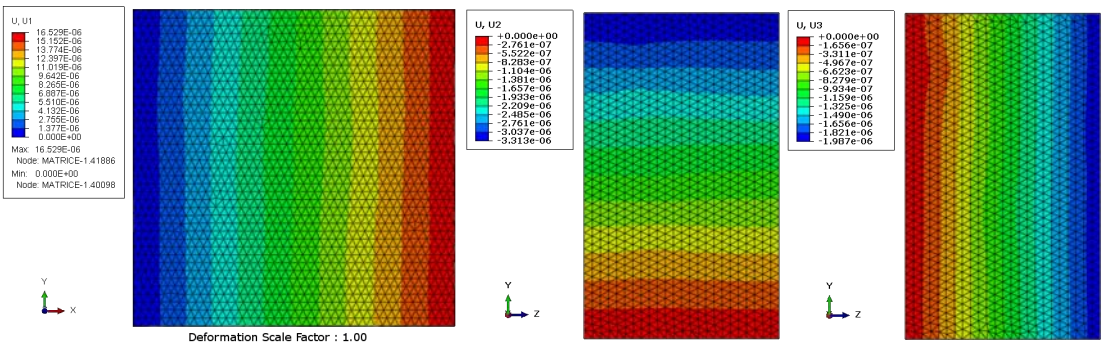


FIGURE 4.4.6 – Champ de déplacement obtenu

La forme du champ de déplacement $\overline{u}$ de la figure 4.4.6 permet de valider les conditions aux limites de notre problème. En effet, ceux-ci modélisent convenablement un essai de traction uniaxiale. Afin d'obtenir les approximations des solutions qui seront présentées par la suite, une méthode de résolution itérative basée sur la définition par récurrence des bases d'interpolation de KRYLOV a été employée (aide Abaqus® [1]). La distribution des déformations ε_{11} pour divers états de déformations macroscopiques sont fournis sur les figures 4.4.7 et 4.4.8 pour les composites PPC5 et PPC10 respectivement. Ces champs de déformation ont été obtenus avec le jeu de paramètres simulant le comportement de la matrice pour une vitesse de déformation de $10^{-4}s^{-1}$ et soulignent la forte hétérogénéité due non seulement à la présence des fibres mais aussi à l'endommagement de la matrice affaiblissant certains éléments.

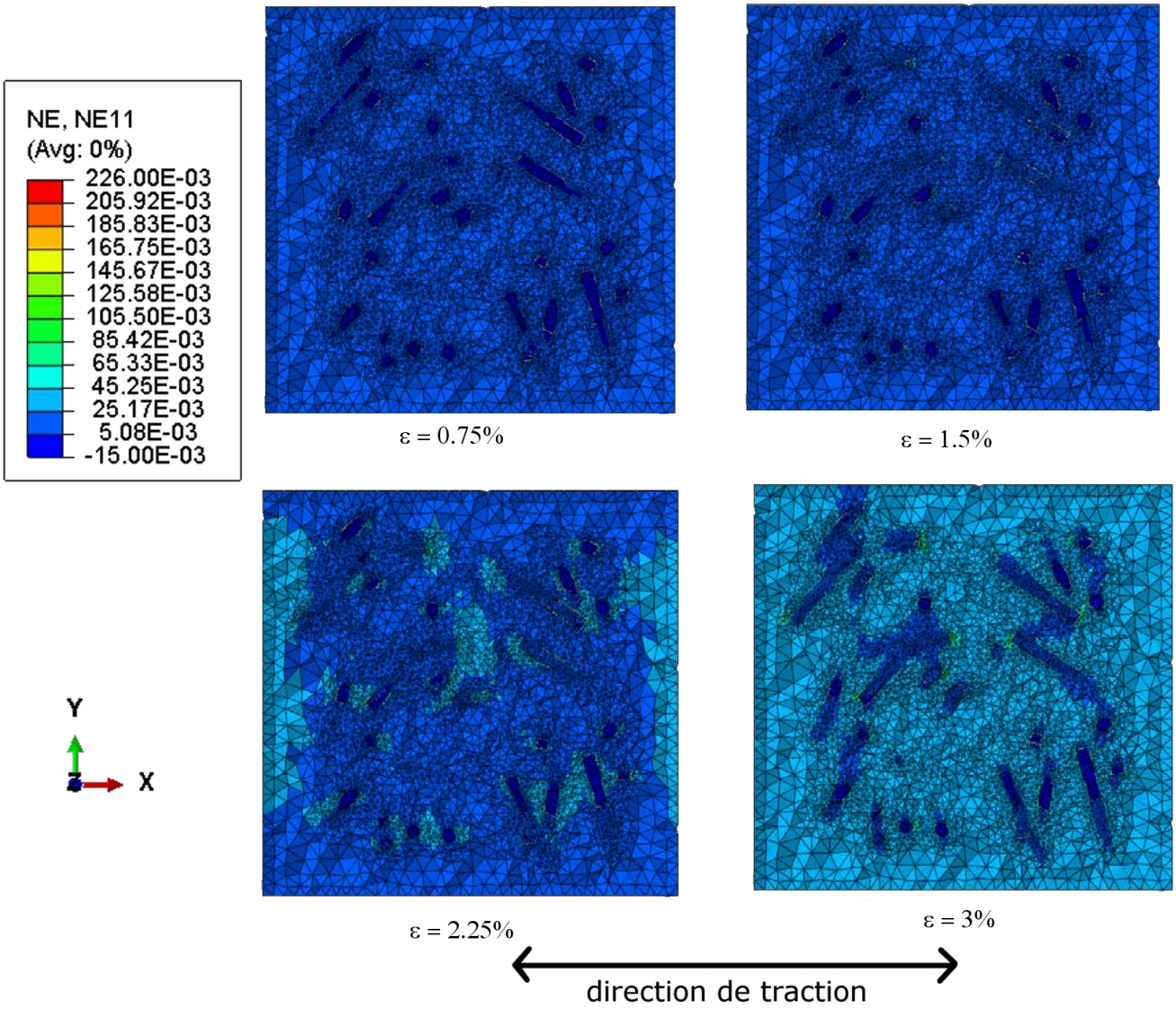


FIGURE 4.4.7 – Cartographie des déformations pour une section $(\overline{x}, \overline{y})$ PPC5

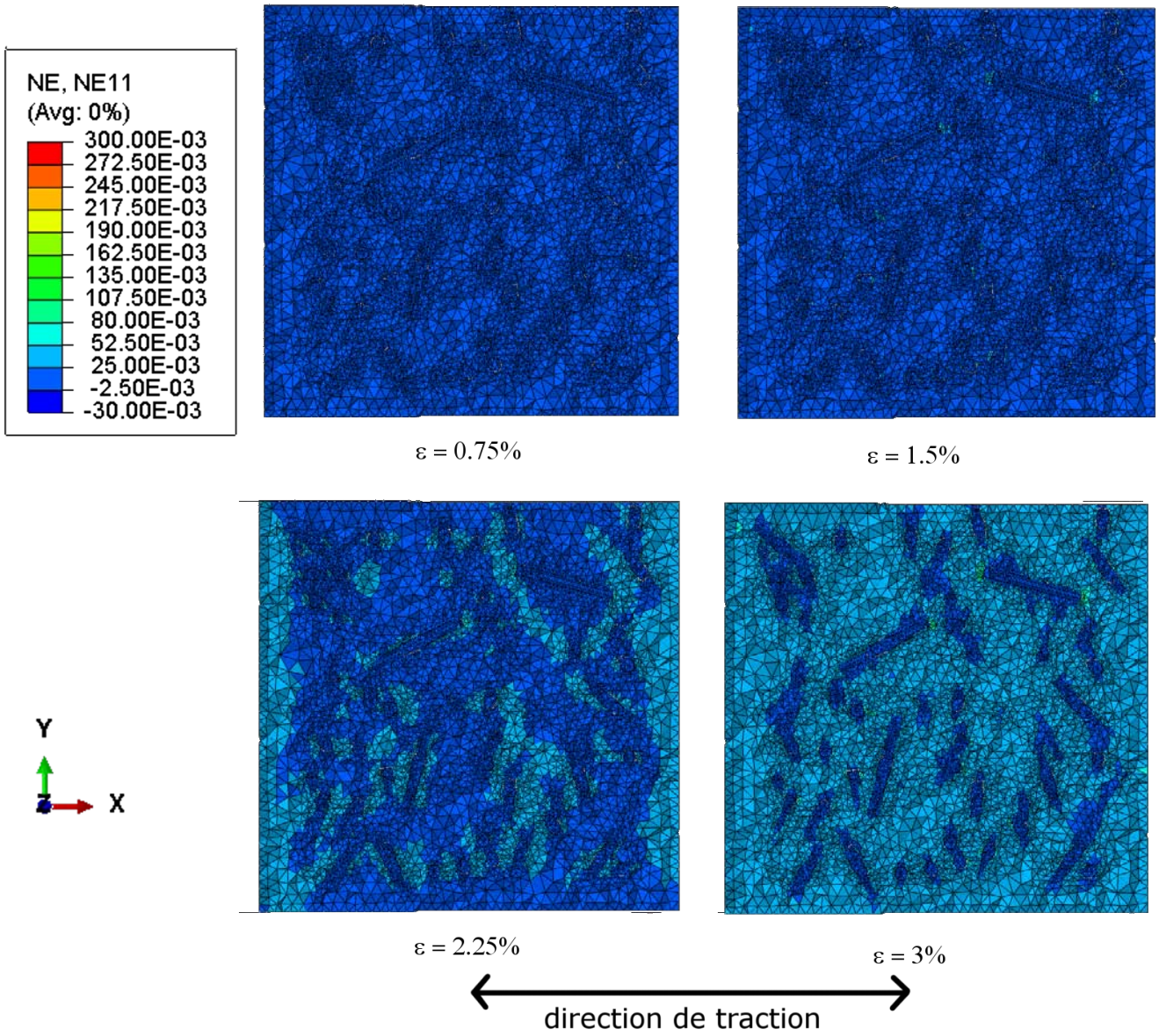
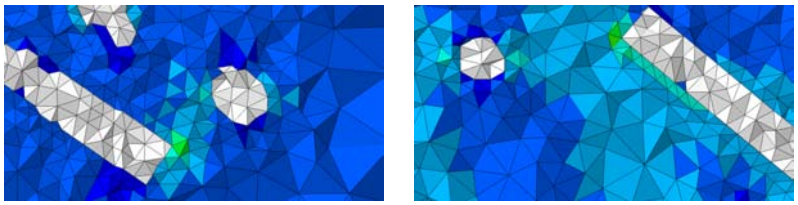


FIGURE 4.4.8 – Cartographie des déformations pour une section $(\overline{x}, \overline{y})$ PPC10

La routine Fortran développée intègre une variable interne, au sens de la mécanique continue, permettant de suivre l'évolution du paramètre densité de fissures d_n. La méthode choisie pour décrire l'endommagement dans la matrice et son implémentation numérique engendre un endommagement diffus dans toute la matrice. Cependant la présence de nombreuses fibres occasionne des zones de forte concentration de contrainte et provoque un endommagement accéléré de certains éléments de la matrice, c'est pourquoi aux extrémités des fibres, les éléments de la matrice sont fortement endommagés (figure 4.4.9).



