

# Contribution à l'étude du comportement de matériaux présentant des phénomènes de couplage multiphysique: application aux matériaux composites à matrice polymère et aux matériaux adaptatifs

Florence Dinzart

# ▶ To cite this version:

Florence Dinzart. Contribution à l'étude du comportement de matériaux présentant des phénomènes de couplage multiphysique : application aux matériaux composites à matrice polymère et aux matériaux adaptatifs. Sciences de l'ingénieur [physics]. Université de Lorraine, 2016. tel-04133321

# HAL Id: tel-04133321 https://hal.univ-lorraine.fr/tel-04133321

Submitted on 21 Jun2023

**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.





Habilitation à Diriger des Recherches

présentée par Florence Dinzart

soutenue le 24 juin 2016

Contribution à l'étude du comportement de matériaux présentant des phénomènes de couplage multiphysique :

application aux matériaux composites à matrice polymère et aux matériaux adaptatifs

JURY :

Rapporteurs

Mme. Véronique Favier, Professeur Arts et Métiers Paristech, Paris M. Jean-Claude Grandidier, Professeur ISAE-ENSMA, Poitiers M. Moussa Naït-Abdelaziz, Professeur Polytech', Lille

Examinateurs

M. Jean-François Ganghoffer, Professeur Université de Lorraine, LEMTA-ENSEM, Nancy

M. Paul Lipinski, Professeur ENIM-LaBPS, Metz

M. Hafid Sabar, Professeur ENIM-LaBPS, Metz





# Préambule

Ce dossier réalisé en vue de l'obtention d'une habilitation à diriger des recherches comporte deux parties. La première partie est dédiée à une synthèse de mes activités d'enseignement, de gestion administrative et des thématiques de recherche que j'ai abordées depuis mon recrutement en tant que maître de conférences. Les principaux résultats issus de mes activités de recherche et d'encadrement sont présentés de façon synthétique et succincte dans le résumé de la première partie. Renvoi est fait en annexe pour situer publications et conférences dans un contexte international. Les travaux d'encadrement font références nominativement à l'étudiant, le tableau en annexe permettant de trouver les sujets de stage ou de thèse. La seconde partie aborde de façon plus détaillée mes travaux de recherche principalement sur les phénomènes de couplage multiphysique se manifestant dans les composites à matrice polymère et les matériaux adaptatifs. Sont également abordées des thématiques connexes liées à la modélisation de phénomènes d'instabilité thermique dans les polymères et l'endommagement de composites. Cette seconde partie du mémoire se conclut par le projet de recherche en droit prolongement de mes activités actuelles de modélisation du comportement des composites par méthode à transition d'échelles.

Les activités d'enseignement et de recherche présentées dans ce document s'articulent autour de deux périodes distinctes de ma carrière d'enseignant-chercheur. A l'issue de ma thèse soutenue en 1994, j'ai obtenu un poste de maître de conférences à l'Université de Metz. Détentrice de l'Agrégation de Mécanique, mon activité d'enseignement s'est alors essentiellement concentrée sur la préparation aux concours de l'enseignement (Capet Génie Mécanique, Capet Technologie, Agrégation Génie Mécanique et Agrégation Mécanique, concours interne et externe). Mon activité de recherche était alors consacrée à l'analyse du développement de phénomènes d'instabilité dans l'équipe 'conditions extrêmes' du professeur Alain Molinari. Partie de l'établissement de critères d'instabilité thermique dans des matériaux métalliques décrits par des lois phénoménologiques, j'ai commencé par tester les mêmes démarches sur les polymères dont le comportement présente de forts couplages thermomécaniques.

J'ai eu l'opportunité en 2004 de demander ma mutation à l'Ecole Nationale d'Ingénieurs de Metz (ENIM). Simultanément, l'ENIM a fait l'acquisition de nombreuses machines d'analyse des thermoplastiques et a proposé une formation plus spécifique aux matériaux composites à travers une option de spécialisation de 5<sup>ième</sup> année à laquelle j'ai pris part. L'utilisation fréquente des polymères comme matrice de composite m'a alors entraînée vers les approches à transition d'échelles permettant de mieux prédire de comportement de matériaux multiphasiques et de matériaux 'intelligents' régis par des couplages multiphysiques. Cette reconversion thématique s'est déroulée grâce aux professeurs Lipinski et Sabar qui m'ont convertie à ces méthodes d'étude des composites. Je me suis également employée à analyser dans ce cadre le couplage viscoélastique inhérent à tout polymère. Ce couplage est particulièrement délicat à analyser car il provoque des interactions mécaniques différées entre les

# Synthèse des activités de recherche

J'ai intégré l'équipe 'Conditions Extrêmes' du Professeur Molinari en octobre 1991 afin d'y préparer une thèse traitant des problèmes d'instabilité d'écoulement plastique dans des métaux sollicités à grande vitesse. Suite à mon recrutement sur un poste de maître de conférences à l'Université de Metz en 1994, j'ai mis à profit mon expérience des instabilités thermiques et des couplages thermomécaniques pour des matériaux par nature sensibles à la température : les polymères thermoplastiques. Je me suis alors orientée vers la caractérisation thermomécanique de mélanges de thermoplastiques et de composites. J'ai procédé à une réorientation de mes activités de recherche en 2004 grâce aux professeurs Lipinski et Sabar qui m'ont fait découvrir les approches micromécaniques et leurs pertinences dans la prédiction du comportement de composites renforcés. Certaines extensions et applications ne figurant pas dans le développement de la seconde partie du mémoire sont évoquées brièvement.

### 1. Couplage thermomécanique

Les phénomènes d'instabilité de l'écoulement plastique observés dans les matériaux sollicités à grande vitesse relèvent de phénomènes de couplage thermomécanique aboutissant à un processus autocatalytique par augmentation combinée de la température et de la déformation. La modélisation de ces phénomènes physiques développée dans ma thèse aboutissait à l'étude du cisaillement de Couette plan d'une couche mince présentant en son centre un défaut géométrique équivalent à une augmentation locale de la température (*Dinzart et al., 1994a et 1994b*). Les critères d'instabilité non linéaires ont été établis en superposant une perturbation dont l'évolution relative par rapport à la solution homogène est analysée à travers ses limites asymptotiques.

Si la localisation de la déformation peut être considérée adiabatique à son initiation, la structuration des bandes de cisaillement durant le processus final dépend de la compétition des phénomènes de diffusion et de couplage thermomécanique favorisant la localisation de la déformation. Nous avons donc repris l'analyse de stabilité du cisaillement de Couette en fonction d'une distance caractéristique de diffusion thermique afin de déterminer les temps de localisation de la déformation à rupture. Le modèle développé s'est révélé être en bonne adéquation avec les résultats expérimentaux (*Dinzart et Molinari, 1998a*).

Suite à une collaboration scientifique initiée par Alain Molinari avec Yves Germain (ingénieur chez Elf-Atochem en 1998) sur le développement d'instabilité thermique dans des élastomères, des critères de stabilité à des chargements cycliques élémentaires ont été établis : torsion (*Dinzart et Molinari, 1998b*) et flexion (*Dinzart et al., 2008*). La méthode repose sur l'analyse de l'évolution de la température moyenne sur un cycle d'oscillation estimée en effectuant des bilans énergétiques liés au module de dissipation du matériau. Les critères de stabilité mis en évidence dépendent de la géométrie, de la formulation du module de dissipation, de la fréquence imposée des conditions d'applications des

sollicitations (en déplacement, en contrainte ou mixte). L'approche expérimentale des phénomènes d'emballement thermique a été réalisée sur un polymère amorphe (PMMA) après ma mutation à l'ENIM sur une machine de spectrométrie mécanique (*master Roth*, 2006).

Afin d'étendre les critères de stabilité à une plus large palette de matériaux, nous avons considéré une loi de comportement viscoélastique non linéaire en introduisant une sensibilité à la vitesse de déformation (*Dinzart et Molinari, 2004*). Enfin l'analyse de stabilité d'écoulement de polymères à l'état fondu a été étudiée dans le cadre de sollicitations monotone et cyclique en utilisant une loi dissipative exponentielle (*master Malvy, 1998*).

Ce travail a l'objet de *6 articles* dans des revues à comité de lecture, *3 communications internationales* avec actes. Il a donné lieu à l'encadrement de *2* masters (*Malvy et Roth*).

## 2. Couplage viscoélastique - comportement de composites à renforts enrobés

Les phénomènes d'instabilité d'origine thermomécanique sont directement tributaires de la description du comportement dissipatif des polymères. J'ai donc investigué des modèles empiriques 'fonctionnels' autres que les modèles rhéologiques issus des associations classiques de Maxwell et de Kelvin-Voigt.

L'estimation du comportement effectif de matériaux viscoélastiques réside dans la prise en compte du couplage dans l'espace-temps des équations d'équilibre et des lois de comportement. J'ai abordé cette difficulté à travers deux méthodes dont les résultats peuvent éventuellement être interconnectés : les *approches héréditaires* utilisant les solutions du problème élastique symbolique dans l'espace de Laplace et les *approches à variables internes* qui permettent d'évaluer directement la réponse du matériau dans l'espace temporel par introduction de variables internes.

#### 2.1 Modèles micromécaniques - approches héréditaires

L'utilisation de modèles 'fonctionnels' permet une description fidèle du comportement viscoélastique obtenu par DMA avec un nombre réduit de paramètres (4 à 5). La principale amélioration vient d'un amortisseur à 'comportement' décrit par un module complexe  $E(i\omega\tau)^{\alpha}$ . Le formalisme mathématique sous-jacent implique l'utilisation de dérivées d'ordre non entier  $\alpha$  (master Signor, 2004; Dinzart et Lipinski, 2009). La prédiction du comportement effectif de mélanges de matériaux viscoélastiques est abordée simplement par des approches héréditaires en utilisant la solution élastique symbolique dans l'espace de Laplace (master Henquinet, 2006 ; master Anoukou, 2009). Une approche d'homogénéisation autocohérente a permis l'établissement de module effectif d'un composite biphasé (Dinzart et Lipinski, 2010).

Les modèles rhéologiques élémentaires utilisés dans la littérature pour décrire la viscoélasticité reposent très souvent sur des modèles de Maxwell généralisés. Cependant, la combinaison des structures élémentaires de type Maxwell n'est pas unique et leur nombre élevé allonge considérablement les temps

de calcul (*master Vallet, 2015*). La prédiction du comportement effectif de composites de phases viscoélastiques a été exprimée dans le domaine fréquentiel à partir de la solution du problème équivalent élastique (*thèse Schoeneich, à soutenir 2016 et article soumis*). Le modèle développé devrait permettre l'identification par méthode inverse du comportement de l'interphase dont le volume a été estimé par nano-indentation (*voir communications Schoeneich*). Le comportement effectif dans l'espace fréquentiel est obtenu sous une forme symbolique à partir de la résolution du problème de l'inclusion multi-enrobée à comportement élastique développée dans la section 2.4 (*Dinzart et al. 2016*).

Ce travail a l'objet de 2 articles dans des revues à comité de lecture, 4 communications internationales avec actes. Il a donné lieu à l'encadrement de 4 masters (Signor, Henquinet, Anoukou et Vallet) et de 1 thèse (Schoeneich) en cotutelle avec l'Université de la Sarre. Un article est actuellement soumis à publication.

# 2.2 Modèles micromécaniques – approches à variables internes

L'analyse du comportement de composites viscoélastiques à inclusions multi-enrobées est abordée à travers une approche à variables internes décrivant l'état du matériau à chaque instant. La formulation intégrale classique issue de l'utilisation de fonctions de Green fait apparaître des intégrales de volume des champs de contrainte hétérogènes délicates à évaluer. La difficulté est levée par une double formulation des équations de Navier inspirée des travaux de Coulibaly et Sabar (2010). Une nouvelle équation intégrale est écrite en fonction d'opérateurs de Green modifiés associés au comportement élastique et visqueux et de termes de fluctuations. La notion d'opérateurs interfaciaux a été étendue en viscoélasticité pour les enrobages successifs en introduisant les variables internes indispensables à l'établissement des relations de localisation (*Dinzart et Sabar, 2014*). Le comportement effectif du composite est abordée par le comportement effectif d'un composite à deux et trois phases sont comparées avec succès à la solution exacte symbolique. Une étude paramétrique des effets des propriétés de l'interphase et de ses dimensions a confirmé les tendances trouvées dans la littérature pour des composites. La démarche développée a été appliquée au cas de composites fibreux sollicités en cisaillement anti-plan et en traction uniaxiale (*master Kodjo, 2013*).