PPC5 PPC10

FIGURE 4.4.9 – Endommagement de la matrice aux extrémités des fibres

Quatre éléments ont été sélectionnés arbitrairement de manière à refléter les différents stades d'endommagement de la matrice :

- un élément isolé (proche ni d'une fibre ni d'un bord)
- un second dans une zone de forte concentration de contrainte (à proximité d'une extrémité de fibre)
- deux autres, sélectionnés aléatoirement dans tout le volume, dont l'état d'endommagement se situe entre les deux précédents

Leur évolution du paramètre densité de fissure est tracée sur la figure 4.4.10 et souligne l'hétérogénéité de l'endommagement due à des effets microstructuraux (présence de nombreuses extrémités de fibres).

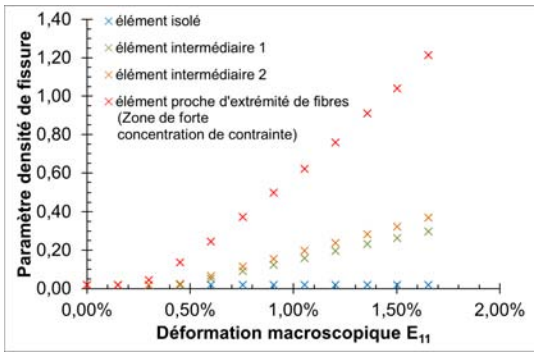


FIGURE 4.4.10 – Evolution de l'endommagement de 4 éléments pour le composite PPC5 à $10^{-4}s^{-1}$

Les cartographies de l'endommagement pour une section $(\overline{x}, \overline{y})$ aux mêmes états de déformation sont représentées sur les figures 4.4.11 et 4.4.12 et soulignent cette forte hétérogénéités.

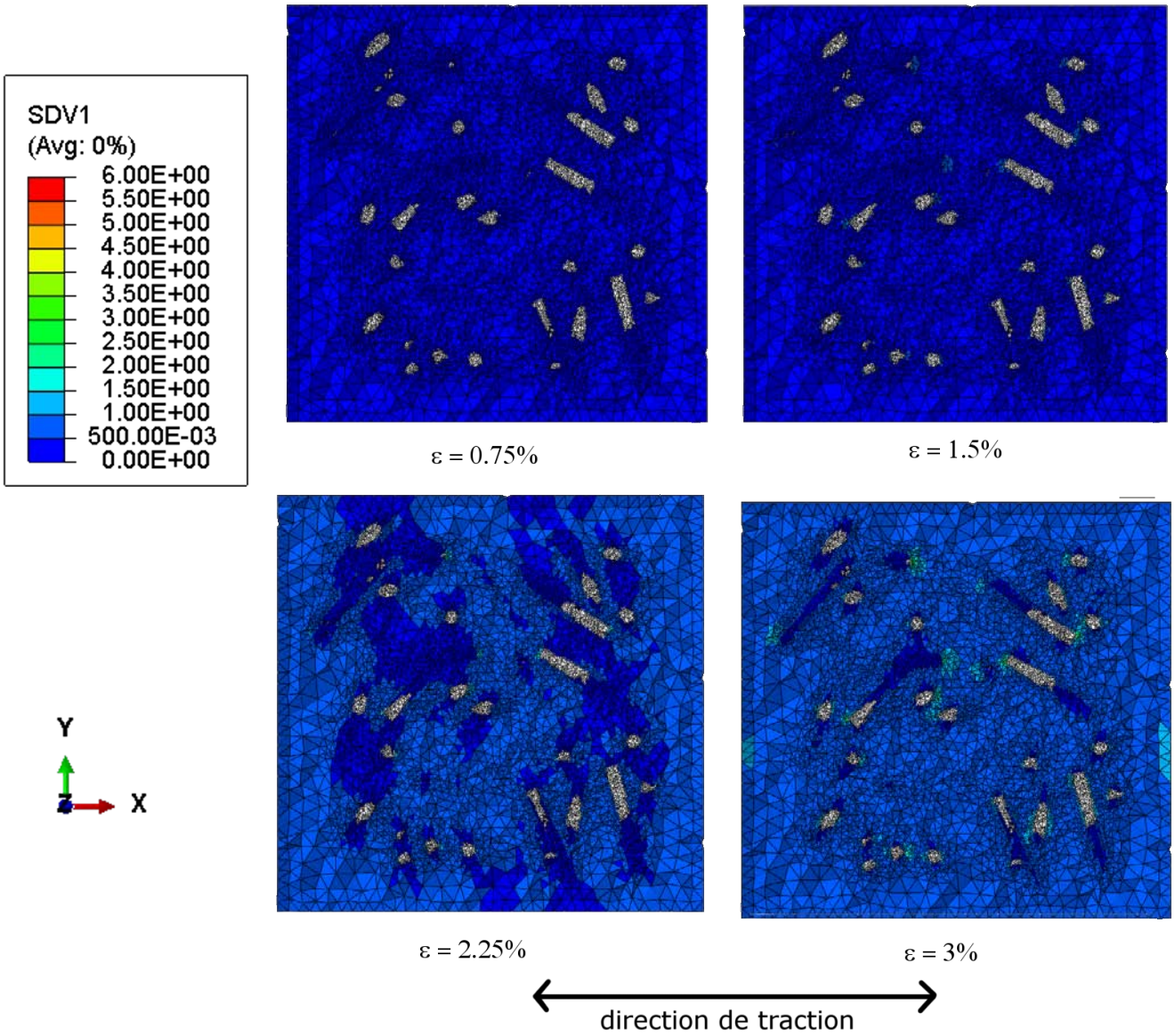


FIGURE 4.4.11 – Distribution de l'endommagement pour le PPC5 à $10^{-4}s^{-1}$

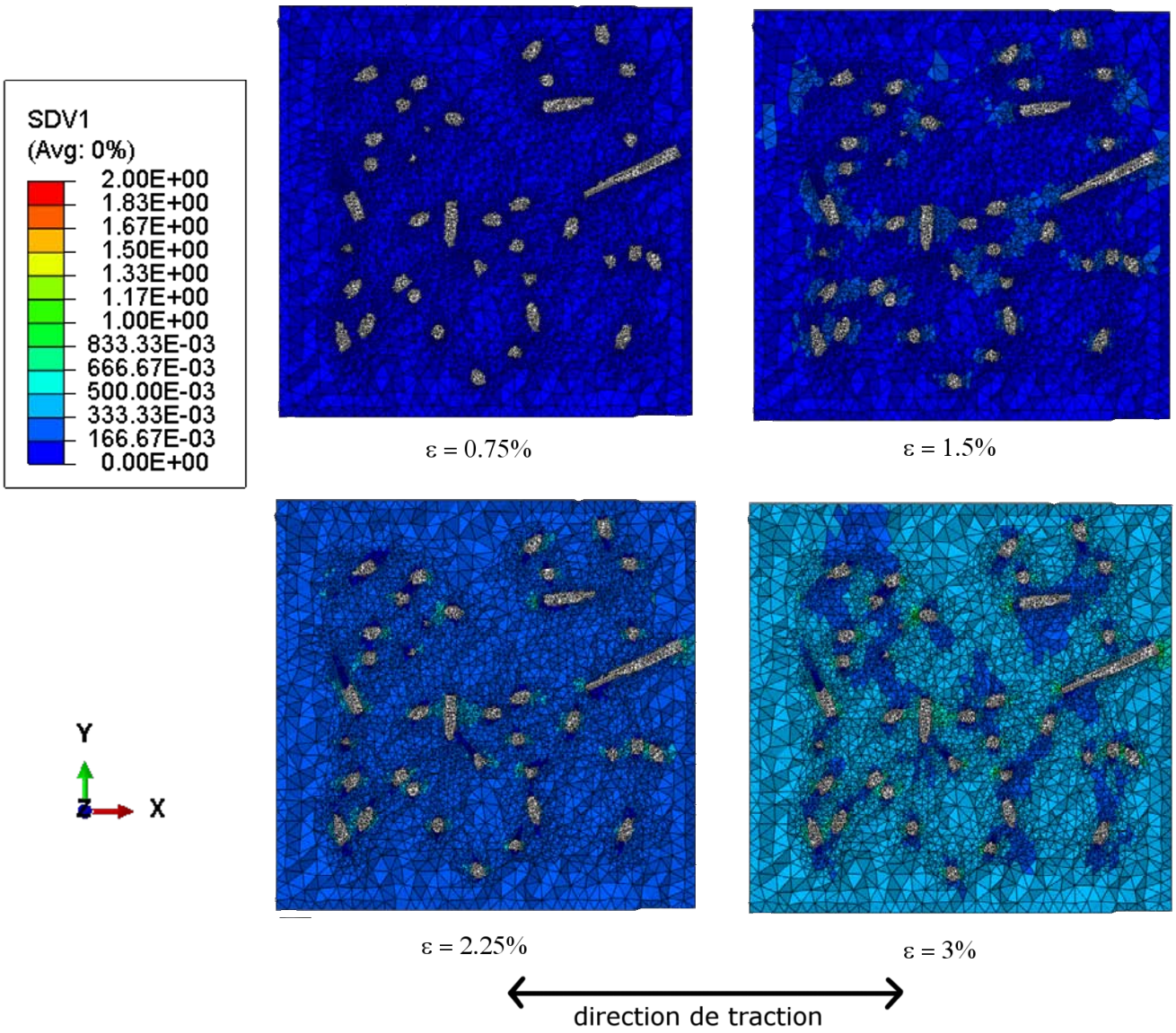
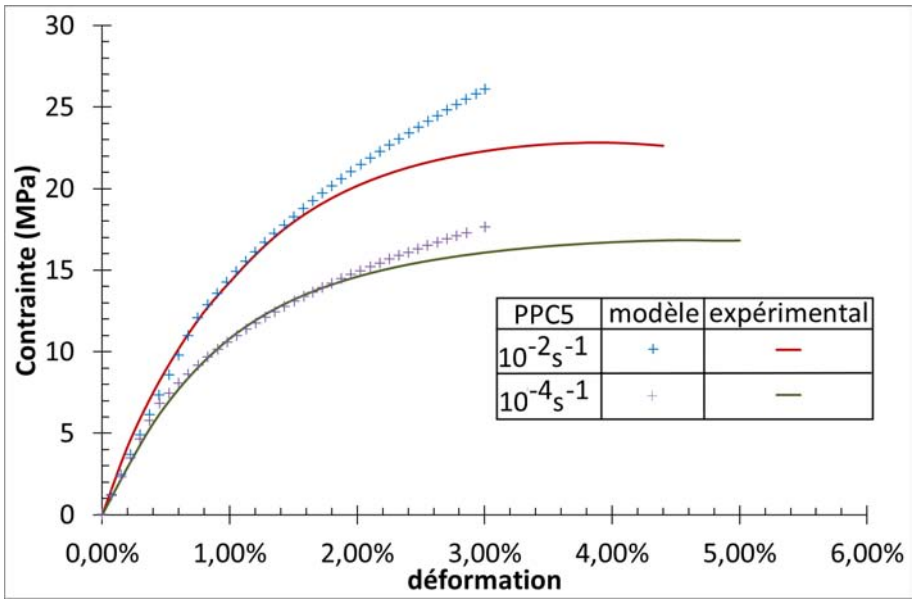


FIGURE 4.4.12 – Distribution de l'endommagement pour le PPC5 à $10^{-2}s^{-1}$

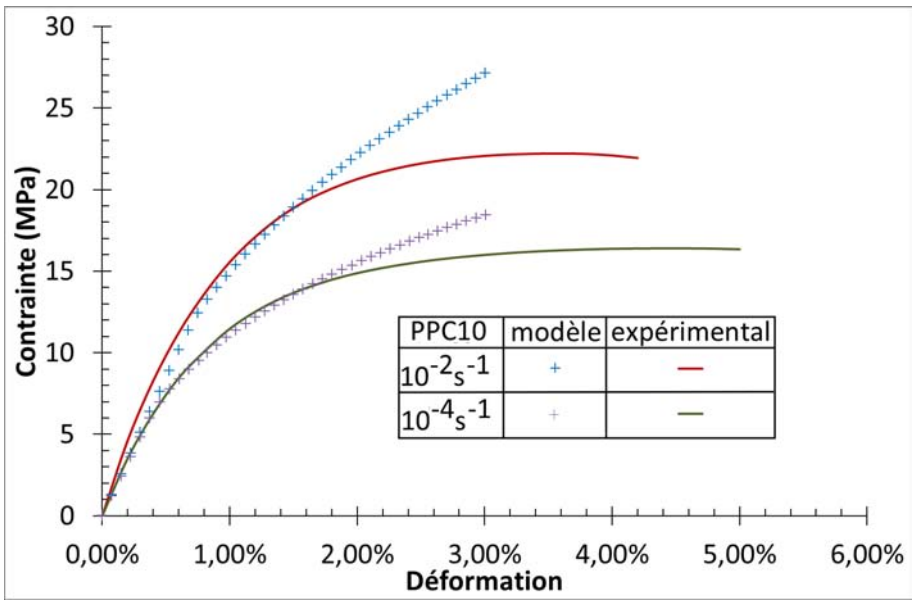
La mise en place de cet essai numérique a pour objectif de valider la capacité du modèle à reproduire le comportement en traction des composites PP/chanvre. Pour cela, il est nécessaire de calculer les déformations et les contraintes macroscopiques. Deux solutions sont alors envisageables, la première consiste à récupérer l'effort résultant moyen dans la direction $\overline{x}$ des nœuds dont le déplacement suivant cette direction est nul et à le diviser par la surface initiale pour obtenir la contrainte nominale macroscopique à chaque pas de déformation. La seconde consiste à effectuer une moyenne sur tous les points de Gauss pondérée par le volume associé à ce point, de la contrainte σ_{11} et de la déformation ε_{11} selon les formules de l'équation 4. 23. Dans notre cas, les géométries ont été maillées avec des éléments tétraédriques linéaires possédant un seul et unique point de Gauss, le volume associé sera donc celui de l'élément.

$$\begin{aligned} \langle\sigma_{11}\rangle^k &= \frac{1}{V^k}\cdot\sum_{i=1}^{N^k} V^i\cdot\sigma_{11}^i,\ k = fibre,\ matrice \\ \Sigma_{11} &= \frac{1}{V^{tot}}\cdot\left(V^{fibre}\cdot\langle\sigma_{11}\rangle^{fibre} + V^{matrice}\cdot\langle\sigma_{11}\rangle^{matrice}\right) \end{aligned} \tag{4. 23}$$

La comparaison entre les courbes expérimentales du PPC5 et du PPC10 et les résultats numériques obtenus sur Abaqus® pour deux vitesses de déformation (figure 4.4.13) montre une bonne capacité de prédiction pour les déformations initiales mais de la même manière que pour la prédiction du comportement de la matrice (section 4.2.4) le modèle surestime la contrainte macroscopique dans le composite pour une déformation de l'ordre de 2%. Cependant cet effet est bien plus marqué et peut être expliqué en partie par des phénomènes physiques qui ne sont pas pris en compte. L'évolution de l'endommagement et la résistance à la propagation de l'endommagement de forme linéaire limite la corrélation, une meilleure prédiction pourrait être obtenue par le choix d'un critère sous forme de puissance ou par la définition d'un pseudo-potentiel d'endommagement [24]. Néanmoins la stratégie de modélisation employée ici présentera toujours un inconvénient. En effet, celle-ci s'apparente à une double homogénéisation, la première analytique permet d'obtenir le comportement du PP en s'appuyant sur son endommagement considéré comme microscopique, la seconde numérique permet de tenir compte de la microstructure du composite (orientation, interaction entre fibres, ...) dans le comportement macroscopique. Toutefois pour être acceptable, cette stratégie suppose une double séparation d'échelle. En d'autres termes, la taille des micro-fissures de la matrice doit être inférieure à la taille des fibres. Cette hypothèse est vérifiée pour de faibles déformations expliquant la bonne corrélation initiales entre les courbes expérimentales et les prédictions. Cependant, expérimentalement l'endommagement devient macroscopique et la taille des fissures devient donc supérieure aux fibres et cette double transition d'échelle n'est plus vérifiée et explique la divergence entre les courbes expérimentales et les simulations. Une étude de la microstructure dans le but d'améliorer les performances de ces composites est toutefois possible et fera l'objet de la section suivante.



(a) PPC5



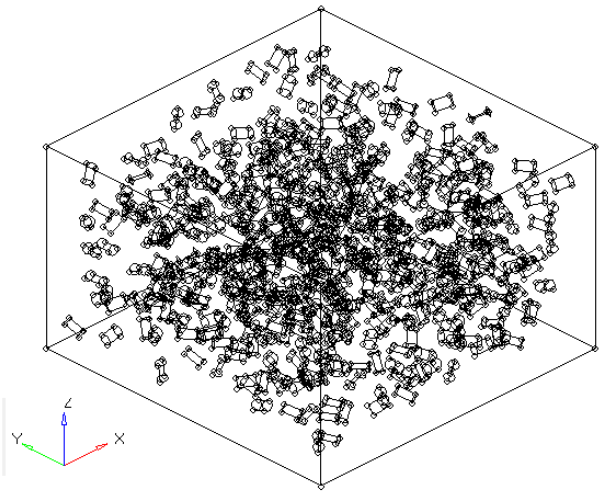
(b) PPC10

FIGURE 4.4.13 – Comparaison modèle EF et courbe expérimentale

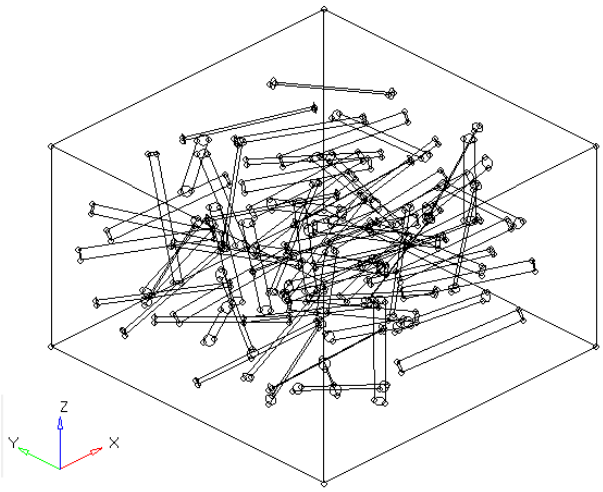
4.4.3 Influence de la longueur des fibres

L'un des avantages de la stratégie développée ici est la capacité de modifier la microstructure, en terme de fraction volumique mais aussi en terme de longueur de fibres et ainsi étudier leurs effets sur le comportement de composites PPC, permettant de fournir des outils afin d'optimiser leur performance.

Dans cette optique, le programme développé a donc permis de générer deux arrangements supplémentaires de fibres pour une fraction massique sélectionnée de 5% en masse en plus de celui détaillé dans les sections précédentes. L'un des composites est renforcé par des fibres de longueur 50 μm, limite basse pour considérer les renforts comme des fibres (rapport d'aspect $R = 5/3$) et l'autre avec des fibres de longueur 350 μm (figure 4.4.14), la limite haute du programme sans modification de la taille du parallélépipède ($1 \times 1 \times 0.6\,\mathrm{mm}^3$).