Cette approche à variables internes a permis l'établissement d'une loi d'interaction unique et exacte (*Berbenni et al., 2015*). Cette méthode identifie l'évolution du champ de contrainte hétérogène dans l'inclusion qui apparaît comme la variable interne du problème. La réponse du matériau composite est en bon accord avec celle issue de la littérature dans le cas d'inclusions sphériques et pour un comportement Maxwellien. La méthode développée permet en outre une description plus précise des régimes transitoires comparativement aux modèles à champ translatés.

Ce travail a l'objet de *2 articles* dans des revues à comité de lecture. Il a donné lieu à l'encadrement de *1* master (*Kodjo*).

#### 2.3 Comportement thermomécanique des composites renforcés à matrice polymère

Le développement de ce thème a été initié afin de proposer un cadre applicatif aux modèles développés sur les composites à matrice polymère thermoplastique. L'originalité porte sur la nature des renforts : matières premières secondaires, fibres végétales et inclusions minérales. Le problème-clé soulevé par la conception de ces nouveaux composites réside dans les phénomènes d'endommagement inhérents à la combinaison de phases de propriétés mécaniques et thermiques fortement dissemblables et de la complexité des renforts choisis : forte incompatibilité chimique avec la matrice, aspérités et concavité des inclusions, taux d'humidité, création de porosités et de clusters.

Un des axes de ce thème est dédié aux renforts caoutchouc issus de pneumatiques broyés (*thèse J. Olhagaray, 2012*). La première étape a consisté en la formulation (choix de matrice et compatibilisant) et la réalisation d'échantillons du composite. Nous avons développé un dispositif de traction tomographique RX in-situ en collaboration avec J-M Hiver de l'Institut Jean Lamour de Nancy. Nous avons établi une cinétique d'endommagement initiée par cavitation des inclusions d'élastomère suivie de la déformation plastique localisée de la matrice. Une modélisation par éléments finis basée sur le maillage d'un échantillon issus d'images tomographiques préalablement segmentées a permis la reproduction d'essais de traction. La simulation numérique a permis de retrouver les phénomènes d'instabilité plastique sous forme de bandes de cisaillement émanant de l'équateur des particules. Ces travaux sont actuellement poursuivis en collaboration le Pr S. Wronski de Cracovie (AGH University of Science and Technology).

Un second axe de cette thématique a porté sur l'intégration de fibres courtes végétales (chanvre) en remplacement de renforts synthétiques dans les thermoplastiques (*Thèse F. Gehring, 2013*). Nous avons reproduit la microstructure du composite à partir des résultats d'imagerie tomograhique RX sur la distribution des fibres. L'étude expérimentale a montré un comportement de la matrice présentant de multiples fissures normales à l'axe de traction. La fissuration de la matrice a été reproduite par une description micromécanique de défauts type 'platelet' sans interactions. L'évolution de la densité de fissure a été décrite par une condition de consistance associée à une loi affine de résistance à la propagation de fissures. Des premiers essais de simulation numérique ont permis de retrouver l'amélioration de la résistance mécanique des composites à fibres longues prévue dans la littérature. Des caractérisations complémentaires du comportement de la matrice ont été menées (*master Kounoudji, 2012*) afin d'étendre le modèle proposé à un domaine de comportement viscoélastique non linéaire. Ces travaux devraient être poursuivis avec Mr Gehring qui a obtenu un poste de maître de conférences à Alençon (Université de Caen).

Ce travail a l'objet de 2 articles dans des revues à comité de lecture, 3 communications internationales avec actes et 2 communications nationales avec actes. Il a donné lieu à l'encadrement de 1 master (Kounoudji) et de 2 thèses soutenues (Olhagaray et Gehring).

# 2.4 Comportement de composites à renforts enrobés

Lors de la réalisation de matériaux composites se créée une interphase d'épaisseur finie entre les renforts et la matrice. Cette interphase peut être volontairement introduire pour améliorer l'adhésion des renforts et le transfert de charge ; mais elle peut également traduire une forme d'imperfection de l'interface. Les approches micromécaniques permettent d'accéder au comportement effectif des composites en fonction des propriétés et géométries des renforts. Une méthode alternative à la méthode de la Double-Inclusion d'Hori et Nemat-Nasser (1993) été développée en effectuant des simplifications de l'équation intégrale en deux étapes. La première étape fournit l'équation de localisation de l'inclusion-composite dans le milieu homogène équivalent. La seconde étape décrit les relations de localisation de l'inclusion-composite par rapport à son enrobage immédiat, fournissant ainsi des relations récursives liant les champs moyens de déformation. Cette méthode développée dans le cadre de l'élasticité se généralise à tout type de comportement. Le principal intérêt est, comme pour la méthode de la DI, la possibilité de considérer des inclusions à enrobages non homothétiques (*Dinzart et al. 2016*). Le modèle développé présente une meilleure concordance avec les résultats analytiques pour les problèmes de composites élastiques isotropes à renforts sphériques que le modèle de la Double-Inclusion.

Afin de décrire l'influence combinée d'une interface imparfaite et de la géométrie des renforts dans le cadre de comportement anisotrope, nous avons proposé un modèle micromécanique intégrant les termes de discontinuités du champ de déplacement dans l'équation intégrale par utilisation d'opérateurs interfaciaux. Nous avons proposé une expression des tenseurs de localisation en fonction du saut de déformation à l'interface. Nous retrouvons les expressions analytiques exactes issues de la littérature dans le cas d'une interface décrite par un comportement linéaire ('linear spring model') et pour des inclusions sphériques.

Le problème de l'interphase a l'objet de *1 article* dans l'International Journal of Engineering Science. Le problème de l'interface imparfaite est soumis à l'International Journal of Solids and Structures.

# 3. Comportement de matériaux adaptatifs

Les matériaux piézorésistifs ou magnétostrictifs sont souvent intégrés à une matrice polymère afin d'accroître les propriétés de résistance mécanique et de souplesse du composite. L'augmentation du transfert de la déformation élastique à travers les renforts favorise les transferts des différentes formes d'énergie. La formulation des propriétés effectives du composite est cependant compliquée par le couplage des propriétés mécaniques, électriques et magnétiques.

Cette thématique est consacrée à la détermination du comportement effectif magnéto-électroélastique d'un composite avec des renforts enrobés dans le cas général de comportement anisotrope. L'inclusion enrobée est décrite par deux ellipsoïdes homothétiques concentriques. Le couplage électroélastique ou magnéto-électro-élastique entre les enrobages successifs est décrit par une matrice comportant 4 ou 9 tenseurs exprimés grâce à des opérateurs interfaciaux. Dans le cas de composites électro-élastiques renforcés, nous avons établi des tenseurs de localisation et exprimé les modules effectifs qui se sont révélés être en accord avec les résultats de la littérature antérieurs et postérieurs à notre étude (*Dinzart et Sabar, 2009*). L'analyse de l'enrobage dans les composites magnéto-électroélastiques a été conduite afin de cerner l'influence de la forme (platelet à cylindrique), de l'orientation par rapport à la direction de polarisation et de l'épaisseur (*Dinzart et Sabar, 2011*). L'étude de composites magnéto-électro-élastiques fibreux sollicité en mode 'anti-plan' a été menée pour renforcer les connexions avec les résultats obtenus dans la littérature par transformations conformes (*Dinzart et Sabar, 2012*).

Les travaux sur les matériaux composites présentant des phénomènes de couplage multiphysique ont fait l'objet de *3 articles* dans des revues internationales à comité de lecture.

#### 4. Comportement de composites fortement chargés

J'ai initié des travaux de collaboration avec le Pôle de Plasturgie de l'Est (PPE) depuis 2010 sous la forme du suivi de 4 Projets de Fin d'Etudes à l'ENIM dans le domaine de la formulation et de la mise en œuvre de composites. Les échanges scientifiques s'étant avérés fructueux, le PPE a décidé de poursuivre le travail de master de Mr Jeancolas sous la forme d'une thèse CIFRE. Nous avons obtenu l'aval de l'ANRT en avril 2015. La problématique industrielle réside dans la conception de composites dont les renforts par leur nature, fraction volumique et forme doivent améliorer la conductivité thermique d'un composite tout en conservant des propriétés d'isolation électrique. Les analyses préliminaires ont conduit au choix d'une famille de charges minérales et à un substrat de résine. La première étape du travail de thèse de Mr Jeancolas a donc consisté à optimiser la formulation du composite et viabiliser le protocole de mise en œuvre pour accéder aux fortes fractions volumiques de renforts. La principale difficulté réside dans la limitation du taux de porosité qui peut augmenter avec le taux de charge. Compte-tenu des faibles propriétés conductrices de la matrice, il s'avère que la fraction volumique de charges doit excéder 40%. Les approches micromécaniques classiques sont généralement pertinentes pour des fractions volumiques inférieures à 20%. Nous avons donc étendu l'approche de l'assemblage de sphères composites d'Hashin au cas d'une géométrie ellipsoïdale. La méthode développée corrobore les résultats de la littérature obtenus pour des charges sphériques. Il s'avère que la configuration sphérique s'avère être la moins performante car elle conduit à une minimisation de la conductivité thermique. L'objectif sera de déterminer la combinaison optimale de renforts et leurs fractions volumiques respectives. (Thèse Jeancolas, en cours).

Ce travail de recherche a été initié par un stage de master prolongé sous la forme d'une thèse CIFRE financée dans le cadre d'un partenariat industriel. Il a donné lieu à l'encadrement de 3 masters (*Jeancolas, Klein et Eloh*).

# **Introduction générale**

L'élaboration de nouveaux matériaux et ou de nuances parmi des matériaux existants nécessite une maîtrise accrue des relations entre leur structure microscopique issue de leur élaboration et leur comportement macroscopique responsable de leurs propriétés d'usage. Cette connaissance joue un rôleclé dans le développement de matériaux répondant à des propriétés attendues par les industriels. Le passage du 'microscopique au macroscopique' est un enjeu scientifique impliquant les physiciens, les spécialistes des matériaux et les mécaniciens. Après avoir établi à une échelle pertinente les propriétés mécaniques liées à la microstructure et reflétant le plus finement possible les phénomènes physiques réels, des relations satisfaisant les principes de la mécanique des milieux continus permettent la transition des grandeurs physiques d'une échelle à l'autre jusqu'à accéder au comportement macroscopique d'une structure intégrable dans un calcul classique de système mécanique. Toutes les hétérogénéités de comportement identifiées à l'échelle microscopique subissent ce traitement d'homogénéisation destiné à fournir le comportement macroscopique homogène équivalent de la structure. La pertinence de cette démarche relève aussi bien du choix de l'échelle microstructurale et des mécanismes à prendre en compte que de la modélisation choisie pour décrire le passage d'une échelle à l'autre. La démarche générale repose donc sur l'identification d'une échelle d'observation adéquate permettant la description de particularités de comportement microstructurale (endommagement, décohésion entre phases, nucléation et croissance de porosité ...) qui s'avèrent influer sur le comportement macroscopique de la structure. Ainsi, la micromécanique des matériaux est une approche présentant une meilleure capacité prédictive du comportement des matériaux intégrant ainsi une plus grande latitude d'optimisation des divers composants et de leurs interactions. En effet, contrairement à une démarche phénoménologique qui impose une ré-identification du comportement mécanique pour toute modification mineure de composition chimique, d'élaboration ou de prise en compte supplémentaire de paramètres extérieurs (température, champ magnétique, champ électrique), les méthodes à transition d'échelles permettent d'inclure à l'origine des éléments ayant des répercussions prouvées sur le comportement macroscopique. L'hétérogénéité des matériaux peut être de différentes natures et se révéler à des échelles diverses. Ainsi le comportement des polymères semi-cristallins dont la morphologie complexe intègre des phases amorphes et cristallines est décrit avec succès par des approches micromécaniques. L'effort de modélisation réside alors dans la description des phases cristallines et amorphes. Lorsque le polymère semi-cristallin est utilisé comme matrice de composite, l'échelle de modélisation pertinente se déplace à un échelon supérieur pour tenir compte de l'hétérogénéité de comportement matrice-renfort et des problèmes d'interface. Dans le cas des matériaux adaptatifs, le phénomène de couplage entre propriétés (mécanique, électrique, magnétique, thermique ...) n'apparaît que pour des assemblages de matériaux qui pris individuellement ne permettent aucun transfert d'énergie. La description géométrique de l'assemblage devient alors une étape cruciale pour la modélisation des interactions entre composants. De

ses interactions peuvent naître des phénomènes liés à la non-linéarité du comportement des différentes phases induisant des instabilités du comportement effectif du composite. Les phénomènes d'instabilité thermique sont directement issus du couplage thermomécanique inhérent au comportement viscoélastique des matrices polymères. Ces manifestations dissipatives sont généralement préjudiciables au fonctionnement des composites. Il est alors indispensable d'établir des critères de stabilité issus d'analyse de l'évolution asymptotique de perturbations. Enfin, les incompatibilités physiques entre les phases d'un composite provoquent des changements de propriétés au voisinage des renforts (particules ou fibres) et peuvent également se manifester sous la forme de liaisons imparfaites conduisant à des phénomènes de décohésion préjudiciables à la tenue du composite.

Nous aborderons ces différentes thématiques dans cette seconde partie du mémoire organisée de façon à présenter les différents phénomènes de couplages inhérents aux matériaux composites à matrice polymère et aux matériaux adaptatifs : le couplage thermomécanique (chapitre I), le couplage viscoélastique (chapitre II) le couplage magnéto-électro-élastique (chapitre IV). Le chapitre I est plus spécifiquement dédié à l'analyse de critères de stabilité thermique par des approches phénoménologiques. Le chapitre III est plus applicatif et concerne les composites thermoviscoplastiques par approches expérimentale et numérique. Ce chapitre suit les chapitres de modélisation des phénomènes de couplage thermomécanique et couplage viscoélastique qui sont caractéristiques de la matrice polymère. Le dernier chapitre (V) est plus spécifiquement dédié aux modèles micromécaniques permettant de rendre compte des effets combinés d'une interphase ou d'une interface imparfaite et du facteur de forme des inclusions ellipsoïdales.

# Chapitre I : Etude du couplage thermomécanique : application aux matériaux thermoviscoplastiques

# 1. Introduction

Tout matériau viscoélastique sollicité cycliquement présente un cycle d'hystérèse dont la surface circonscrite est égale à l'énergie mécanique dissipée. Cette énergie est transformée principalement en chaleur et ne peut être intégralement transmise au milieu extérieur. Il se produit alors un échauffement local du matériau induisant une modification des propriétés thermomécaniques. Le matériau subit un adoucissement qui favorise l'augmentation de la déformation et consécutivement de la température. Ce couplage entre énergie thermique et mécanique est de même nature que celui observé dans les matériaux métalliques à grande vitesse déformation car provenant également de phénomènes dissipatifs. Après un rappel des méthodes d'analyse des phénomènes d'instabilité utilisées lors de ma thèse, nous aborderons l'analyse de structuration des bandes de cisaillement. Des critères d'instabilité thermique établis par des méthodes de perturbation seront ensuite présentés pour différents modes de sollicitation. Diverses descriptions des phénomènes de dissipation d'énergie seront abordées afin de permettre des applications aux polymères (état solide ou état fondu) et aux matériaux métalliques.

#### 1.1 Etude des phénomènes d'instabilité dans les matériaux – critères de stabilité

Lors d'un essai mécanique, la contribution plastique de la déformation augmente progressivement. Au-delà de la limite d'écoulement, on observe une localisation de la déformation associée à une chute de la contrainte aussi bien en traction qu'en compression ou cisaillement. La déformation devient plus rapide dans les zones déformées plastiquement conduisant alternativement à une rupture de l'échantillon ou à un durcissement lorsque l'orientation des chaînes stabilise la déformation par alignement dans une zone 'strictionnée'. Les premières analyses de l'écoulement plastique traduisaient des conditions critiques d'apparition de solutions non uniformes mais ne permettaient pas de prévoir la stabilité de l'écoulement à long terme ni la localisation éventuelle de la déformation plastique. Les techniques d'analyse se répartissent ainsi en trois catégories :

- *analyse de bifurcation* : possibilité pour un matériau soumis à un chargement donné de présenter une non-unicité du mode de déformation (Considère, 1885; Staker, 1981),
- analyse de stabilité linéaire : définition des conditions pour lesquelles un écoulement homogène perturbé reste stable : (Chandrasekhar, 1961; Drazin and Reid, 1981) en mécanique des fluides (Argon, 1973) ; étude de l'existence et de la stabilité de solutions par analyse de l'évolution de la perturbation (Fressengeas and Molinari, 1987),

 analyse de stabilité non linéaire exacte : intégration de la solution non linéaire exacte du mode d'écoulement mettant en jeu la compétition des effets liés à la stabilisation de la solution ; conduit à des *critères de localisation asymptotiques* basés sur le suivi de l'évolution de la déformation hétérogène ; prise en compte de défauts géométriques permettant la localisation de la déformation (*Dinzart, 1994; Dinzart et al., 1994a, 1994b; Dinzart and Molinari, 1998a*) de facteurs stabilisants ou déstabilisants (thermique, vitesse) et du mode de sollicitation imposée à l'échantillon (Leroy and Molinari, 1992).

Si le critère de bifurcation établi sur l'extremum de la contrainte permet de signaler le déclenchement du mode d'écoulement bifurqué de la déformation plastique, il ne permet pas de conclure quant à la stabilité et à la localisation éventuelle de la déformation. La stabilité d'une solution homogène  $S_0$ constante peut être appréhendée en considérant des petites perturbations et en estimant leur taux de croissance (Dinzart et al., 1994a). L'analyse de stabilité linéaire classique repose sur le choix de champ de perturbation exprimé sous la forme d'un produit  $S_p = S^* \exp(\eta t) \exp(i\xi x)$  où  $S^*$  et  $\xi$  sont respectivement associés à l'amplitude et au nombre d'onde de la perturbation unidimensionnelle. L'évolution de la perturbation est analysée par la constante  $\eta$  solution d'un système différentiel linéarisé  $A(S_0, \eta, \xi)S^* = \eta S^*$ . Le régime d'écoulement stable correspond à la condition  $\operatorname{Re}(\eta) < 0$ . Cependant, l'aspect instationnaire de la déformation plastique n'est pas intégré dans la formulation des perturbations limitant de fait le domaine d'application du critère au tout début du processus d'instabilité. Pour pallier cet inconvénient, on se propose de superposer à la solution homogène instationnaire  $S_0(t)$ une perturbation  $S_p = S^*(t) \exp(i\xi x)$  où l'amplitude de déformation  $S^*(t)$  intègre une dépendance temporelle. Après substitution dans les équations d'état, on obtient un système d'équations différentielles  $\frac{\partial S^*(t)}{\partial t} = A(t,\xi)S^*(t)$ . L'analyse du cas  $\frac{\partial A(t,\xi)}{\partial t} = 0$  coïncide avec une analyse de stabilité linéaire classique. La stabilité de la solution homogène instationnaire est établie par analyse des termes de la matrice  $A(t,\xi)$  dont les limites asymptotiques sont connues via le théorème de Coddington et Levinson (1955). Afin de prendre en compte l'aspect instationnaire de la solution de base  $S_0(t)$ , un changement de variables est proposé de façon à ne considérer que l'évolution de l'instabilité relative exprimée par  $s_p = \frac{S_p}{S_o(t)} = s^*(t) \exp(i\xi x)$  conduisant au système d'équations différentielles  $\frac{\partial s^*(t)}{\partial t} = a(t,\xi)s^*(t)$  où les termes de  $a(t,\xi)$  sont analysés par la même méthode que  $A(t,\xi)$  précédemment.

# 2. Structuration de l'endommagement dans les matériaux thermo-viscoplastiques

# 2.1 Contexte

Le développement d'une zone d'écoulement plastique instable se manifeste essentiellement dans les matériaux sensibles à la température lorsque les champs de déformation et de température se localisent. Qualifiée souvent de '*bande de cisaillement*', leur structuration provient de la compétition entre la production de chaleur et sa diffusion. Leurs premières occurrences ont été relevées dans les matériaux métalliques cisaillés à grande vitesse (Considère, 1885) mais elles sont également observées dans les matériaux polymères sous des conditions moins extrêmes en température et vitesse de déformation. Ce mécanisme d'endommagement s'initie souvent sur des imperfections ou défauts, ce qui a conduit à l'étude de l'influence combinée des effets rhéologiques du comportement du matériau (sensibilité à la vitesse de déformation, adoucissement thermique et écrouissage) et des caractéristiques d'un défaut géométrique sur le processus de localisation

Si la première étape du processus de localisation peut être considérée adiabatique (d'où la dénomination classique de '*ASB'-Adiabatic Shear Band'*) compte tenu de l'uniformité du niveau de contrainte atteint, la structuration précédant la rupture est associée à des gradients de température suffisamment élevés pour affecter le voisinage immédiat de la '*ASB'* appelée '*HAZ'-Heat Affected Zone*. Cho et al. (1993) ont montré l'existence de ces deux échelles de longueur par analyse de microdureté d'échantillon de HY-100 cisaillés à grande vitesse. Les tentatives de dimensionnement de la '*ASB'* ont fait l'objet de nombreuses études tant numériques qu'analytiques avec pour objectif de quantifier les effets des divers paramètres (Wright and Ockendon, 1992; Cho et al., 1993; Dodd and Bai, 1996).

Le modèle développé propose une étude conjointe des deux zones établies et l'estimation du temps de chute de la contrainte en fonction des caractéristiques rhéologiques du matériau et des conditions de chargement.

# 2.2 Formulation du problème thermomécanique

La structure cisaillée est modélisée sous la forme d'un plan d'épaisseur infinie et de demi-hauteur *h*. L'équation d'équilibre et de la chaleur fournissent le système d'équations différentielles (les effets d'inertie ont été négligés) :

$$\frac{\partial \tau}{\partial x} = 0 \quad \text{et} \quad \rho c \frac{\partial T}{\partial t} = k_0 \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \tau \dot{\gamma}$$
(I-1)

où  $\rho c$  et  $k_0$  sont la capacitance et la conductivité thermique du matériau.

La loi de comportement thermo-viscoplastique linéaire en température permet le découplage en temps et espace de l'équation de la chaleur :

où *m* est la sensibilité à la vitesse de déformation.

La distance affectée thermiquement lors de la diffusion thermique est définie par  $d_K = K\sqrt{k_0 t_c / \rho c}$  où  $t_c$  est le temps de chute expérimental de la contrainte lié au temps de relaxation  $t_1 = K_1 t_c$ . La structuration du champ de vitesse u(x) s'obtient par résolution d'un système d'équations différentielles conduisant à deux solutions approchées interne et externe à la zone de localisation. Le point de raccord est défini au point d'inflexion de la solution interne :  $x_i = \sqrt{2m/((2+m)(\alpha-\varsigma))}$  avec  $\alpha = a\tau_0 \dot{\gamma}_0^{-m} \dot{\gamma}(0)^{1+m} / (k_0 \theta_0)$  et  $\sqrt{\varsigma} = K / (\sqrt{K_1} d_K)$  constantes à déterminer à l'aide des conditions aux limites formulées en vitesse sur la distance  $d_K$ . La largeur de la bande de cisaillement w est alors estimée après approximation parabolique de la distribution de  $\dot{\gamma}(x)/\dot{\gamma}(0)$  au voisinage du centre de la *ASB* (*Dinzart, 1994; Dinzart et al., 1994a, 1994b; Dinzart and Molinari, 1998a*).

$$w = 6\sqrt{2m} \frac{k_0 T_0}{v_0 a \tau_0}$$
(I-3)

Cette expression analytique est similaire à  $w_{DB} = 2mk_0T_0/((1-m)v_0a\tau_0)$  obtenu par Dodd et Bai (1996) et à  $w_{WO} = \sqrt{6\sqrt{2}m/a}\sqrt{k_0T_0/(\dot{\gamma}^*\tau_0)}$  fournie par Wright et Ockendon (1992). Le développement permet également d'accéder au temps de chute de contrainte expérimental  $t_c = \rho c d_K/(k_0K)$  lié à la distance affectée thermiquement  $d_K = K/\sqrt{K_1} \tan(KT_0k_0/(\sqrt{K_1}v_0a\tau_0))$ . Les estimations de w,  $d_K$  et  $t_c$  proposées par ce modèle sont en bon accord avec les résultats expérimentaux observés pour les aciers 4340 VAR, HY-100 et CRS 1018.

# 3. Endommagement par fatigue thermique des matériaux thermo-viscoplastiques

#### 3.1 Contexte

Les polymères thermoplastiques soumis à des sollicitations cycliques subissent deux modes d'endommagement :

- *'thermique'* : par couplage des phénomènes thermomécaniques provoquant une augmentation locale de la température,
- *'mécanique'* : par propagation de fissures initiées sur des craquelures ou sur des bandes de cisaillement pouvant conduire à la rupture de façon indépendante ou simultanée (Constable et al., 1970).