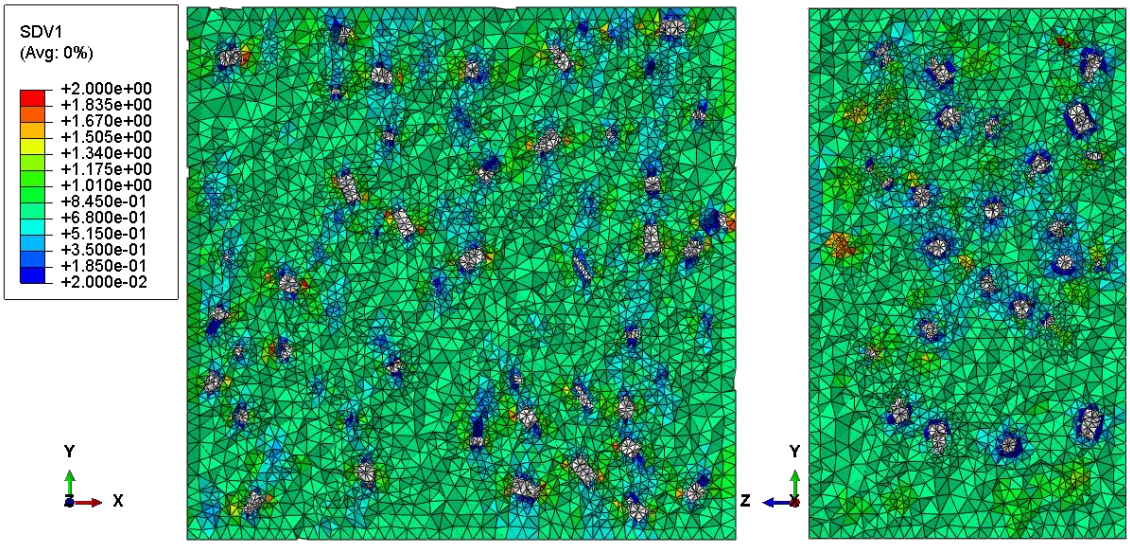


(a) $L_{fibres} = 50\,\mu$m

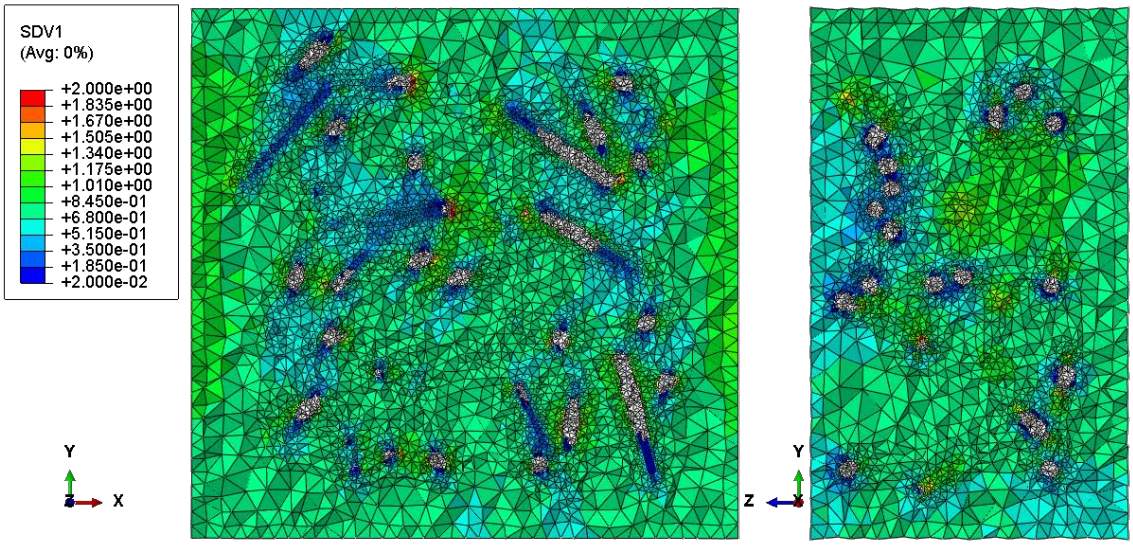


(b) $L_{fibres} = 350\,\mu$m

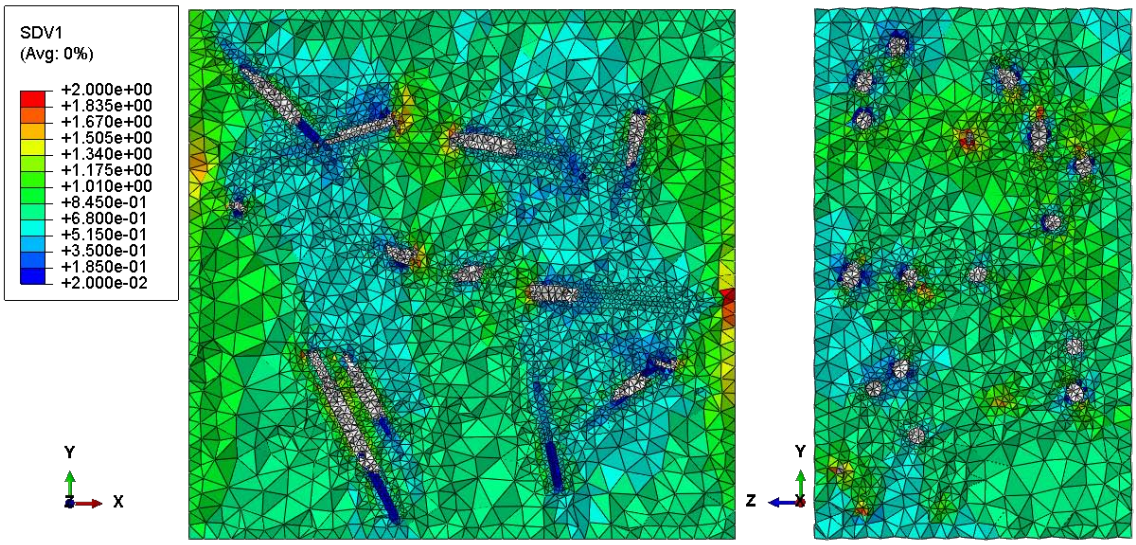
FIGURE 4.4.14 – Nouvelle géométrie non maillée du PPC5



(a) PPC5 $L_{fibres} = 50\,\mu$m



(b) PPC5 $L_{fibres} = 250\,\mu$m



(c) PPC5 $L_{fibres} = 350\,\mu$m

FIGURE 4.4.15 – Comparaison des cartographies d'endommagement des PPC5 pour $\varepsilon_{macro} = 3\%$

La fraction volumique a été analysée dans la section précédente, une attention particulière a donc été portée afin de maintenir celle-ci constante dans le but d'étudier l'influence de la longueur des fibres sur le comportement de composites PPC5. La stratégie de maillage présentée au paragraphe 4.4.1 a également été utilisée pour ces deux nouveaux arrangements. A titre de comparaison la taille des différents problèmes est recensée dans le tableau 4.5.

TABLEAU 4.5 – Taille des problèmes des composites PPC5

modèle	éléments	nœuds
PPC5 $L_{fibres} = 50\,\mu$m	810407	177653
PPC5 $L_{fibres} = 250\,\mu$m	936815	201802
PPC5 $L_{fibres} = 350\,\mu$m	619472	135437

Le nombre d'extrémités de fibres joue un rôle majeur dans l'endommagement du composite, donc malgré des comportements des deux phases similaires, le comportement des composites PPC5 de différentes longueurs de fibres ne devrait donc pas être identique. Les conditions aux limites de la figure 4.4.5 ont été appliquées à chacune de ces géométries (fibres courtes, longues et normales) et la méthode de résolution itérative a permis d'obtenir les cartographies d'endommagement de la figure 4.4.15. Comme prévu, la modification de la longueur des fibres engendre un endommagement différent dans la matrice, dans le cas des fibres les plus courtes ($L_{fibres} = 50\,\mu$m) le nombre de site d'amorçage de l'endommagement sont bien plus nombreux que dans le cas des fibres les plus longues ($L_{fibres} = 350\,\mu$m) et l'affaiblissement de la matrice est plus important, de même l'endommagement moyen est plus important. Les cartographies de l'endommagement (figures 4.4.15) montrent clairement une modification locale du comportement de la matrice, les courbes contrainte-déformation macroscopiques déterminées avec une opération de moyenne selon les équations 4. 23 ne montrent aucune différence dans la phase élastique, en effet, la fraction volumique et le comportement des phases sont exactement identiques dans tous les modèles EF. Cependant après l'apparition de l'endommagement, les différences dues aux effets microstructuraux se font sentir et les courbes contrainte-déformation s'écartent l'une de l'autre (figure 4.4.16). Selon cette étude, des fibres plus longues amélioreraient les performances de ces composites et ceci confirme l'idée de Beckermann et Pickering [15] sur l'existence d'une longueur minimale de fibres pour leurs permettre de remplir pleinement leur rôle de renfort et atteindre un renforcement maximal.

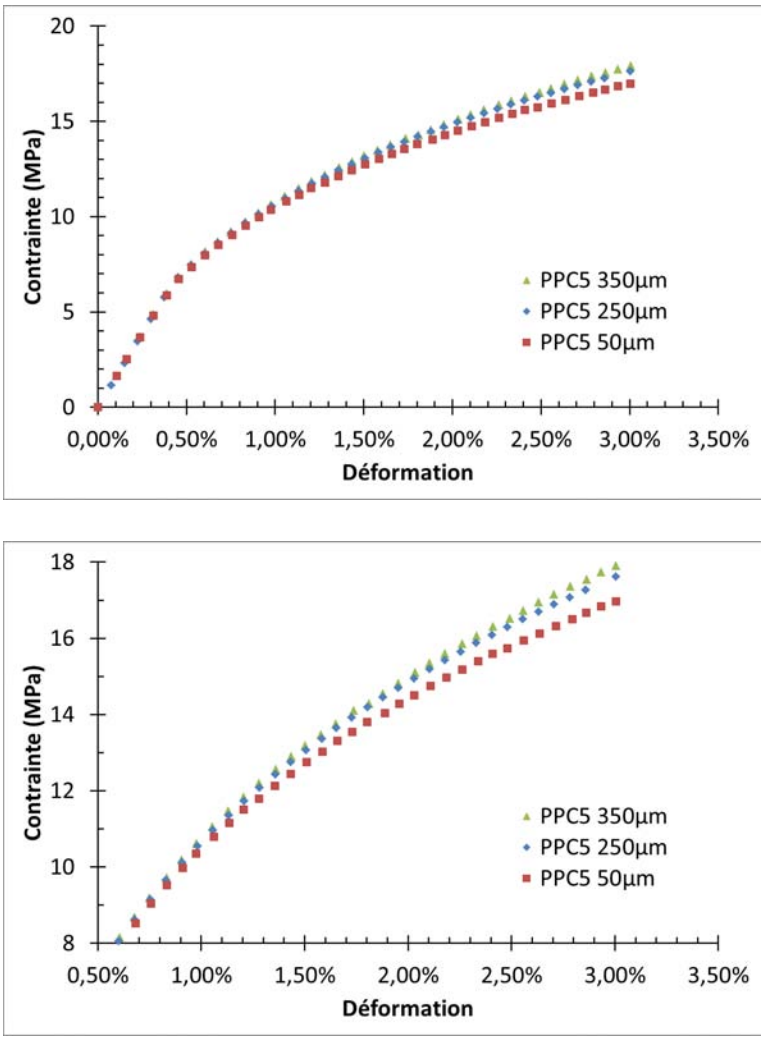


FIGURE 4.4.16 – Courbes contrainte-déformation des PPC5 en fonction de la longueur des fibres

4.5 Conclusion du chapitre

La stratégie de modélisation développée dans le cadre de cette thèse se décompose en une double homogénéisation, la première, analytique, permet d'obtenir le comportement effectif d'un milieu isotrope affaibli par une famille de micro-fissures. Cette démarche est appliquée avec succès à la prédiction du comportement du polypropylène utilisé comme matrice dans les composites de chanvre. La seconde, numérique, permet d'obtenir le comportement effective des composites en tenant compte de la microstructure, de la répartition, de l'orientation des fibres, et de leurs interactions complexes.

Cette démarche est limitée ici au domaine élastique et n'est donc pas sensible à la vitesse de déformation, deux jeux de paramètres permettant de reproduire le comportement du PP à deux vitesses de déformation différentes ($10^{-4}\,\mathrm{s}^{-1}$ et $10^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$) sont donc nécessaires. L'application

des techniques d'homogénéisation des matériaux fissurés élastique-endommageable au PP a montré une bonne corrélation pour les deux vitesses de déformations même si une critique majeure peut être formulée. En effet, les contraintes sont sur-estimées pour des déformations proches de la rupture. Cette divergence est due au manque de mécanismes pris en compte dans la modélisation (micro-plasticité de la matrice, interaction des fissures, viscoélasticité,...).