Le mode de rupture 'thermique' est souvent qualifié d'adoucissement thermique cyclique' ou d'emballement thermique'. Il résulte principalement de la combinaison de propriétés dissipatives élevées et d'une faible conductivité thermique. On retrouve cette combinaison de propriétés sensibles aux sollicitations cycliques dans certains thermoplastiques (PMMA, PVC) et élastomères thermoplastiques (PEBA).

Les premiers modèles dédiés à l'influence du couplage thermomécanique avaient pour objet des matériaux plus 'anciens' que les polymères (Dillon, 1962, 1966). Les études ont été étendues rapidement à des matériaux présentant un comportement couplant les effets de la température plus prononcés : les carburants (Tormey and Britton, 1963) et les thermoplastiques (PE : Tauchert en 1966 , PMMA, PVC et PP : Menges et Alf en 1975). Plus récemment, la conversion d'énergie mécanique en énergie thermique a fait l'objet d'essais menés à grande vitesse et de simulation par éléments finis de la distribution des champs de température lors de sollicitations cycliques pour deux thermoplastiques (PC et PMMA : Rittel et Rabin 2000; Rittel 2000). Ting (1972) et Ting et Tuan (1973) ont proposé une approche par fonctions complexes des problèmes de couplage thermomécanique. Lesieutre et Govindswamy (1996) ont établi la réponse dynamique d'un matériau décrit par un assemblage d'éléments viscoélastiques par une méthode aux éléments finis. Les effets de couplage thermique étaient introduits par l'intermédiaire d'un facteur de décalage en temps. Wineman et Kolberg (1997) ont généralisé ce formalisme en y associant un temps réduit. Schapery et Cantey (1964) et Schapery (1964b) ont mis en évidence l'existence d'une réponse instable associée à un contrôle en contrainte en accord avec leurs observations expérimentales d'emballement thermique.

L'échauffement localisé des matériaux polymères observé lors d'essais cycliques résulte de l'effet combiné de la fréquence et de la contrainte. Ces conditions de sollicitation sont généralement contrôlées de façon à conserver une variation de température bornée d'un cycle à l'autre et éviter ainsi la rupture 'thermique'. Ces critères sont établis à partir d'un bilan énergétique réalisé sur un cycle d'oscillation. L'analyse des solutions stationnaires permet la mise en évidence de critères de stabilité liés à la géométrie, à la loi de comportement et aux conditions d'application des sollicitations.

#### 3.2 Critères de stabilité établis pour des sollicitations cycliques

L'énergie mécanique dissipée lors d'un cycle pour un matériau viscoélastique est de la forme

$$\Delta W = \int_{cycle} \sigma \frac{d\varepsilon}{dt} dt = \pi \varepsilon_0^2 G'' \tag{I-4}$$

où G'' est le module de dissipation du matériau. On suppose que sur un cycle de sollicitation, le module  $G''(\omega,T) = G''(\omega,T_m)$  est constant au regard de la température moyenne du cycle  $T_m$ . L'analyse de

spectrométrie mécanique (DMA) fournit la courbe maîtresse du module de dissipation exprimé alors en fonction d'une température de référence  $T_r$  impliquant la dépendance fréquentielle :

$$G''(\omega,T) = g_1 - g_2 T_r \quad \text{avec} \ T_r = T - \frac{1}{\beta} \ln \frac{\omega}{\omega_0}$$
(I-5)

où  $g_1, g_2$  et  $\beta$  sont des constantes caractéristiques du matériau.

Le matériau est considéré isotrope et incompressible. L'évolution de la température T est donnée par l'équation de la chaleur :

$$\rho c \frac{\partial T}{\partial t} - k \Delta T = \dot{Q} \tag{I-6}$$

Le Laplacien de la température  $\Delta T$  verra son expression développée en fonction de la direction préférentielle d'échange thermique. La quantité de chaleur  $\dot{Q}$  provient du transfert intégral de l'énergie mécanique (en supposant le coefficient de Taylor-Quinney égal à *I*).

Le champ de contrainte satisfait l'équation de Navier où les effets liés à l'inertie sont négligeables compte tenu du faible régime d'oscillations considéré. Les conditions de transfert thermique au regard de l'extérieur sont exprimées pour les surfaces libres de l'échantillon, les extrémités transmettant la sollicitation sont supposées adiabatiques. Les phénomènes liés à la dilatation thermique ne sont pas pris en compte.

L'équation de la chaleur est moyennée sur un cycle de sollicitation de période  $2\pi/\omega$ :

$$k\Delta T_m = \frac{\omega}{2\pi} \Delta Q \quad \text{avec } T_m(\_) = \frac{\omega}{2\pi} \int_{cycle} T(\_, t) dt$$
(I-7)

La contribution de la moyenne effectuée sur  $\partial T / \partial t$  est négligeable pour le régime quasi-statique étudié. Comme l'énergie dissipée sur un cycle  $\Delta Q$  dépend de la température moyenne du cycle, la distribution stationnaire du champ de température  $T_m(\_)$  est obtenue par la résolution de l'équation différentielle issue de (I-6), assortie des conditions aux limites thermiques. Pour appréhender l'évolution de la température moyenne, on introduit deux échelles de temps, Figure (I-1):

- *le temps rapide*  $t_0 = t$  décrivant l'évolution des champs de contrainte, de déformation et de température à l'intérieur du cycle,

- *le temps court*  $t_1 = \varepsilon t$  (avec  $\varepsilon$  petit) permettant le suivi des perturbations d'un cycle à l'autre.



Figure I-1 : Evolution de l'instabilité thermique ; la ligne pointillée correspond à l'évolution de la température sur une période.

La température moyenne sur un cycle  $\tilde{T}$  définie par  $\tilde{T}(\_,t_1) = \frac{\omega}{2\pi} \int_{t_0}^{t_0+2\pi/\omega} T(\_,t_0',t_1) dt_0'$  satisfait l'équation de la chaleur :

$$\rho c \frac{\partial \tilde{T}}{\partial t} - k\Delta \tilde{T} = \frac{\omega}{2\pi} \Delta \tilde{Q}$$
(I-8)

avec  $\Delta \tilde{Q} = \frac{\omega_c}{2\pi} \int_{t_0}^{t_0+2\pi/\omega_c} \sigma_{ij}(\_,t_0',t_1) \dot{\varepsilon}_{ij}(\_,t_0',t_1) dt_0'$ . L'évolution de  $\tilde{T}$  est lente car contrôlée par le développement

d'une instabilité faible. On considère alors la température évolutive comme une superposition d'une perturbation  $\delta \tilde{T}(\_,t)$  à la solution stationnaire  $T_m(\_)$  de façon à procéder à une analyse de stabilité linéaire.

$$\widetilde{T}(\underline{\ },t) = T_m(\underline{\ }) + \delta \widetilde{T}(\underline{\ },t) = T_m(\underline{\ }) + \delta \widehat{T}(\underline{\ }) \exp \nu t$$
(I-9)

Le paramètre  $\nu$  décrit le taux de croissance exponentiel de la perturbation et garantit une stabilité de la solution stationnaire lorsque sa partie réelle est négative. Le champ de perturbation  $\delta \hat{T}(\_)$  satisfait l'équation obtenue par différence de (I-6) et (I-8) assortie des conditions aux limites thermiques :

$$\left(\nu\rho c\,\delta\hat{T}(\_) - k\Delta\delta\hat{T}(\_)\right)\exp\nu t = \frac{\omega}{2\pi}(\Delta\tilde{Q} - \Delta Q) \tag{I-10}$$

Cette équation différentielle n'admet généralement aucune solution analytique simple ce qui conduit à rechercher une approximation du champ de perturbation par combinaison de deux solutions polynomiales  $\varphi_1(\_)$  et  $\varphi_2(\_)$  satisfaisant les conditions aux limites thermiques (schéma de Bubnov-Galerkin):

$$\delta \hat{T}(\_) = c_1 \varphi_1(\_) + c_2 \varphi_2(\_) \tag{I-11}$$

Les coefficients  $c_1$  et  $c_2$  sont issus du système traduisant les conditions d'orthogonalité portées sur les résidus de l'équation (I-10) exprimés en remplaçant  $\delta \hat{T}(\_)$  par (I-11). Le taux de croissance de la perturbation  $\nu$  est alors exprimé en fonction du mode de sollicitation mécanique imposé (contrôle en déformation, en contrainte ou en chargement mixte).

Ce schéma de résolution permet de mettre en évidence un point de stabilité neutre (transition de stabilité associé au changement de signe de la partie réelle de  $\nu$ ) pour un contrôle en contrainte qui correspond à l'extremum de la courbe contrainte-déformation. Lors d'un chargement mixte, ce point se déplace sur l'axe des déformations croissantes.

Lorsque la contrainte appliquée est supérieure au maximum de contrainte supportable par la structure, la rupture se produit selon un mode 'mécanique'. Pour une contrainte inférieure à la contrainte critique, deux régimes stationnaires peuvent se développer situés sur les branches stable et instable de la courbe contrainte-déformation sur la Figure I-2 : Transition de stabilité (*Dinzart et Molinari, 2004*). L'attraction sur l'une ou l'autre des branches (A<sub>1</sub> et A<sub>2</sub>) dépend de la température initiale à laquelle l'essai est réalisé : si celle-ci est supérieure à une température critique à estimer, les sollicitations cycliques amplifient les

mouvements de coopération interne des chaînes thermoplastiques conduisant à l'emballement thermique. Ce résultat est à rapprocher de celui obtenu par (Leroy et Molinari, 1992) lors de l'analyse de stabilité de l'écoulement en cisaillement d'un matériau thermo-viscoplastique.



Figure I-2 : Transition de stabilité (Dinzart et Molinari, 2004).

#### 3.3 Application aux structures polymères en sollicitation cyclique

Des critères de stabilité ont été développés pour analyser les conditions d'emballement thermique dans des matériaux polymères pour des sollicitations élémentaires appliquées à des géométries d'échantillons classiques : cylindre en torsion (*Dinzart and Molinari, 1998b*) et poutre en flexion (*Dinzart et al., 2008*). L'analyse de stabilité des solutions stationnaires par l'approche de Bubnov-Galerkin montre qu'une sollicitation en déplacement aboutit à un régime stable alors qu'une force ou couple imposés peuvent engendrer un emballement thermique si la déformation associée est au delà du point de stabilité neutre. Une analyse paramétrique peut être conduite en vue de préciser l'influence de la pulsation et de la géométrie sur la stabilité des solutions stationnaires (*Dinzart et al., 2008*).



Figure I-3 : Evolution du point de transition de stabilité en fonction de la pulsation

En se plaçant dans le cas d'une répartition de température uniforme dans la section, il est possible d'accéder à une expression simplifiée de la température critique moyenne  $T_m^{cr}$  associée à la transition de stabilité neutre en fonction des modules de conservation G' et de dissipation G'' estimés par DMA. Cette formulation s'est avérée similaire pour des modes de sollicitations élémentaires (compression, torsion de cylindres et flexion de poutres).

$$1 + \frac{T_m^{cr} - T_0}{T_\omega - T_m^{cr}} \left( 2 \left( \frac{\frac{dG'}{dT} G' + \frac{dG''}{dT} G''}{G' + G''} \right)_{T_m^{cr}} (T_\omega - T_m^{cr}) + 1 \right) = 0$$
(I-12)

Cette température critique de développement d'instabilité  $T_m^{cr}$  a pu être mise en évidence de façon expérimentale sur des essais de spectrométrie mécanique en flexion trois points conduits sur du PMMA (*DEA Roth 2006*).

# 3.4 Application aux matériaux thermo-viscoplastiques non linéaires

# 3.4.1 Cylindre creux en compression

La configuration géométrique choisie consiste en un cylindre soumis à une compression cyclique mais la méthodologie peut être aisément étendue à toutes les configurations de problèmes élémentaires de la mécanique des milieux continus (torsion de cylindre et flexion de poutre). La loi de comportement envisagée pour cette application tient compte de l'effet d'une non-linéarité du comportement visqueux. De façon à pouvoir comparer différentes configurations, le problème est traité en utilisant de grandeurs sans dimensions qui ne seront pas reportées sous leurs formes extensives dans cette synthèse.