L'algorithme de génération automatique de la microstructure est un outil puissant pour analyser différentes configurations de composites afin d'optimiser leurs performances et permet de prédire le comportement de composites en tenant compte de l'orientation et la répartition des fibres ainsi que leur forme. Cette reproduction couplée au comportement micro-fissuré de la matrice engendre une bonne prédiction quelque soit la vitesse de déformation et la fraction volumique, toutefois à partir d'une déformation de l'ordre de 2%, le modèle s'écarte des essais expérimentaux. Cette divergence provient, non-seulement de certains mécanismes qui ne sont pas pris en compte (micro-plasticité de la matrice, interaction des fissures de la matrice, mais aussi décohésion, et rupture de fibres...) mais également de la stratégie elle-même. En effet celle-ci correspond à une double homogénéisation avec double transition d'échelle, l'endommagement par micro-fissures doit être plus petit que les fibres cependant, expérimentalement, l'endommagement devient macroscopique et la transition d'échelle n'est plus respectée et engendre une perte de corrélation.

L'ajout de mécanismes physiques supplémentaires (critère de décohésion, rupture fibres, interaction des fissures dans la matrice), une prise en compte de la coalescence des microfissures en macrofissures ainsi que la réécriture des lois dans un formalisme visco-élasto-plastique devrait permettre d'améliorer les prédictions et les performances obtenues.

Conclusion générale et Perspectives

Conclusion générale

La diminution de l'impact environnemental de nos activités est un enjeu capital auquel l'Homme sera confronté dans les prochaines années. Le développement de matériaux plus performants dont l'impact sur l'environnement est réduit (recyclabilité, bilan carbone neutre, matériau biosourcé...) connaît un essor considérable. Ainsi les composites à matrice thermodurcissable tendent à être remplacés par des composites à matrice thermoplastique de hautes performances, qui contrairement aux matériaux résinoïdes, sont recyclables. De plus, l'utilisation des fibres d'origine naturelle (renouvelable, d'empreinte carbone plus faible) en tant que matériaux de renforts dans les composites à matrice polymère est une alternative prometteuse aux fibres synthétiques habituelles (verre, carbone,...). Toutefois, le frein majeur à l'utilisation de ces nouveaux thermoplastiques renforcées de fibres naturelles est le manque de connaissance de leur comportement thermomécanique et de leur endommagement.

Ainsi, l'enjeu de cette thèse était de proposer un outil de prédiction du comportement non-linéaire de composite à matrice thermoplastique renforcée par des fibres courtes, afin d'en optimiser les performances. Le polypropylène est un thermoplastique de grande diffusion couramment employé dans l'industrie et souvent utilisé comme matrice de matériaux composites. De plus, le chanvre est une plante dont la culture est possible en Lorraine. Un polypropylène renforcé de fibres de chanvre a donc été sélectionné comme support de cette étude.

La caractérisation mécanique complète du matériau vierge et des composites, élaborés à différentes fractions massiques de chanvre, a été conduite. Le taux de renfort maximal a été volontairement limité à 20% en masse de fibres, pour permettre, par la suite, le développement de modèles. L'humidité résiduelle a été soigneusement contrôlée afin de s'assurer que ce paramètre n'influençait pas les mécanismes d'endommagement mis en évidence. De plus tous les essais expérimentaux ont été réalisés dans une enceinte thermorégulée pour s'affranchir de l'effet de la température. L'effet renforçant provenant de la présence de fibres de chanvre se manifeste effectivement dans le domaine des petites déformations : augmentation du module de

conservation E_c, observé en DMA, et du module tangent initial, révélé lors d'essais de traction uniaxiale. Bien que cet effet est notable pour de faibles déformations, les essais mécaniques conduits en traction monotone et en chargement complexe, de type charge-décharge-maintien, mettent en évidence un endommagement affectant essentiellement la matrice dont les mécanismes ont fait l'objet d'études approfondies en vue de leur modélisation. Ainsi l'utilisation de la tomographie aux rayons X sur des échantillons *post-mortem* et de la thermographie infrarouge *in-situ* a permis de mettre en évidence le mode de rupture des composites par fissuration de la matrice. Afin de permettre une prédiction du comportement mécanique des composites, une modélisation par éléments-finis a été envisagée. Elle a nécessité une caractérisation fine de la microstructure qui a été reproduite par la suite par un algorithme de génération de maillage.

L'utilisation de la tomographie aux rayons X permet, par un contraste de densité, une analyse du taux de porosité, de l'agrégation éventuelle des fibres et de leur orientation. Une étude statistique complète de la microstructure a donc été effectuée. Les fibres sont alors décrites par leur centre de gravité et par leur axe principal d'inertie. L'étude sur la répartition spatiale démontre que statistiquement aucun agrégat de fibres n'a été détecté, dans toutes nos compositions, et souligne ainsi un procédé de fabrication convenablement maîtrisé. La représentation de l'orientation d'une fibre est possible à partir de deux angles, l'un défini dans le plan d'injection, l'autre par rapport à la normale à ce plan. Les fonctions de distribution d'orientation calculées indiquent que l'orientation des fibres tend à être isotrope dans le plan d'injection mais l'angle moyen par rapport à la normale à ce plan est de 75°, et traduit la présence de fibre dont la longueur est suffisamment petite pour leur permettre d'obtenir une orientation hors-plan.

Afin de rendre compte des interactions complexes entre fibres, qui en résultent, un algorithme générant un modèle éléments-finis de renforts fibreux intégrant les fonctions statistiques de distribution spatiale et d'orientation ainsi que les facteurs géométriques des fibres $(L, \varnothing)$ a été mis au point. Plusieurs maillages ont été générés afin d'étudier la sensibilité du modèle à la fraction volumique et à la longueur des fibres. Cependant les conditions de non-interférence des fibres limitent la fraction volumique accessible. Les observations au microscopique électronique à balayage ont montré que la forme réelle des fibres est mieux reproduite par des cylindres plutôt que par des ellipsoïdes, forme classiquement admise. De plus les fibres sont considérées, dans un premier temps, comme des solides élastiques isotropes.

La modélisation du comportement de la matrice avec endommagement progressif est développée suivant un formalisme micromécanique en considérant un solide isotrope affaibli par une famille de fissures de forme *penny-shaped* de normale parallèle à l'axe de sollicitation principale. L'évaluation des propriétés effectives de ce milieu multi-fissuré est alors obtenue suivant

un schéma de Mori-Tanaka. La propagation de l'endommagement est développée dans le cadre de la thermodynamique des milieux continus en adoptant un raisonnement semblable à la modélisation macroscopique du comportement. Les paramètres du modèle ont été identifiés à partir des essais de traction réalisés sur la matrice PP. Cette stratégie offre de bonne capacité de prédiction du comportement mécanique en traction du PP mais ne permet pas de reproduire la sensibilité à la vitesse de déformation.

Le modèle éléments-finis est construit à partir de plusieurs solides distincts, la matrice et les fibres, il est alors nécessaire de définir les interactions entre eux. Chaque nœud géométrique de l'interface est alors défini par deux nœuds, l'un appartenant à la fibre et l'autre à la matrice. Afin de définir une interface parfaite, les nœuds coïncidents de la fibre et de la matrice sont alors couplés et leur déplacement est identique. Un essai de traction a été reproduit numériquement en imposant à l'une des faces un déplacement linéaire en t. Cette stratégie offre de bon résultats quelque soit le taux de renfort et la vitesse de déformation. Cependant une surestimation des contraintes pour les déformations proches de la rupture est notée et peut provenir d'un manque de description des phénomènes physiques pris en compte dans la modélisation du comportement mécanique du PP. De plus, l'étude sur l'influence de la longueur des fibres a montré qu'après le seuil initial de propagation de l'endommagement, des fibres plus longues, améliorent les performances du composite par la diminution des sites fortement endommagés.

Perspectives

Le comportement non-linéaire des matériaux composites thermoplastiques est prépondérant, et les modèles permettant d'évaluer les propriétés élastiques de ceux-ci ne suffisent donc plus. Cette thèse ouvre une voie de prise en considération de la non-linéarité dans le comportement en traction de ce type de composite. La première approche qui consiste à supposer que la seule source de non-linéarité est la propagation de l'endommagement est prometteuse et offre des perspectives d'optimisation de la microstructure. Toutefois, cette stratégie a ses limites et la surestimation des contraintes obtenue pour les déformations proche de la rupture en est la preuve.

Ainsi, décrire le comportement de la matrice par une loi élasto-plastique endommageable par microfissuration permettrait d'améliorer les prédictions. De même, inclure les effets visqueux dans la modélisation du PP serait bénéfique tant du point de vue de la prédiction mais aussi pour la stabilité numérique de celle-ci. Cette problématique peut être délicat à mettre en œuvre.

De plus, à l'heure actuelle, le schéma de Mori-Tanaka, utilisé dans le cadre de cette thèse, ne prend en compte ni les interactions des fissures ni leurs interactions avec les fibres. De

même, la décohésion fibres / matrice n'est pas reproduite. La prise en compte de ces phénomènes affinerait considérablement les prédictions.

Afin d'étendre les prédictions du comportement mécanique de ces composites à d'autres sollicitations, il sera nécessaire de considérer le comportement des fibres non plus comme élastique isotrope mais comme (visco-) élastique anisotrope. Cependant, l'identification et la caractérisation fine du comportement des fibres végétales est complexe et constitue un champ d'investigation à part entière.

De même, dans le but d'accroître la fraction volumique accessible et sa rapidité, l'algorithme de génération de la microstructure pourrait être optimisé en perfectionnant les conditions de non-interférence et en incluant des opérations booléens entre les volumes. Ces travaux sont complexes [4] et le temps limité de la thèse n'a pas permis de les développer. De plus, la forme cylindrique des fibres adoptée ici engendre des phénomènes de concentration de contrainte aux extrémités, il pourrait donc être intéressant de permettre, lors de la génération du modèle, le choix de la forme des renforts. A l'heure actuelle, il est également possible de générer des renforts sphériques et la génération d'ellipsoïdes et de cylindres à extrémités hémisphériques est en cours de développement.

Une alternative à la modélisation du comportement de la matrice adoptée dans cette thèse (PP affaibli par des fissures de type *penny-shaped*) est en cours d'étude. Une description macroscopique du comportement du PP serait développée en adoptant une modélisation viscoélastique endommageable, suivant le cadre de Schapery [110], avec prise en compte de la plasticité [91].

Une étude de l'impact du vieillissement sur le comportement mécanique et sur l'endommagement des composites PP/Chanvre permettra également d'accroître nos connaissance sur ce type de matériau.

Bibliographie

[1] *Abaqus Analysis User's Manual.*

[2] H. Alamari and I.M. Low. Mechanical properties and water absorption behaviour of recycled cellulose fibre reinforced epoxy composites. *Polymer Testing*, 31 :620–628, 2012.

[3] M.C. Altan, S.S. Selcuk, I. Guceri, and R.B. Pipes. numerical prediction of three-dimensional fibre orientation in hele-shaws flows. *Polym. Eng. Sci.*, 30 :848–859, 1990.

[4] H. Altendorf. *3D Morphological Analysis and Modeling of Random Fiber Networks - applied on Glass Fber Reinforced Composites* -. PhD thesis, L'école nationale supérieure des mines de Paris et Technische Universität Kaiserslautern, 2011.

[5] S. Andrieux, Y. Bamberger, and J.J. Marigo. Un modèle de matériau microfissuré pour les roches et les bétons. *Journal de mécanique théorique et aplliquée*, 5(3) :471–513, 1986.

[6] A. Andriyana, N. Billon, and L. Silva. Mechanical response of a short thermoplastic : Experimental investigation and continuum mechanical modeling. *European Journal of Mechanics A/Solids*, 29 :1065–1077, 2010.

[7] A. Arbelaiz, B. Fernández, J.A. Ramos, A. Retegi, R. Llano-Ponte, and I. Mondragon. Mechanical properties of short flax fibre bundle/polypropylene composites : Influence of matrix/fibre modification, fibre content, water uptake and recycling. *Composites Science and Technology*, 65 :1582–1592, 2005.

[8] A. Ashori. Review paper woodplastic composites as promising green-composites for automotive industries ! *Bioresource Technology*, 99 :4661–4667, 2008.

[9] C. Baley. Analysis of the flax fibres tensile behaviour and analysis of the tensile stiffness increase. *Composites : Part A*, 33 :939–948, 2002.

[10] C. Baley. Fibres naturelles de renfort pour matériaux composites. Technical report, Technique de l'ingénieur, référence AM5130, 2004.

[11] C. Baley. Propriétés des fibres extraites de phanérogames marines (zostera marina). *Renforcement des polymères par des fibres végétales, journée scientifique technique - AMAC*, 16 :25–40, 2006.

[12] Z.P. Bazant. Quasibrittle fracture scaling and size effect - final report. *Materials and Structures*, 37 :547–568, 2004.

[13] Z.P. Bazant and S.D. Pang. Mechanics-based statistics of failure risk of quasibrittle structures and size effect on safety factors. In *Proceedings on the National Academy of Sciences*. 2006.

[14] G.W. Beckermann and K.L. Pickering. Engineering and evaluation of hemp fibre reinforced polypropylene composites : Fibre treatment and matrix modification. *Composites : Part A*, 39 :979–988, 2008.

[15] G.W. Beckermann and K.L. Pickering. Engineering and evaluation of hemp fibre reinforced polypropylene composites : Micro-mechanics and strength prediction modelling. *Composites : Part A*, 40 :210–217, 2009.

[16] M.D.H. Beg and K.L. Pickering. Mechanical performance of kraft fibre reinforced polypropylene composites : Influence of fibre length, fibre beating and hygrothermal ageing. *Composites : Part A*, 39 :1748–1755, 2008.

[17] M. Berveiller, J. Besson, T. Bornet, M. Bretheau, J.L. Chaboche, R. Fougères, E. Gautier, P. Gilormini, E. Maire, P. Suquet, and A. Zaoui. *Homogénéisation en mécanique des matériaux 2 Comportements non linéaires et problèmes ouverts*. Hermes Science, 2001.

[18] M. Berveiller, T. Bretheau, and R. Fougeres et al. *Homogénéisation en mécanique des matériaux 2. Comportement non linéaires et problèmes ouverts*, chapter Rappels sur les mécansimes de la plasticité et de l'endommagement, pages 203–249. Paris : Hermès, 2001.

[19] N. Billon. *Matériaux pour l'ingénieur*, chapter Chapitre XII : comportement mécanique des polymères, pages 153–162. Collection les cours de l'école des Mines de Paris, 2010.

[20] A.K. Bledzki and J. Gassan. Composites reinforced with cellulose based fibres. *Progress in Polymer Science*, 24 :221–274, 1999.

[21] E. Bodros, I. Pillin, N. Montrelay, and C. Baley. Could biopolymers reinforced by randomly scattered flax fibre be used in structural applications ? *Composites Science and Technology*, 67 :462–470, 2007.

[22] S. Bolte and F.P. Cordelières. A guided tour into subcellular colocalization analysis in light microscopy. *Journal of Microscopy*, 224 :213–232, 2006.

[23] C. Bonnafous, F. Touchard, L. Chocinski-Arnault, C. Dever, and G. Alise. Multi-scale damage analysis of hemp-fibre woven fabric/epoxy composites by using acoustic emission. In *JNC 16 Toulouse, France*, 2009.

[24] V. Bouchart. *Etude expérimentale et modélisation micromécanique du comportement et de l'endommagement des élastomères renforcés*. PhD thesis, Université des Sciences et Technologies De Lille, 2007.

[25] A. Bourmaud and C. Baley. Investigations on the recycling of hemp and sisal fibre reinforced polypropylene composite. *Polymer Defradation and Stability*, 92 :1034–1045, 2007.

[26] A. Bourmaud and S. Pimbert. Investigations on mechanical properties of poly(propylene) and poly(lactic acid) reinforced by miscanthus fibers. *Composites : Part A*, 39 :1444–1454, 2008.

[27] A. Bourmaud, J. Riviere, A. Le Duigou, G. Raj, and C. Baley. Investigations of the use of a mussel-inspired compatibilizer to improve the matrix-fiber adhesion of a biocomposite. *Polymer Testing*, 28 :668–672, 2009.

[28] P. Cailleau. *Effets thermiques et dommage mécanique au cours de la fatigue du polypropylene*. PhD thesis, Universtié de Poitiers, 1996.

[29] V. Carmona. *Etude de l'endommagement de matériaux composites par tomographie X et émission acoustique*. PhD thesis, L'Institut National des Sciences Appliquées de Lyon, 2009.

[30] S.Z.D. Cheng, J.J. Janimak, and J. Rodriguez. Cristalline structures of polypropylene homo- and copolymers. In *Polypropylene : Structure and morphology, 1st edition*. Chapman & Hall, 1995.

[31] F.R. Cichocki Jr. and J.L. Thomason. Thermoelastic anisotropy of a natural fiber. *Composites Science and Technology*, 62 :669–678, 2002.

[32] G. Cusatis, A. Beghini, and Z.P. Bazant. Spectral stifness microplane model for quasi-brittle composite laminates. *Journal of Applied Machanics*, 75 :1–6, 2008.

[33] A.C. De Albuquerque, K. Joseph, L. Hecker de Carvalho, and J.R.M. d'Almeida. Effect of wettability and ageing conditions on the physical and mechanical properties of uniaxially oriented jute-roving-reinforced polyester composites. *Compos. Sci. Technol.*, 60 (6) :833–844, 2000.

[34] I.M. De Rosa, C. Santulli, and F. Sarasini. Acoustic emission for monitoring the mechanical behaviour of natural fibre composites : A literature review. *Composites : Part A*, 40 :1456–1469, 2009.

[35] V. Deudé. *Non linéarités géométriques et physiques dans les milieux poreux : apport des méthode de changement d'échelle*. PhD thesis, Ecole Nationale des Ponts et Chaussées, 2002.

[36] V. Deudé, L. Dormieux, and D. Kondo. Micromechanical approach to non-linear poroelasticity : Application to cracked rocks. *Journal of Engineering Mechanics*, 128 :848–855, 2002.

[37] H.N. Dhakal, Z.Y. Zhang, and M.O.W. Richardson. Effect of water absorption on the mechanical properties of hemp fibre reinforced unsaturated polyester composites. *Composites Science and Technology*, 67 :1674–1683, 2007.

[38] I. Doghri and L. Tinel. Micromechanical modeling and computation of elasto-plastic materials reinforced with distributed-orientation fibers. *International Journal of Plasticity*, 21 :1919–1940, 2005.

[39] I. Doghri and L. Tinel. Micromechanics of inelastic composites with misaligned inclusions : Numerical treatment of orientation. *Computer methods in applied mechanics and engineering*, 195 :1387–1406, 2006.

[40] D. Dray Bensahkoun. *Prediction des propriétés thermo-élastiques d'un composite injecté et chargé de fibres courtes.* PhD thesis, Ecole Nationale Supérieure d'Arts et Métiers, 2006.

[41] A. Duval, A. Bourmaud, L. Augier, and C. Baley. Influence of sampling area of the stem on the mechanical properties of hemp fiber. *Materials Letters*, 65 :797–800, 2011.

[42] C. Duval. Polypropylènes (pp). Technical report, Techniques de l'Ingénieur, 2004.

[43] J.D. Eshelby. The determination of elastic field of an ellipsoidal inclusion and related problems. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Mathematical ans Physical Sciences*, 241 :376–396, 1957.

[44] A.G. Facca, M.T. Kortschot, and N. Yan. Predicting the elastic modulus of natural fibre reinforced thermoplastics. *Composites : Part. A*, 37 :1660–1671, 2006.

[45] A.G. Facca, M.T. Kortschot, and N. Yan. Predicting the tensile strength of natural fibre reinforced thermoplastics. *Composites Science and Technology*, 67 :2454–2466, 2007.

[46] E. Franco-Marquès, J.A. Méndez, M.A. Pèlach, F. Vilaseca, J. Bager, and P. Mutjé. Influence of coupling agents in the preparation of polypropelene reinforced with recycled fibres. *Chemical Engineering Journal*, 166 :1170–1178, 2011.

[47] K. Friedrich. Crazes and shear bands in semi-crystalline thermoplastics. *Advances in Polymer Science, Crazing in polymers*, 52/53 :225–274, 1983.

[48] J. George, M.S. Sreekala, and S. Thomas. A review on interface modification and characterization of natural fiber reinforced plastic composites. *Polymer Engineering and Science*, 41 (9) :1471–1485, 2001.

[49] S.Th. Georgopoulos, P.A. Tarantili, E. Avgerinos, A.G. Andreopoulos, and E.G. Koukios. Thermoplastic polymers reinforced with fibrous agricultural residues. *Polymer Degradation and Stability*, 90 (2) :3030–312, 2005.

[50] I.C. Gruescu. *Approche par changement d'échelle de l'endommagement des matériaux composites à matrice fragile.* PhD thesis, Université des Sciences et Technologies de Lille, 2004.

[51] S. Guessasma, M. Sehaki, D. Lourdin, and A. Bourmaud. Viscoelasticity properties of biopolymer composite materials determined using finite element calculation and nanoindentation. *Computational Materials Science*, 44 :371–377, 2008.

[52] J.L. Halary, F. Lauprêtre, and L. Monnerie. *Mécanique des matériaux polymères.* Belin, 2008.

[53] G.L. Hand. A theory of anisotropic fluids. *Journal of Fluid Mechanics*, 13 :33–46, 1962.

[54] K.H. Hanish and D. Stoyan. Stereological estimation of the radial distribution function of centres of spheres. *J. Microsc.*, 122 :131–141, 1981.

[55] T. Hatakeyama and H. Hatakeyama. *Thermal Properties of Green Polymers and Biocomposites.* Kluwer academic publishers, 2005.

[56] P.H. Hermans, J.J. Hermans, D. Vermaas, and A. Weidinger. Deformation mechanism of cellulose gels. iv. general relationship between orientation of the crystalline and that of the amorphous portion. *Journal of Polymer Science*, 3 :1–9, 1948.

[57] P.J. Herrera-Franco and A. Valadez-González. A study of the mechanical properties of short natural-fiber reinforced composites. *Composites : Part B*, 36 :597–608, 2005.