Suresh (1991) suggère que les aciers dédiés aux hautes températures (turbine ...) présentent une loi de comportement à viscosité non linéaire de type Norton où le tenseur des contraintes s'exprime sous la forme :

$$\sigma_{ij} = -p\delta_{ij} + s_{ij} \tag{I-13}$$

où p est la pression hydrostatique et  $s_{ij}$  le déviateur des contraintes satisfaisant :

$$s_{ij} = 2\eta \left(\frac{d_{eq}}{d^*}\right)^{m-1} \frac{d_{ij}}{d^*}$$
 avec  $d_{ij}$  le tenseur des vitesses de déformation et  $d_{eq} = 2\sqrt{d_{ij}d_{ij}}$  (I-14)

Le couplage thermique est introduit sous la forme d'une dépendance de la viscosité sous la forme :

$$\eta = \eta_0 (1 - \alpha T / T_0) \text{ avec } \alpha > 0 \tag{I-15}$$

La résolution du problème de mécanique des milieux continus permet d'accéder successivement au tenseur des déformations et à la partie déviatorique du tenseur des contraintes pour un chargement de compression imposé en force ou en vitesse de déplacement. L'équation de la chaleur moyennée sur un

cycle fait intervenir le calcul de l'énergie mécanique dissipée par le comportement visqueux non-linéaire  $\Delta Q = \frac{\omega}{2\pi} \int_{cycle} \dot{Q} dt \text{ avec } \dot{Q} = \sigma_{ij} d_{ij} \text{ (en supposant un transfert intégral de l'énergie mécanique en chaleur) :}$ 

$$\Delta Q = \frac{(1 - \alpha T_m) d_0^{1+m}}{2^{1+m} (2+m) B((3+m)/2, (3+m)/2)} \quad (où B \text{ est la fonction Beta})$$
(I-16)

La résolution de l'équation de la chaleur permet d'accéder à la distribution de température stationnaire sur un cycle sous la forme de combinaisons de fonctions de Bessel modifiées  $I_0$  et  $K_0$ :

$$T_{m}(r) = \frac{1}{\alpha} + \alpha_{1}I_{0}(ar) + \alpha_{2}K_{0}(ar)$$
(I-17)

où le paramètre *a* est lié à  $\Delta Q$ , à la densité volumique et à la capacité calorifique du matériau et à la contrainte de référence définie par  $\sigma_0 \left( d^* R_e^2 \rho c / k \right)^{-m}$ .

L'analyse de stabilité des solutions stationnaire passe tout d'abord par l'estimation de la variation de quantité de chaleur introduite à chaque cycle  $(\Delta \tilde{Q} - \Delta Q)$ . Le taux de croissance de la perturbation  $\nu$  est alors estimé en cherchant des solutions approchées de l'équation (II-10) par la méthode de Bubnov-Galerkin où  $\varphi_1(r) = (A_1 + A_2r - r^2)$  et  $\varphi_2(r) = (A_1 + A_2r^3 - r^4)$ .

En se plaçant dans le cas d'une répartition de température uniforme dans la section, il est possible d'accéder à une expression simplifiée de la température critique  $T_m^{cr}$  associée à la transition de stabilité neutre:

$$T_m^{cr} = (1 - \alpha)/(1 + m)$$
 (I-18)

L'analyse paramétrique fournie sur la Figure I-4 a pour support l'acier 9Cr-1Mo-V-Nb à température d'usage de *800K*. Il est possible de mettre en évidence un domaine de stabilité en fonction de l'amplitude de la déformation et de la pulsation imposée (Dinzart and Molinari, 2004).



Figure I-4 : Domaine de stabilité en fonction de l'amplitude de déformation et de la pulsation (rayon moyen  $\overline{R}_e = 5mm$ , *Dinzart et Molinari; 2004*)

# 3.4.2 Application aux matériaux polymères à l'état fondu

Cette étude déborde du cadre habituel de l'analyse des phénomènes d'emballement thermique dans les matériaux solides et analyse la génération de chaleur induite par dissipation visqueuse de matériaux thermo-viscoélastiques non newtoniens. Cette extension s'intègre à l'analyse du cisaillement de la couche fluide de polymère à l'état fondu dans des dispositifs d'analyse de comportement ou dans des procédés de mise en forme (viscosimètre, extrusion). De nombreuses études ont été consacrées à l'analyse de la stabilité de l'écoulement de Couette 'plan' souvent considéré en première approximation comme la simplification d'un cisaillement de Couette cylindrique. Dans une approche purement théorique, Joseph (1965) a montré l'existence d'un maximum en contrainte associé à la transition de stabilité pour une viscosité linéairement variable en fonction de la température. Davis et al. (1983) ont raffiné la description du couplage de la viscosité et de la température par une loi Arrhénienne, la forme sigmoïdale de la variation de la contrainte de cisaillement en fonction de la déformation impliquant deux extremums successifs. La dernière région de stabilité apparaît pour la température élevée qui excède généralement la température de fusion du matériau; la branche intermédiaire (de 'restabilisation' entre les deux extremums) présente alors peu d'intérêt physique. Yueh et Weng (1996) ont prédit des conditions de stabilité pour un couplage de la viscosité et de la température décrit par une approximation exponentielle de la loi d'Arrhénius (appelée loi de Nahme). Leroy et Molinari (1992) ont proposé une solution analytique simple au problème de cisaillement plan de matériaux visqueux non linéaires dépendant de la température et ont proposé des critères de stabilité en fonction des conditions aux limites mécaniques et thermiques imposées.

L'extension proposée traite de l'existence et de la stabilité d'un écoulement de Couette cylindrique d'un matériau dont la viscosité dépend de la température selon une loi de Nahme. Deux modes de sollicitation sont comparés : monotone et cyclique. Le matériau est supposé isotrope et compressible, les contraintes  $\sigma_{r\theta}$  et déformations  $d_{r\theta}$  de cisaillement sont liées par:

$$\sigma_{r\theta} = 2\eta_0 \exp(-\beta \frac{T - T_0}{T_0}) d_{r\theta}^{\ m}$$
(I-19)

Le paramètre  $\beta$  décrit l'adoucissement thermique du matériau. La contribution élastique peut être négligée comme tend à le prouver des développements complémentaires. Les champs de température et de cisaillement sont indépendants de la pression hydrostatique. Seuls sont présentés les résultats concernant l'étude des sollicitations cycliques. Les sollicitations mécaniques cycliques transmises sont :

$$\begin{cases} v_{\theta}(R_e, t) = R_e w_e \cos \omega t \\ v_{\theta}(R_i, t) = 0 \end{cases}$$
(I-20)

Le champ de température stationnaire et le couple transmissible sont obtenus après résolution du problème de mécanique des milieux continus pour les champs de contrainte et de déformation et résolution de l'équation de la chaleur moyennée sur un cycle :

$$T_{m}(r) = \frac{m}{\beta} \ln \left[ \frac{C_{1_{m}}}{2B_{m}} \frac{(r/R_{i})^{2/m}}{\cosh^{2} \left( \frac{\sqrt{C_{1_{m}}}}{2} \left( \ln(r/R_{i}) + C_{2_{m}} \right) \right)} \right]$$
(I-21)

où les constantes  $C_{1_m}$  et  $C_{2_m}$  sont obtenues à l'aide des conditions aux limites thermiques et  $B_m$  par intégration de l'expression de la vitesse de déformation sur un cycle. L'analyse de la stabilité des solutions repose alors sur le schéma des petites perturbations décrit en section 3.1.

# **3.4 Conclusions et perspectives**

Les travaux présentés dans cette section illustrent parfaitement l'évolution de mes centres d'intérêt en recherche : des phénomènes d'instabilité thermique dans les métaux vers ceux plus spécifiques se développant dans les matériaux polymères. Si le comportement de ces matériaux à l'égard de la température est fondamentalement différent, la description des transferts thermiques et les approches permettant la définition de critères d'instabilité restent universelles. Ainsi, les travaux de Rittel (Rittel and Rabin, 2000; Rittel, 2000) montrent également le chevauchement de ses diverses thématiques : instabillité thermique se développant dans des thermoplastiques lors d'impact (Rittel and Brill, 2008). J'ai pu lors de l'encadrement de deux masters aborder les aspects expérimentaux des instabilités thermiques dans les polymères : emballement thermique se développant dans le PMMA au voisinage de la température de transition vitreuse (master de Mr Roth) et étude expérimentale de la compression à grande vitesse du PMMA nanorenforcé (master de Mr El-Kandaoui). Ce dernier projet à l'initiative d'Arkema® a fait l'objet d'une labellisation que j'ai obtenue auprès de Materalia en vue d'un dépôt de dossier FUI en 2012. Les éléments scientifiques mis au jour lors de cette première approche expérimentale se sont révélés prometteurs et m'ont motivée à approfondir les phénomènes d'instabilité thermique dans les polymères nanorenforcés. Des travaux sur la compression dynamique du PMMA existent dans la littérature mais l'effet des nanorenforts sur le développement d'instabilité thermique n'a pas encore été exploré. Les contacts initiés avec Arkema® ont permis à l'équipe 'Polymère' du LaBPS de proposer des collaborations sous forme de masters (2014 et 2015 encadrés par R. Matadi Boumbinda).

#### Chapitre II : Etude du couplage viscoélastique : application aux matériaux polymères

# 1. Introduction

La spécificité du comportement des matériaux polymères réside essentiellement dans la contribution simultanée de composante élastique instantanée de la déformation et de composante visqueuse dépendante de la vitesse de déformation. L'étude de l'hétérogénéité du matériau se voit alors compliquée par le caractère héréditaire du comportement induisant un couplage espace-temps qui provoque des interactions mécaniques différées entre les constituants du matériau. Qualifiées de 'mémoire longue' par Suquet (1985), elles apparaissent comme un terme supplémentaire dans la loi de comportement homogénéisée (II-1), montrant par exemple qu'un assemblage de matériaux Maxwelliens ne peut être représenté strictement par un modèle de Maxwell où les tenseurs  $S^{hom}$  et  $M^{hom}$  proviendraient de l'homogénéisation séparée des comportements purement élastique et visqueux :

$$\dot{E} = S^{\text{hom}} : \dot{\Sigma} + M^{\text{hom}} : \Sigma + \underbrace{\int_{0}^{t} J(t-\tau) : \dot{\Sigma}(\tau) d\tau}_{\substack{mémoire \ longue}}$$
(II-1)

où J est la fonction de fluage du matériau homogénéisé.

La principale difficulté à surmonter est la conservation de la nature viscoélastique des interactions lors de la transition d'échelle qui s'exprime par un couplage dans l'espace-temps des équations d'équilibre et des lois de comportement. Pour pallier ce problème, deux familles de démarche ont été développées : *- les approches héréditaires* basées sur le principe de correspondance avec un problème symbolique élastique (Mandel, 1966),

- *les méthodes à variables internes* qui considèrent que l'histoire du chargement est contenue dans son état interne.

Les approches héréditaires sont basées sur la formulation intégrale des lois de comportement écrites sous la forme de fonctionnelles linéaires résultant du principe de superposition de Bolzmann :

$$\varepsilon(t) = \int_{-\infty}^{t} j(t-\tau) : d\sigma(\tau)$$
(II-2)

où j est la fonction de fluage locale du matériau.

Les calculs dans l'algèbre de convolution de Stieljes peuvent être remplacés par des calculs algébriques en transformant le problème viscoélastique sous une forme symbolique élastique en vertu du principe de correspondance (Mandel, 1966):

$$\hat{\varepsilon}(p) = \hat{j}(p)\hat{\sigma}(p) \tag{II-3}$$

Après mise en évidence du tenseur de localisation symbolique  $\hat{A}$  (Hashin, 1965), les modules viscoélastiques symboliques  $\hat{L}^{eff}$  sont obtenus par des techniques classiques d'homogénéisation. Cette

méthode a été appliquée aux matériaux viscoélastiques linéaires par Laws et McLaughlin (1978). Les propriétés effectives sont obtenues par transformation inverse de façon analytique dans les cas les plus simples (Rougier et al., 1993) mais le plus souvent sous forme numérique au prix de calculs conséquents (Lévesque et al., 2007). Une extension dans le cas de la viscoélasticité non linéaire et de la viscoplasticité a été proposée par Rougier et al. (1994) en considérant une formulation tangente autour d'un état courant le long d'un trajet de chargement donné. Masson et Zaoui (1999) et Masson et al. (2000) ont procédé à une extension dans le cadre d'une formulation affine par linéarisation du comportement local au voisinage d'une pulsation caractéristique. Si les approches héréditaires permettent d'accéder à une prédiction exacte du comportement de composite biphasé à comportement isotrope viscoélastique linéaire, elles sont plus difficiles à adapter pour des matériaux à 'vieillissement'.