[58] T.A. Huy, R. Adhikari, T. lüpke, S. Hennig, and G.H. Michler. Molecular deformation mechanisms of isotactic polypropylene in alpha- and beta- crystal forms by ftir spectroscopy. *Journal of Polymer Science : Part B : Polymer Physics*, 49 :4478–4488, 2004.

[59] S. Jin and X.L. Gong. Influence du vieillissement en humidité relative sur les propriétés mécaniques des fibres de chanvre. In *20ème Congrès Français de Mécanique*, 2011.

[60] M.J. John and S. Thomas. Review biofibres and biocomposites. *Carbohydrate Polymers*, 71 :343–364, 2008.

[61] P.V. Joseph, G. Mathew, K. Joseph, G. Groeninckx, and S. Thomas. Dynamic mechanical properties of short sisal fibre reinforced polypropylene composites. *Composites : Part A*, 34 :275–290, 2003.

[62] S.V. Joshi, L.T. Drzal, A.K. Mohanty, and S. Arora. Are natural fiber composites environmentally superior to glass fiber reinforced composites ? *Composites : Part A*, 35 :371–376, 2004.

[63] L.M Kachanov. On the creep fracture time. *Izv Akag, Nauk USSR Otd Tech*, 8 :26–31, 1958. [russe].

[64] L.M. Kachanov. Introduction to continuum damage mechaniscs. *The Netherlands Nijhoff*, page 138, 1986.

[65] M. Kachanov and J.P. Laures. Three-dimensional problems os strongly interacting arbitrarily located penny-shaped cracks. *International Journal of Fracture*, 41 :289–313, 1989.

[66] A.C. Karmaker, A. Hoffmann, and G. Hinrichsen. Influence of water uptake on the mechanical properties of jute fibre reinforced polypropylene. *J. Appl. Polym Sci.*, 54 :1803–1807, 1994.

[67] P.A. Karnezis, G. Durrant, and B. Cantor. Characterization of reinforcement distribution in cast al-alloy/sicp composites. *Materials Characterization*, 40 :97–109, 1998.

[68] V. Karpov and M. Kaufman. Injection molding of glass reinforced nylon 66. *British PLastics*, 38 :498–506, 1965.

[69] E.J. Kramer and L.L. Berger. Craze growth and fracture. *Advances in Polymer Science, Crazing in polymers*, 91/92 :1–68, 1990.

[70] M. Krishnapillai, R. Jones, I.H. Marshall, M. Bannister, and N. Rajic. Thermography as a tool for damage assessment. *Composite Structures*, 67 :149–155, 2005.

[71] H. Ku, H. Wang, N. Pattarachaiyakoop, and M. Trada. A review on the tensile properties of natural fibre reinforced polymer composites. *Composites : Part B*, 42 :856–873, 2011.

[72] T. Labour, C. Gauthier, R. Séguéla, G. Vigier, Y. Bomal, and G. Orange. Influence of the ß crystalline phase on the mechanical properties of unfilled and caco3-filled polypropylene. i. structural and mechanical characterisation. *Polymer*, 42 :7127–7135, 2001.

[73] J.F. Labuz and L. Biolzi. Characteristic strength of quasi-brittle materials. *International Journal of Solids and Structure*, 35 :4191–4203, 1998.

[74] C. Lemaignan. *La rupture des matériaux*. EDP Sciences, 2003.

[75] J. Lemaitre. A continuous damage mechanics model for ductile fracture. *Journal of Engineering Materials Technology*, 107 :83–91, 1985.

[76] J. Lemaitre. Local approach of fracture. *Engineering Fracture Mechanics*, 25 :523–559, 1986.

[77] J. Lemaitre and J.J. Chaboche. A nonlinear model for creep fatigue cumulation and interaction. In *IUTAM symposium on mechanics of viscoelastic media and bodies*. Hult editor, 1975.

[78] J. Lemaitre and J.L. Chaboche. *Mécaniques des matériaux solides*. Dunod Paris, 1988.

[79] Y. Li, K.L. Pickering, and R.L. Farell. Determination of interfacial shear strength of white rot fungi treated hemp fibre reinforced polypropylene. *Composites Science and Technology*, 69 :1165–1171, 2009.

[80] J.Z. Lu, Q. Wu, and H.S. McNabb. Chemical coupling in wood fiber and polymer composites : a review of coupling agents and treatments. *Wood Fiber Sci*, 32 (1) :88–104, 2000.

[81] P. Lucas and G. Zanella. Mise en oeuvre des composites thermoplastiques - compounds à fibres courtes et longues. Technical report, Technique de l'Ingénieur, 2007.

[82] E. Maire, L. Salvo, P. Cloetens, and M. Di Michiel. Tomographie à rayons x appliquée à l'étude des matériaux. Technical report, Techniques de l'Ingénieur, 2004.

[83] J.J. Marigo. Formulation d'un loi d'endommagement d'un matériau élastique. *CR Acad Sc Paris*, II 292 :1309–1312, 1981.

[84] F. Meraghni and M.L. Benzeggah. Micromechanical modelling of matrix degradation in randomly oriented discontinuous-fibre composites. *Composites Science and Technology*, 55 :171–186, 1995.

[85] S. Mertens. *Hysteresis, damage and moisture effects in quasi-brittle porous materials.* PhD thesis, Katholieke Universiteit Leuven, 2009.

[86] A.J. Michell. Wood cellulose-organic polymer composites. *Composites Asia Pacific, Adelaide*, 89 :19–21, 1989.

[87] T. Mura. *Micromechanics of defects in solids 2nd edition.* Matinus Nijhoff Publ., 1987.

[88] P. Mutjé, A. Lòpez, M.E. Vallejos, J.P. López, and F. Vilaseca. Full exploitation of cannabis sativa as reinforcement/filler of thermoplastic composite materials. *Composites : Part A*, 38 :369–377, 2007.

[89] T.P. Nevell and S.H. Zeronian. Cellulose chemistry and its applications. *New York : Wiley*, 1985.

[90] N.A. Noda and Y. Takase. Intensity of singular stress fields at the fiber ends in fiber reinforced plastics. *International Journal of Solids and Structures*, 42 :4890–4908, 2005.

[91] L.O. Nordin and J. Varna. Nonlinear viscoplastic and nonlinear viscoelastic material model for paper fiber composites in compression. *Composites Part A : Applied Science and Manufacturing*, 37 :344–355, 2006.

[92] E. Onat. Représentation of mechanical behavior in the presence of internal damage. *Engineering Fracture Mechanics*, 25 :605–618, 1986.

[93] D.G. Papageorgiou, D.N. Bikiaris, and K. Chrissafis. Effect of crystalline structure of polypropylene random copolymers on mechanical properties and thermal degradation kinetics. *Thermochimica Acta*, 543 :288–294, 2012.

[94] T. Park and G.Z. Voyiadjis. Damage analysis and elasto-plastic behavior of metal matrix composites using the finite element method. *Engineering Fracture Mechanics*, 56 :623–646, 1997.

[95] S.C. Petts. *Characterisation of spatial dispersions Part II Thesis.* PhD thesis, University of Oxford, 1991.

[96] K.L. Pickering, G.W. Beckermann, S.N. Alam, and N.J. Foreman. Optimising industrial hemp fibre for composites. *Composites : Part A*, 38 :461–468, 2007.

[97] E.J. Piqué. *Fracture process zone of quasi brittle materials : a model material approach.* PhD thesis, Technische Universiteit Eindhoven, 2002.

[98] V. Placet. Characterization of the thermo-mechanical behaviour of hemp fibres intended for the manufacturing of high performance composites. *Composites : Part A*, 40 :1111–1118, 2009.

[99] V. Placet, F. Trivaudey, O. Cisse, V. Gucheret-Retel, and L. Boubakar. Diameter dependence of the apparent tensile modulus of hemp fibres : A morphological, structural or ultrastructural effect ? *Composites : Part A*, 43 :275–287, 2012.

[100] M. Ponçot. *Comportements thermomécaniques de polymères chargés selon différents chemins de déformation et traitement thermiques.* PhD thesis, Institut National Polytechnique de Lorraine, 2009.

[101] L.A. Pothan, Z. Oommen, and S. Thomas. Dynamic mechanical analysis of banana fiber reinforced polyester composites. *Compos. Sci. Technol.*, 63 :283–293, 2003.

[102] M. Pracella, D. Chionna, I. Anguillesi, Z. Kulinski, and E. Piorkowska. Functionalization, compatibilization and properties of polypropylene composites with hemp fibres. *Composites Science and Technology*, 66 :2218–2230, 2006.

[103] S. Prager. Stress-strain relation in a suspension of dumbells. *Trans. Soc. Rheol.*, 1 :53, 1994.

[104] H.G.B. Premalal, H. Ismail, and A. Baharin. Comparison of the mechanical properties of rice husk powder filled polypropylene composites with talc filled polypropylene composites. *Polymer Testing*, 21 :833–839, 2002.

[105] Y.U. Rabotnov. Creep rupture. In *XII international congress on applied mechanics*, 1969.

[106] M. Ragoubi, D. Bienaimé, S. Molina, B. George, and A. Merlin. Impact of corona treated hemp fibres onto mechanical properties of polypropylene composites made thereof. *Industrial Crops and Products*, 31 :344–349, 2010.

[107] A. Redjeb. *Simulation numérique de l'orientation de fibres en injection de thermoplastique renforcé.* PhD thesis, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2007.

[108] A. Redjeb, P. Laure, L. Silva, M. Vincent, and T. Coupez. Simulation numérique de l'orientation de fibres en injection de thermoplastique renforcé. In *17ème Congrès Français de Mécanique*, 2005.

[109] R.A. Schapery. Nonlinear viscoelastic and viscoplastic constitutive equations based on thermodynamics. *Mechanics of Time-Dependent Materials*, 1 :209–240, 1997.

[110] R.A. Schapery. Nonlinear viscoelastic and viscoplastic constitutive equations with growing damage. *International Journal of Fracture*, 97 :33–66, 1999.

[111] P. Shokri and N. Bhatnagar. Effect of packing pressure on fibre orientation in injection molding of fiber reinforced thermoplastics. *Polymer Composites*, 28 :214–223, 2007.

[112] L. Sobczak, R.W. Lang, and A. Haider. Polypropylene composites with natural fibers and wood - general mechanical property profiles. *Composites Science and Technology*, 72 :550–557, 2012.

[113] R. Steinberger, T.I. Valadas Leitão, E. Ladstätter, G. Pinter, W. Billinger, and R.W. Lang. Infrared thermographic techniques for non-destructive damage characterization of carbon fibre reinforced polymers during tensile fatigue testing. *International Journal of Fatigue*, 28 :1340–1347, 2006.

[114] Y. Takao and M. Taya. The effect of variable fiber aspect ratio on the stiffness and thermal expension coefficents of a short fiber composite. *Journal of Composites Materials*, 21 (2) :140–156, 1987.

[115] P.A. Templeton. Strength predictions of injection molding compounds. *Plastic Composites*, 9 :210–225, 1990.