L'approche alternative impliquant l'utilisation de variables internes permet la description instantanée du comportement en rapportant toute l'histoire du comportement à un instant donné. L'évolution des variables est obtenue par méthode incrémentale. La principale difficulté reste la traduction du couplage espace-temps et de l'accommodation intergranulaire à chaque pas de temps. La démarche de résolution du problème de l'inclusion d'Eshelby se heurte alors à une formulation intégrale complexe où la présence des termes de couplage constitue un sérieux obstacle. Nous devons la première tentative de résolution de ce problème dans le cadre de l'élastoviscoplasticité à Weng (1981) inspiré des travaux de Kröner (1961) sur la transition d'échelle en élastoplasticité. Cette approche conduit à une surestimation des contraintes internes due à l'accommodation purement élastique induite par l'uniformité du champ de vitesse de déformation de la matrice. Dans le cadre d'une description de comportement de type Maxwell, Kouddane et al. (1993) proposent une relation restrictive entre les modules élastiques  $C^0$  et les complaisances viscoplastiques  $M^0$  permettant une simplification appréciable de l'équation intégrale mais limitant la forme donnée aux lois de comportement (la compressibilité et l'anisotropie ne peuvent être traitées par cette approche). Cette formulation a été étendue aux comportements viscoélastique non linéaire et élastoviscoplastique par le biais d'une formulation tangente (Mercier et al., 2005).

En se basant sur l'étude des comportements asymtoptiques du matériau (élastique aux petites déformations et visqueux aux grandes déformations), Paquin et al. (1999) et Sabar et al. (2002b) écrivent une équation intégrale simplifiée par introduction d'opérateurs de projection de Kunin (1983) aboutissant ainsi à la caractérisation de deux milieux de référence : élastique et visqueux. Cette démarche repose sur un traitement 'symétrique' des composantes élastiques et visqueuses du comportement. Le modèle des champs translatés (Sabar et al., 2002a) repose sur une démarche similaire mais appliquant une translation des champs uniquement sur la déformation viscoplastique non uniforme, le milieu de référence élastique provenant de l'approximation autocohérente en élasticité. Cette méthode des champs 'translatés' a été étendue pour traiter des problèmes de viscoélasticité non linéaire par formulation affine (Mercier et al., 2012).

Nous proposons d'aborder le problème de l'inclusion viscoélastique à travers ces deux familles de démarches de façon à pouvoir prendre en compte notamment les effets liés à la présence d'une interphase de comportement viscoélastique. Une extension de la notion d'opérateurs interfaciaux pour des comportements viscoélastiques a été développée dans ce travail. Cette extension a permis notamment d'appliquer un schéma d'homogénéisation auto-cohérent généralisé afin d'accéder au comportement effectif d'un composite à phases viscoélastiques.

# 2. Approche héréditaire du comportement de composite viscoélastique

# 2.1 Description du comportement par modèles rhéologiques

La prédiction du comportement de composite viscoélastique par des approches de type héréditaire est fréquemment conduite dans l'espace fréquentiel. La raison en est simple : les analyses thermiques dynamiques des échantillons permettent d'accéder facilement au comportement du matériau dans l'espace fréquentiel sous la forme de courbes 'maîtresse' décrivant la partie réelle et imaginaire du module complexe  $E^*(i\omega)$ . Le comportement effectif du composite viscoélastique peut alors être comparé directement aux résultats expérimentaux établis dans l'espace fréquentiel. Les approches héréditaires utilisent les solutions connues des problèmes d'inclusion dans le cas élastique et étendues au cas viscoélastique par une formulation symbolique permettant d'accéder à la réponse complexe  $E^*(i\omega)$ . Les modules de conservation et de dissipation effectifs sont alors calculés en analysant les parties réelles et imaginaires de  $E^*(i\omega)$ . L'identification du comportement dans le domaine fréquentiel s'oriente vers deux voies distinctes :

- les modèles de Maxwell généralisé 'classiques'



- les modèles de Maxwell généralisé 'fonctionnels' intégrant des amortisseurs à comportement.

Le module complexe  $E^*(i\omega)$ , de conservation  $E'(\omega)$  et de dissipation  $E''(\omega)$  du modèle de Maxwell généralisé s'expriment par:

$$E^{*}(i\omega) = E_{0} + \sum_{i=1}^{n} \frac{E_{i}(i\omega\tau_{i})}{1 + (i\omega\tau_{i})}$$

$$E^{\prime}(\omega) = E_{0} + \sum_{i=1}^{n} \frac{E_{i}(\omega\tau_{i})^{2}}{1 + (\omega\tau_{i})^{2}} \quad \text{et} \quad E^{\prime\prime}(\omega) = \sum_{i=1}^{n} \frac{E_{i}(\omega\tau_{i})}{1 + (\omega\tau_{i})^{2}}$$
(II-4)

où les couples  $(E_i, \tau_i)$  correspondent aux modules de chaque branche en parallèle. Cette description n'est malheureusement pas unique et dépend du choix de la distribution des temps de relaxation  $\tau_i$  (Park et al., 1999). Selon Park et Schapery (Park and Schapery,1999; Schapery and Park, 1999), il est coutume de prendre une distribution  $\tau_i = 2.10^i$  et de conditionner correctement le système à résoudre portant sur les modules  $E_i$  en prenant autant de points expérimentaux  $E'(\omega_{ei})$  mesurés à fréquence donnée  $\omega_{ei}$  que d'inconnues  $E_i$ .

$$\begin{cases} E'(\omega_{e_1}) - E_0 = \sum_{i=1}^n \frac{(\omega_{e_1}\tau_i)^2}{1 + (\omega_{e_1}\tau_i)^2} E_i \\ E'(\omega_{e_n}) - E_0 = \sum_{i=1}^n \frac{(\omega_{e_n}\tau_i)^2}{1 + (\omega_{e_n}\tau_i)^2} E_i \end{cases}$$
(II-5)

Le nombre d'éléments de cette série (dite de Prony) s'avère généralement élevé si on cherche à décrire fidèlement le comportement sur une large gamme de fréquence (Fisher and Brinson, 2001).

L'analyse du comportement d'un composite renforcé s'est portée sur un composite à matrice Poly(Téréphtalate de Butylène) renforcé de fibres courtes de verre (thèse de M. Schoeneich et master de B. Vallet). Le matériau vierge et le composite renforcé sont commercialisés respectivement sous les désignations Celanex®2003-2 et Celanex® 2300 GV1/20. Ce polymère semi-cristallin présente un module de dissipation et un facteur de perte qui ne peuvent être exploités pour une identification par série de Prony consécutivement à leurs valeurs expérimentales faibles et fluctuantes. L'estimation du comportement effectif du composite nécessite la connaissance du modules de cisaillement  $G^*(i\omega)$ , le module de compressibilité  $K^*(i\omega)$  ayant été supposé constant. Les coefficients de Poisson de la matrice et du composite sont estimés à partir de données du fournisseur ( $v_{\omega\to\infty} = 0.45$  pour la matrice et le composite).



Figure II-1 : Identification du comportement du PBT par décomposition en série de Prony (Master Vallet -points expérimentaux en bleu sur (a))

Le nombre de couples de paramètres  $(E_i, \tau_i)$  à identifier pour obtenir une description précise du comportement est conséquent (de l'ordre de 40), ce qui conduit à une augmentation conséquente des simulations numériques destinées à déterminer le comportement effectif du composite par une approche héréditaire. La méthode du 'Pôle-Zéro' a également été appliquée afin de déterminer des couples de paramètres  $(\omega_{z,i}, \omega_{p,i})$  relatifs à une formulation des modules de conservation et de dissipation de type 'produit' :

$$E^*(i\omega) = E_0 \prod_{i=1}^n \frac{1 + (i\omega/\omega_{z,i})}{1 + (i\omega/\omega_{p,i})}$$
(II-6)

L'identification du comportement repose sur la détermination de pôles  $\omega_{p,i}$  et de zéros  $\omega_{z,i}$  par une méthode décrite par Renaud et Dion (2011) consistant à encadrer la courbe expérimentale de module et rechercher des points d'intersection. Cette formulation 'Pôle-Zéro' est équivalente à celle issue de la décomposition en série de Prony avec un nombre de couple ( $\omega_{z,i}, \omega_{p,i}$ ) réduit. Le principal inconvénient tient dans l'impossibilité de fixer des temps de relaxation identiques pour la matrice et le composite. L'estimation par méthode inverse des modules  $E_i$  de l'interphase pour des temps de relaxation figés devient alors plus délicate à effectuer.



Figure II-2 : Identification du comportement du PBT par méthode Pôle-Zéro (master Vallet)

Les méthodes de collocation sont d'un grand secours pour réaliser la distribution des temps de relaxation  $\tau_i$  mais l'unicité de la décomposition n'est pas garantie. Si le comportement effectif du composite est alors facilement accessible dans le domaine fréquentiel par approche héréditaire, la déduction dans l'espace temporel par inversion de Laplace reste tributaire des méthodes numériques employées. Un moyen de simplifier considérablement les calculs est de considérer que le comportement effectif du composite présente la même décomposition spectrale que celle utilisée pour décrire chacune des phases du composite, les modules effectifs de chacune des structures élémentaires étant obtenus par homogénéisation (Friebel et al., 2006; Ricaud et Masson, 2009). Ces approximations numériques bien qu'efficaces dans la pratique sont en contradiction avec la mise en évidence de temps de relaxation supplémentaires observés lors de la décomposition spectrale des modules effectifs (Rougier et al., 1994; Beurthey et Zaoui, 2000).

# 2.2 Viscoélasticité décrite par des modèles rhéologiques 'fonctionnels'

Afin de décrire précisément le comportement viscoélastique des polymères, on recourt très souvent à des fonctions particulières empiriques dont les paramètres sont identifiés sur les courbes 'maîtresse' obtenues lors d'analyse thermique dynamique. Le modèle rhéologique correspondant à la formulation mathématique de ces fonctions correspond à une association en série d'un élément élastique (de type Hooke) et d'un amortisseur 'à comportement' destiné à rendre compte du caractère visqueux 'thermodépendant' des chaînes macromoléculaires dans la zone de transition vitreuse. L'analyse des courbes expérimentales dans le domaine fréquentiel conduit à la description du comportement viscoélastique par un module complexe  $E^*(i\omega\tau)$  dépendant de la pulsation réduite  $\omega\tau$  (où  $\tau$  est le temps de relaxation défini en présence de l'élément élastique E). Afin de décrire un effet mémoire présentant une relaxation exponentielle étendue conforme au comportement réel des matériaux polymère, l'amortisseur à 'comportement' est décrit par un module complexe fonction de la quantité  $(i\omega\tau)^{\alpha}$ permettant des descriptions de comportement purement élastique ( $\alpha = 0$ ) à purement visqueux Newtonien  $(\alpha = 1)$ . Ce paramètre  $\alpha$  est souvent interprété comme une mesure de l'intensité de couplage des différents modes de vibration des chaînes polymériques amorphes dans la zone de transition vitreuse (Friedrich et Braun, 1992). On peut montrer qu'un tel élément correspond à une association hiérarchique d'éléments élastiques et visqueux linéaires, assurant ainsi la vérification des principes de la thermodynamique (Enelund et Olsson, 1999). L'intérêt de ce nouvel amortisseur est de réduire considérablement le nombre de paramètres permettant de décrire le comportement dans la zone de transition vitreuse garantissant ainsi unicité de l'identification.

L'équation constitutive de l'élément visqueux à 'comportement' utilise une opération mathématique définie par un opérateur de dérivation fractionnaire  $D^{\alpha}$  d'ordre  $\alpha$  qui appliqué à une fonction x(t) s'écrit sous la forme :

$$D^{\alpha}[x(t)] = \frac{1}{\Gamma(1-\alpha)} \frac{d}{dt} \int_0^t \frac{x(u)}{(t-u)^{\alpha}} du \text{ pour } 0 < \alpha < 1$$
(II-7)

où  $\Gamma$  désigne la fonction Gamma. La transformée de Fourier de l'opérateur de dérivation fractionnaire satisfait la propriété (Gel'fand and Shilov, 1964) :

$$\Im[D^{\alpha}[x(t)]] = (i\omega)^{\alpha}[\Im[x(t)]] \text{ pour } 0 < \alpha < 1$$
(II-8)

i.

induisant un traitement simplifié de toute loi de comportement empirique construite à l'aide de cet élément visqueux. Les techniques mathématiques permettant la résolution des équations aux dérivées fractionnaires sont abordées en détail par Oldham et Spanier (1974) et Enelund et Olsson (1999).

Deux modèles empiriques basés sur l'utilisation d'amortisseur 'à comportement' ont été utilisés de façon à décrire les différents comportements observés lors des analyses DMA : le modèle de Cole-Cole (Cole and Cole, 1941) et un modèle dérivé permettant la description d'une dissymétrie du facteur de perte

(*master Signor et Dinzart and Lipiński, 2009*). La fonction de Cole-Cole correspond à un modèle de Zener où les éléments visqueux auraient été remplacés par des éléments à comportement :

$$\sigma(t) + \tau^{\alpha} \frac{d^{\alpha} \sigma(t)}{dt^{\alpha}} = E_0 \varepsilon(t) + E_{\infty} \tau^{\alpha} \frac{d^{\alpha} \varepsilon(t)}{dt^{\alpha}}$$
(II-9)

Ce modèle a été modifié de façon à satisfaire la condition de causalité thermodynamique, et surtout de décrire une dissymétrie conséquente du facteur de perte. La loi de comportement proposée permet un traitement mathématique dans l'espace temporel (moyennant certains outils d'implémentation) et une formulation dans l'espace fréquentiel :

$$\sigma(t) + \tau^{\alpha} \frac{d^{\alpha} \sigma(t)}{dt^{\alpha}} + \tau^{\beta} \frac{d^{\beta} \sigma(t)}{dt^{\beta}} = E_{0} \varepsilon(t) + E_{0} \tau^{\beta} \frac{d^{\beta} \varepsilon(t)}{dt^{\beta}} + E_{\infty} \tau^{\alpha} \frac{d^{\alpha} \varepsilon(t)}{dt^{\alpha}}$$
(II-10)

et

$$E^{*}(i\omega) = \frac{E_{0} + E_{0}(i\omega\tau)^{\beta} + E_{\infty}(i\omega\tau)^{\alpha}}{1 + (i\omega\tau)^{\alpha} + (i\omega\tau)^{\beta}}$$
(II-11)

La Figure II-3 illustre la gamme de facteur de perte décrite par ce modèle :



Figure II-3 : Effet du paramètre  $\beta$  sur le facteur de perte ( $\omega_n = \omega \tau$ )(Dinzart and Lipiński, 2009)

#### 2.3 Viscoélasticité décrite par un Maxwell généralisé

On considère le polymère semi-cristallin PBT et le composite PBT renforcé de fibres de verre étudiés dans la thèse de Schoeneich. Chacune des phases est décrite par une décomposition en série de Prony dont la formulation a été conservée dans l'espace fréquentiel. Le comportement effectif du composite est estimé en appliquant le principe d'équivalence de Mandel en considérant la solution du problème de l'inclusion ellipsoïdale enrobée placée dans une matrice. La prise en compte de l'interphase repose sur le modèle développé en chapitre V. En connaissant la fraction volumique de l'inclusion considérée comme une ellipsoïde avec un rapport de forme donné et la fraction volumique de l'interphase estimée par nano-indentation, il est possible de déterminer par méthode inverse les modules de la

décomposition en série de Prony de l'interphase pour une distribution des temps de relaxation supposée identique aussi bien pour la matrice PBT, l'interphase et le milieu effectif. Le module effectif du composite est obtenu à partir du modèle à 3 phases selon un schéma d'homogénéisation de Mori-Tanaka. Le comportement de l'interphase est supposé de la même famille que celui de la matrice, mais avec un durcissement inhérent à une organisation fibrillaire des chaînes semi-cristallines associée à un décalage de la température de transition vitreuse (et par conséquent de la fréquence propre des chaînes à température de référence de 20°C). La méthode consiste à déterminer le module  $G_{0-PBT-interphase}$  pour une fréquence nulle. La courbe  $G'_{PBT-interphase}$  s'obtient alors par un décalage vertical de cette valeur  $G_{0-PBT-interphase}$  (étape '1') puis est décalée horizontalement (étape '2') de façon à obtenir une coïncidence du point associé au milieu de la sigmoïde. Les modules de la décomposition de la série de Prony sont alors multipliés par un coefficient de façon à faire coïncider le comportement effectif calculé (tracé en noir) avec le comportement du composite (en pointillés) (étape '3').



Figure II-4 : Identification du comportement de l'interphase par méthode inverse (master Vallet)

#### 2.4 Comportement effectif de composite ; cas de la viscoélasticité à dérivée fractionnaire

On considère le mélange de deux matériaux distincts isotropes décrits par chacun par un modèle de Zener fractionnaire défini par le module dans l'espace de Laplace-Carson :  $\hat{E}_i(p) = E_{0i} \frac{1 + d_i(\tau_i p)^{\alpha_i}}{1 + (\tau_i p)^{\alpha_i}}$ pour i = (1,2) avec  $d_i = E_{\infty_i} / E_{0_i}$ . Le comportement effectif du mélange est accessible par une approche auto-cohérente classique formulée par Hershey (1954) sous la forme d'une équation quadratique simple. Sous l'hypothèse d'incompressibilité des matériaux, le module effectif  $\hat{E}_{eff}$  est obtenu sous forme symbolique par extension de la solution classique obtenue pour le comportement élastique linéaire (Rougier et al., 1994; Beurthey and Zaoui, 2000). La formulation du module effectif  $E_{eff}^*$  obtenu dans l'espace de Fourier permet la mise en évidence du module de conservation  $E'_{eff}$ , du module de dissipation  $E''_{eff}$  et du facteur de perte  $\eta = E''_{eff} / E'_{eff}$  accessibles par analyse DMA. L'analyse du mélange de deux matériaux de transitions vitreuses distinctes conduit à des résultats similaires à ceux obtenus expérimentalement et dans la littérature (Brinson and Lin, 1998).

Une application pratique a été réalisée sur un mélange de deux thermoplastiques amorphes caractéristiques par leur facteur de perte élevé dans la zone de transition vitreuse : le Polyméthacrylate de méthyle (PMMA) et le Styrène-acrylonitrile (SAN). Les courbes 'maîtresse' ont été identifiées par un modèle de Zener fractionnaire. La courbe maîtresse prédite par l'approche auto-cohérente est en bon accord avec les essais spectrométriques réalisés sur le mélange 50/50 de PMMA-SAN (masters Henquinet et Anoukou ; Dinzart and Lipiński, 2010).



Figure II-5 : Courbes 'maîtresse' du facteur de perte (Dinzart and Lipiński, 2010)

Cette approche se révèle particulièrement pertinente si on se limite à des caractérisations du comportement dans le domaine fréquentiel. Cependant, malgré la simplification du formalisme apportée par l'utilisation des dérivations fractionnaires, l'obtention de la réponse d'un composite dont les composants sont décrits par ces modèles empiriques reste compliquée. En effet, s'il est possible d'accéder simplement aux réponses temporelles lorsque le comportement du matériau est décrit par une équation différentielle sous une forme (II-9) en utilisant les fonctions hypergéométriques incrémentées pas à pas, le module effectif complexe d'un composite ne peut être qu'approximé par une combinaison de paramètres permettant de revenir à la forme différentielle souhaitée et facilement intégrable pour tout type de chargement. L'obtention de la réponse dans l'espace temporel reste un problème délicat où la solution reste entachée d'approximations essentiellement numériques. L'écueil de la décomposition en série de Prony du module de relaxation est certes contourné mais la solution exacte n'est pas encore accessible. Ces difficultés ont donc conduit à une approche alternative où la réponse à tout type de chargement pourrait être obtenue directement dans l'espace temporel.

# **3.** Approche par variables internes de l'homogénéisation du comportement de composite viscoélastique

# 3.1 Contexte

L'obtention du comportement effectif de composite viscoélastique ou élasto-visco-plastique directement dans le domaine temporel nécessite la formulation d'une équation intégrale rendue extrêmement compliquée par la présence de termes de couplage viscoélastique. L'approche issue des champs translatés repose sur une idée directrice importante : la nouvelle formulation doit permettre de retrouver les comportements asymptotiques élastique et visqueux obtenus de façon classique. Cette gageure est tenue en introduisant des opérateurs de Green modifiés  $\Gamma^{C^0}$  et  $\Gamma^{B^0}$  liés aux modules élastique  $C^0$  et visqueux  $B^0$  du milieu de référence. Pour traiter les équations d'équilibre  $div\sigma = 0$  et  $div\dot{\sigma} = 0$  par les techniques des fonctions de Green, on introduit des opérateurs de projection associés aux milieux homogènes élastiques et visqueux  $\Pi^{C^0} = \Gamma^{C^0} : C^0$  et  $\Pi^{B^0} = \Gamma^{B^0} : B^0$ . L'équation intégrale obtenue présente des termes de fluctuations de nature élastique et de nature visqueuse respectivement liés à  $\Pi^{C^{\theta}}$  et  $\Pi^{B^{\theta}}$ . Elle ne peut cependant être traitée facilement car elle contient un produit de convolution spatiale  $(\Gamma^{C^{\theta}}: C^{0} - \Gamma^{B^{\theta}}: B^{0})^{*}(B^{0^{-1}}: \sigma)$  difficile à évaluer car nécessitant la connaissance de toute la microstructure et du champ de contrainte en tout point du matériau. On comprend mieux la simplification proposée par Kouddane et al (1993) considérant  $C^{\theta}: M^{0} = \lambda$  avec  $M^{0} = B^{0^{-1}}$ . Paquin et al. (1999) et Sabar et al. (2002b) ont proposé alors une approximation basée sur les états asymptotiques purement élastique et purement visqueux du matériau en effectuant une translation des champs de déformation élastique et visqueux en des champs de déformations fictifs satisfaisant les conditions de compatibilité cinématique. Cette approche donne les solutions exactes pour les comportements asymptotiques mais reste approchée dans les états intermédiaires. Le défi réside alors dans une formulation qui reproduirait les comportements asymptotiques élastique et visqueux mais permettrait une description fine des étapes de transition où le couplage viscoélastique prend toute sa mesure. La formulation du problème viscoélastique et les équations intégrales sont classiques (Coulibaly and Sabar, 2010) mais ont été rappelées de facon plus synthétique afin de mieux décrire les transitions de comportement viscoélastique à travers de multiples enrobages permettant ainsi d'accéder aux comportements effectifs par un schéma d'homogénéisation auto-cohérent généralisé.

# 3.2 Formulation du problème

Le composite est constitué d'un milieu hétérogène *V* soumis à une vitesse déformation uniforme  $\dot{\varepsilon}^0$  à la frontière  $\partial V$ . Chaque phase présente un comportement décrit par le modèle de Maxwell :  $\dot{\varepsilon}(r,t) = s(r): \dot{\sigma}(r,t) + m(r): \sigma(r,t)$  (II-12) où s(r) et m(r) sont les complaisances élastique et visqueuse respectivement (modules élastique et visqueux définis par  $c(r) = s^{-1}(r)$ ) et  $b(r) = m^{-1}(r)$ ).

Les équations de champ du problème s'écrivent sous la forme :

$div\sigma = 0$	Equation d'équilibre sur $\sigma$ connu	(II-13)
$div\dot{\sigma} = 0$	Equation d'équilibre sur σ inconnu	(II-14)
$\dot{\varepsilon} = \nabla^s v$	Condition de compatibilité cinématique	(II-15)
$v_i^d = \dot{\varepsilon}_{ij}^0 x_j  \operatorname{sur} \partial V$	Conditions aux limites	(II-16)

où les inconnues sont les vitesses de déformation  $\dot{\varepsilon}$  et les vitesses de contrainte  $\dot{\sigma}$ .

# 3.3 Equation intégrale viscoélastique

On se propose de résoudre le problème des inclusions viscoélastiques formulé par les conditions d'équilibre, l'équation de compatibilité cinématique et les conditions aux limites. Les propriétés locales élastique et visqueuse sont séparées en une partie uniforme associée au milieu homogène infini et à une partie fluctuante qui sera associée par la suite aux inclusions et enrobages. On associe alors un second problème obtenu par dérivation des équations de Navier et on réécrit la loi de comportement de Maxwell sous la forme  $\sigma(r,t) = b(r) : (\dot{\varepsilon}(r,t) - s(r) : \dot{\sigma}(r,t))$ . On obtient un système constitué de deux équations de Navier où le terme de fluctuation est exprimé sous la forme  $R = \delta s : \dot{\sigma} + \delta m : \sigma$ . En introduisant les tenseurs de Green modifié  $\Gamma^{C^0}$  et  $\Gamma^{B^0}$  associés aux parties élastiques et visqueuses du comportement, on obtient deux équation intégrales indépendantes :

$$\ddot{\varepsilon} = \ddot{\varepsilon}^0 + \Gamma^{C^0} : C^0 * \dot{R} + \Gamma^{C^0} : C^0 * M^0 : \dot{\sigma}$$
(II-17)

$$\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}^0 + \Gamma^{B^0} : B^0 * R + \Gamma^{B^0} : B^0 * S^0 : \dot{\sigma}$$
(II-18)

où '\*' représente le produit de convolution ( $F * G = \int_{V'} F(r - r') G(r') dV'$ ).