[116] C. Thiery. Tomographie à rayons x. Technical report, Tehniques de l'Ingénieur, 2002.

[117] Ph. Tordjeman, C. Robert, and P. Gerard. The effect of alpha, beta crystalline structure on the mechanical properties of polypropylene. *The European Physical Journal E*, 4 :459–465, 2001.

[118] F.G. Torres and M.L. Cubillas. Study of the interfacial properties of natural fibre reinforced polyethylene. *Polymer Testing*, 24 :694–698, 2005.

[119] L. Toubal, M. Karama, and B. Lorrain. Damage evolution and infrared thermography in woven composite laminates under fatigue loading. *International Journal of Fatigue*, 28 :1867–1872, 2006.

[120] A. Valadez-Gonzalez, J.M. Cervantes-Uca, R. Olayo, and P.J. Herrera-Franco. Effect of fiber surface treatment on the fiber-matrix bond strength of natural fiber reinforced composites. *Composites : Part B*, 30 :309–320, 1999.

[121] M. Vincent and J.F. Agassani. A study of glass fiber orientation in flows of polymer composites. In *Materials Science Monographs, Vol 21 Proceedings of the UUPAC International Symposium on Interrelations Between Processing, Structure and Properties of Polymeric Materials,*, 1982.

[122] G.Z. Voyiadjis and B. Deliktas. A coupled anisotropic damage model for inelastic response of composite materials. *Computer methods in applied mechanics and engineering*, 183 :159–199, 2000.

[123] G.Z. Voyiadjis and P.I. Kattan. *Advances in damage mechanics : metals and metal matrix composites.* The Netherlands : Elvesier Science, 1999.

[124] G.Z. Voyiadjis, Z.N. Taqieddin, and P.I. Kattan. Micromechanical approach to damage mechanics of composite materials with fabric tensors. *Composites Part B : engineering*, 38 :862–877, 2007.

[125] P. Wambua, J. Ivens, and I. Verpoest. Natural fibres : can they replace glass in fibre reinforced plastics ? *Composites Science and Technology*, 63 :1259–1264, 2003.

[126] B. Weber, B. Kenmeugne, J.C. Clement, and J.L. Robert. Improvement of multiaxial fatigue criteria computation for a strong reduction of calculation duration. *Computational Materials Science*, 15 :381–399, 1999.

[127] H. Welemane. *Une modélisation des matériaux microfissurés Application aux roches et aux bétons*. PhD thesis, Université des sciences et Technologies de Lille, 2002.

[128] S. Youssef, E. Maire, and R. Gaertner. Finite element modelling of the actual structure of cellular materials determined by x-ray tomography. *Acta Materialia*, 53 :719–730, 2005.

[129] X.P. Zhou, R.K.Y. Li, X.L. Xie, and S.C. Tjong. Reinforcement of polypropylene using sisal fibers grafted with poly (methyl methacrylate). *Journal of Applied Polymer Science*, 88 :1055–1064, 2003.

[130] Q. Zhu. *Applications des approches d'homogénéisations à la modélisation tridimensionnalle de l'endommagement des matériaux quazi fragiles : formulations, validations et implémentations numeriques*. PhD thesis, Université des Sciences et Technologies de Lille, 2006.

Annexe A Paramètres d'injection

TABLEAU 5.1 – Conditions d'injection de nos éprouvettes

Paramètres	Injection 1	Injection 2	Injection 3	Injection 4
Référence :	**LaBPS 01**	**LaBPS 02**	**LaBPS 03**	**LaBPS 04**
N° lot	**VA 200110**	**VA 250110**	**VA 250110**	**VA 260110**
THR 130°C compound	**0,10%**	**0,21%**	**0,38%**	**0,49%**
Températures °C (Alimentation → Buse)	160/170/180/ 190/200 °C	160/170/180/ 190/200 °C	160/170/180/ 190/200 °C	160/170/180/ 190/200 °C
Empreinte	Eprouvette	Eprouvette	Eprouvette	Eprouvette
Vitesse dosage (v401) m/min	25	25	15	15
Volume de dosage (V403) cm^3	16,5	16	17	16,5
Contre Pression (p401) bar	150	100	100	75
Temps dosage (t402M) s	1,4	1,2	2,3	3,2
Pression injection (p301) bar	**1100**	**1100**	**1275**	**900**
Débit injection (Q301) cm^3/s	**20**	**20**	**40**	**70**
Commutation (V311) cm^3	5	2,5	2,5	2
Pression maintien (p321) bar	**950**	**950**	**1150**	**800**
Débit maintien (Q321) cm^3/s	**20**	**20**	**40**	**70**
Temps de maintien (t321) s	15	15	15	15
Temps refroidissement (t400) s	20	20	20	20
Temps cycle (t902M) s	43,4	41,7	41,2	41,0
Matelas (V321I) s	1,9	1,1	0,9	1,0
Vitesse éjecteur (v602) mm/s	50	50	50	50
Force éjecteur (F601) kN	10	10	10	10
Position buse	Décollée	Décollée	Décollée	Décollée
Température moule °C	40	40	40	40

Annexe B Détermination du module tangent selon un schéma de Mori-Tanaka

Les calculs nécessaires à la détermination du tenseur des rigidités tangent selon le schéma pour implémenter le comportement avec endommagement progressif sont détaillés dans cette annexe.

Au début du pas $n+1$, l'énergie libre macroscopique s'écrit :

$$\Psi\left(\underline{\underline{\mathrm{E}}}^{n+1},\, d_n\right) = \frac{1}{2}\underline{\underline{\mathrm{E}}}^{n+1} : \widetilde{\mathrm{C}}_{n+1}^{eff}\left(d_n\right) : \underline{\underline{\mathrm{E}}}^{n+1}$$

Cette expression permet de définir les deux lois d'état gouvernant le comportement de notre milieu multi-fissuré. La première loi définit la contrainte :

$$\Sigma^{n+1} = \frac{\partial \Psi\left(\underline{\underline{\mathrm{E}}}^{n+1},\, d_n\right)}{\partial \underline{\underline{\mathrm{E}}}} = \widetilde{\mathrm{C}}_{n+1}^{eff}\left(d_n\right) : \underline{\underline{\mathrm{E}}}^{n+1}$$

et la deuxième loi, la force thermodynamique associée à l'endommagement :

$$F_{n+1}^{d_n}\left(\underline{\underline{\mathrm{E}}}^{n+1},\, d_n\right) = -\frac{\partial \Psi\left(\underline{\underline{\mathrm{E}}}^{n+1},\, d_n\right)}{\partial d_n} = -\frac{1}{2}\underline{\underline{\mathrm{E}}}^{n+1} : \frac{\partial \widetilde{\mathrm{C}}_{n+1}^{eff}\left(d_n\right)}{\partial d_n} : \underline{\underline{\mathrm{E}}}^{n+1}$$

On suppose à présent que l'endommagement se propage, ce qui signifie que

$$f_{n+1}^{d_n} = F_{n+1}^{d_n}\left(\underline{\underline{\mathrm{E}}}^{n+1},\, d_n\right) - \left(a_0 + a_1 \cdot d_n\right) > 0$$

La condition de consistance $\dot{f}_{n+1}^{d_n}$ s'écrit alors

$$\frac{\partial f_{n+1}^{d_n}}{\partial \underline{\underline{\mathrm{E}}}} : \dot{\underline{\underline{\mathrm{E}}}} + \frac{\partial f_{n+1}^{d_n}}{\partial d_n} \cdot \dot{d}_{n+1} = 0$$

La différentiation temporelle de la première loi d'état permet de présenter la formulation en vitesse du problème :

$$\begin{aligned}
\dot{\Sigma}_{n+1} &= \widetilde{\mathrm{C}}^{eff}_{n+1}(d_n) : \dot{\underline{\underline{\mathrm{E}}}} + \dot{\widetilde{\mathrm{C}}}^{eff}_{n+1}(d_n) : \underline{\underline{\mathrm{E}}} \\
&= \widetilde{\mathrm{C}}^{eff}_{n+1}(d_n) : \dot{\underline{\underline{\mathrm{E}}}} + \frac{\partial \widetilde{\mathrm{C}}^{eff}_{n+1}(d_n)}{\partial d_n} : \underline{\underline{\mathrm{E}}} \cdot \dot{d}_{n+1} \\
&= \widetilde{\mathrm{C}}^{eff}_{n+1}(d_n) : \dot{\underline{\underline{\mathrm{E}}}} - \frac{\partial F^{d_n}_{n+1}\left(\underline{\underline{\mathrm{E}}}^{n+1},\, d_n\right)}{\partial \underline{\underline{\mathrm{E}}}} \cdot \dot{d}_{n+1}
\end{aligned}$$

or la condition de consistance permet d'obtenir l'évolution de la variable d'endommagement :

$$\dot{d}_{n+1} = -\frac{1}{\frac{\partial f^{d_n}_{n+1}}{\partial d_n}} \cdot \frac{\partial f^{d_n}_{n+1}}{\partial \underline{\underline{\mathrm{E}}}} : \dot{\underline{\underline{\mathrm{E}}}}$$

d'où

$$\begin{aligned}
\dot{\Sigma}_{n+1} &= \widetilde{\mathrm{C}}^{eff}_{n+1}(d_n) : \dot{\underline{\underline{\mathrm{E}}}} - \frac{1}{-\frac{\partial f^{d_n}_{n+1}}{\partial d_n}} \cdot \frac{\partial F^{d_n}_{n+1}\left(\underline{\underline{\mathrm{E}}}^{n+1},\, d_n\right)}{\partial \underline{\underline{\mathrm{E}}}} \otimes \frac{\partial f^{d_n}_{n+1}}{\partial \underline{\underline{\mathrm{E}}}} : \dot{\underline{\underline{\mathrm{E}}}} \\
&= \left(\widetilde{\mathrm{C}}^{eff}_{n+1}(d_n) - \frac{1}{-\frac{\partial f^{d_n}_{n+1}}{\partial d_n}} \cdot \frac{\partial F^{d_n}_{n+1}\left(\underline{\underline{\mathrm{E}}}^{n+1},\, d_n\right)}{\partial \underline{\underline{\mathrm{E}}}} \otimes \frac{\partial F^{d_n}_{n+1}\left(\underline{\underline{\mathrm{E}}}^{n+1},\, d_n\right)}{\partial \underline{\underline{\mathrm{E}}}} \right) : \dot{\underline{\underline{\mathrm{E}}}}
\end{aligned}$$

où l'opérateur tangent est :

$$\widetilde{\mathrm{C}}^{t} = \widetilde{\mathrm{C}}^{eff}(d_n) - \frac{1}{-\frac{\partial f^{d_n}}{\partial d_n}} \cdot \frac{\partial F^{d_n}\left(\underline{\underline{\mathrm{E}}},\, d_n\right)}{\partial \underline{\underline{\mathrm{E}}}} \otimes \frac{\partial F^{d_n}\left(\underline{\underline{\mathrm{E}}},\, d_n\right)}{\partial \underline{\underline{\mathrm{E}}}}$$