Les termes d'intégration volumique  $\Gamma^{C^{\theta}}: C^{0} * M^{0}: \dot{\sigma}$  et  $\Gamma^{B^{\theta}}: B^{0} * S^{0}: \dot{\sigma}$  présentent la même structure que celle mise en évidence par l'approche des champs translatés. Ces termes qui ne présentent aucune fluctuation doivent être évalués sur l'intégralité du volume V et nécessitent la connaissance des champs de contrainte qui sont par nature hétérogènes. Mais l'idée est d'utiliser leur structure similaire afin de les rapprocher en vue de simplifications. L'estimation des termes  $\Gamma^{C^{\theta}}: C^{0} * M^{0}: \dot{\sigma}$  et  $\Gamma^{B^{\theta}}: B^{0} * S^{0}: \dot{\sigma}$ nécessite la connaissance des lois de comportement considérées par la suite viscoélastique linéaire isotrope. Les travaux réalisés par Coulibaly et Sabar (2010) portaient sur une description du comportement élastique et visqueux linéaire isotrope adapté à une géométrie sphérique. Des résultats prometteurs ont également été obtenus dans le cadre du master de Mr Kodjo pour des composites fibreux. Deux modes de sollicitation ont alors été envisagés : cisaillement anti-plan et traction selon la direction des fibres pour permettre une comparaison avec les approches variationnelles développées par Suquet (2012). La méthode consiste simplifier le terme commun à  $\Gamma^{C^{\theta}}: C^{0} * M^{0}: \dot{\sigma}$  et  $\Gamma^{B^{\theta}}: B^{0} * S^{0}: \dot{\sigma}$  sous la forme d'une constante  $\lambda^{0}$  combinant les propriétés élastiques et visqueuses. Dans le cas du comportement linéaire élastique des matériaux décrit par

$$C^{0} = 3\kappa^{0} L + 2\mu^{0} J \text{ et } B^{0} = 3\kappa^{\nu^{0}} L + 2\eta^{0} J$$
(II-19)

on obtient alors une équation intégrale unique :

$$\ddot{\varepsilon} + \lambda^{0} \dot{\varepsilon} = \ddot{\varepsilon}^{0} + \lambda^{0} \dot{\varepsilon}^{0} + \Gamma^{C^{\theta}} : C^{0} * \dot{R} + \lambda^{0} \Gamma^{B^{\theta}} : B^{0} * R$$
(II-20)
avec  $\lambda^{0} = \mu^{0} \alpha^{c^{0}} / \eta^{0} \alpha^{v^{0}} \quad \alpha^{c^{0}} = 3\kappa^{0} / (3\kappa^{0} + 4\mu^{0}) \text{ et } \alpha^{v^{0}} = 3\kappa^{v^{0}} / (3\kappa^{v^{0}} + 4\eta^{0}).$ 

Cette équation intégrale comprend non seulement les opérateurs de Green associés aux comportements élastique et visqueuse du milieu homogène de référence mais fait apparaître les termes de fluctuations (R et  $\dot{R}$ ). Cette équation de concentration ne comporte plus de termes 'volumiques' ouvrant ainsi la voie aux techniques classiques d'homogénéisation.

#### 3.4 Evaluation de la contribution volumique au tenseur de contrainte

On se propose dans cette d'approche d'accéder à une estimation des termes d'intégration volumique  $\Gamma^{C^{\theta}}: C^{0} * M^{0}: \sigma$  et  $\Gamma^{B^{\theta}}: B^{0} * S^{0}: \sigma$  en procédant à un développement reposant sur le champ de contrainte  $\sigma$  hétérogène dans le volume sur lequel l'intégration doit être réalisée. Dans le cas d'un comportement linéaire élastique des matériaux, les équations intégrales sont formulées en tenant compte des propriétés des opérateurs de Green modifiés :

$$\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}^{0} + \Gamma^{C^{\theta}} * C^{0} : R + \frac{\alpha^{c^{0}}}{\kappa^{0}} \left( \frac{\kappa^{0}}{\kappa^{\nu^{0}}} - \frac{\mu^{0}}{\eta^{0}} \right) * \sigma_{s}^{*}$$
(II-21)

$$\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}^{0} + \Gamma^{B^{0}} * B^{0} : R + \frac{\alpha^{\nu^{0}}}{\kappa^{\nu^{0}}} \left( \frac{\kappa^{\nu^{0}}}{\kappa^{0}} - \frac{\eta^{0}}{\mu^{0}} \right) * \dot{\sigma}_{s}^{*}$$
(II-22)

avec  $\dot{\sigma}_s^* = -\frac{1}{4\pi} \left(\frac{1}{r}\right)_{,ij}^* \dot{\sigma}_s$  et  $\sigma_s^* = -\frac{1}{4\pi} \left(\frac{1}{r}\right)_{,ij}^* \sigma_s$  où l'indice 's' correspond à la partie sphérique. Par

combinaison des équations intégrales (II-21) et (II-22), il est possible d'accéder à l'évolution de la composante sphérique du champ de contrainte d'origine volumique  $\sigma_s$  par résolution de l'équation selon un schéma incrémental :

$$\dot{\sigma}_{s}^{*} + \frac{\mu^{0}}{\eta^{0}} \frac{\alpha^{c^{0}}}{\alpha^{v^{0}}} \sigma_{s}^{*} = (\Gamma^{C^{0}} * C^{0} - \Gamma^{B^{0}} * B^{0}) : R$$
(II-23)

où le second membre directement lié à la fluctuation R nécessite le développement des produits de convolution  $\Gamma^{C^{\theta}} * C^{0}$  et  $\Gamma^{B^{\theta}} * B^{0}$ . La notation adoptée ci-dessus conserve un traitement similaire des composantes élastique et visqueuse du comportement. Diverses combinaisons des équations de
comportement aboutissent à d'autres formulations équivalentes de la loi d'évolution (II-23) (voir Berbenni et al., 2015). Le schéma de résolution du problème d'inhomogénéité implique la résolution par schéma incrémental de (II-21) et de (II-23) résolus de façon simultanée.

### 3.5 Résolution du problème de l'inclusion viscoélastique

Le problème de l'inclusion viscoélastique est résolu par l'approche des fonctions de Green en prenant comme base l'équation intégrale ou le système constitué de (II-21) et de (II-23). Les relations de localisation de la déformation sont écrites en moyennant le champ de déformation dans l'inclusion. Les tenseurs de polarisation, homogènes dans l'inclusion d'après Eshelby (1957) dépendent du comportement du milieu homogène de référence '0' et de la géométrie de l'inclusion. La résolution du problème de l'inclusion viscoélastique de type Maxwell a été conduite par le schéma incrémental basé sur le système constitué de (II-21) et de (II-23) pour des géométries ellipsoïdales (Berbenni et al., 2015). L'équation d'évolution de la contrainte sphérique (II-23) moyennée sur l'inclusion a nécessité l'introduction des fonctions harmoniques et biharmoniques (Mura, 1987) définies par :

$$\phi_{,ij} = \int_{V'} \frac{1}{|r - r'|_{,ij}} dV' \qquad \psi_{,ijkl} = \int_{V'} |r - r'|_{,ijkl} dV' \tag{II-24}$$

Il devient alors possible d'exprimer l'équation de localisation sous la forme :

$$\bar{\varepsilon}^{I} = A^{C^{0^{I/0}}} : \bar{\varepsilon}^{0} + A^{C^{0^{I/0}}} : T^{C^{0^{I}}} : (C^{I} : M^{I} - C^{0} : M^{0}) : \bar{\sigma}^{I} + \frac{\alpha^{c^{0}}}{\kappa^{0}} \left( \frac{\kappa^{0}}{\kappa^{\nu^{0}}} - \frac{\mu^{0}}{\eta^{0}} \right) A^{C^{0^{I/0}}} : (\bar{\sigma}^{*I} - \bar{\sigma}^{*0})$$
(II-25)  
avec  $A^{C^{0^{I/0}}} = \left[ I + T^{C^{0}} : \Delta c^{I/0} \right]^{-1}$ .

L'évolution du champ de contrainte sphérique moyen  $\overline{\sigma}^{*l}$  est exprimée par une équation différentielle :

$$\overline{\sigma}^{I} - \overline{\sigma}^{0} = \left(B^{0} - \left[T^{B^{0^{I}}}\right]^{-1}\right) : (\overline{\varepsilon}^{I} - \varepsilon^{0}) - B^{0} : S^{0} : (\overline{\sigma}^{I} - \sigma^{0}) + \frac{\alpha^{b^{0}}}{\kappa^{v^{0}}} \left(\frac{\kappa^{v^{0}}}{\kappa^{0}} - \frac{\eta^{0}}{\mu^{0}}\right) \left[T^{B^{0^{I}}}\right]^{-1} : (\overline{\sigma}^{*I} - \sigma^{*0})$$
(II-26)

avec  $\dot{\sigma}^{*0} = 0$ . Une formulation matricielle peut être adoptée permettant une mise en évidence de l'évolution issue de l'intégration des termes volumiques (Berbenni et al., 2015). Une formulation explicite a été développée dans le cadre d'un composite biphasé Maxwellien à inclusions sphériques. Cette nouvelle approche a montré une parfaite concordance avec les résultats exacts obtenus par Ricaud et Masson (2009) par une approche héréditaire dans l'espace de Laplace-Carson. L'approche par champs translatés s'est révélée pertinente aux temps courts et temps longs et a présenté une description des états transitoires moins précise (voir article joint en annexe).

## 3.6 Extension et perspectives

La démarche générale décrite dans les sections précédentes peut être simplifiée en considérant simplement des produits de convolution par les opérateurs de Green modifiés élastique et visqueux effectués sur la loi de comportement où les termes de contraintes  $\sigma$  et  $\dot{\sigma}$  sont isolés :

 $\dot{\sigma} = c : \dot{\varepsilon} - c : m : \sigma$  convolué par  $\Gamma^{C^{\theta}}$  donne (III-14) en considérant  $\Gamma^{C^{\theta}} * \dot{\sigma} = 0$ 

 $\sigma = b : \dot{\varepsilon} - b : s : \dot{\sigma}$  convolué par  $\Gamma^{B^0}$  donne une équation dont la dérivée correspond à (III-15) en considérant  $\Gamma^{B^0} * \sigma = 0$ .

Cette démarche qui ne nécessite plus la définition d'un problème conjoint au premier (Coulibaly and Sabar, 2010), ouvre des perspectives particulièrement intéressantes. Ainsi, la définition d'opérateur de Green modifiés associés à chacune des propriétés élastiques et visqueuses des modèles rhéologiques empiriques de Kelvin-Voigt, Zener et Burgers permet d'accéder à un système d'équations où les termes issus des produits de convolution présentant les difficultés d'intégration inhérentes à un calcul volumique (termes 'volumiques') sont remplacés par les termes de fluctuation classique élastique et visqueux. On accède alors à une équation intégrale unique permettant la formulation exacte des équations d'interaction et pouvant être intégrée dans tout schéma d'homogénéisation. La simplicité du traitement incrémental de l'étape d'homogénéisation récompense largement l'étape de remplacement des termes 'volumiques' (qui d'ailleurs peut être systématisée).

Dans le cadre de ce travail, une extension du modèle existant de Maxwell du 'premier ordre' à un modèle de Maxwell généralisé permettra la prise en compte de phénomènes de relaxation plus complexes plus représentatifs du comportement réel des polymères.

Enfin, une étude plus approfondie des propriétés des algèbres de convolution appliquées à des distributions dérivées d'ordre non-entière (*voir section 3.2*) devrait permettre d'allier la simplicité de traitement de l'équation intégrale à la capacité de description des modèles 'fonctionnels' construits à partir de propriétés visqueuses décrites par des 'amortisseurs à comportement'.

Enfin, il serait pertinent d'étendre le comportement purement viscoélastique décrit par un modèle de Maxwell généralisé à un comportement élasto-viscoplastique par combinaison additive d'une loi viscoplastique :

$$\dot{\varepsilon}(r,t) = s(r): \dot{\sigma}(r,t) + \dot{\varepsilon}^{\nu p} \tag{II-27}$$

où  $\dot{\varepsilon}^{vp}$  représente le taux de déformation viscoplastique soit sous la forme  $\dot{\varepsilon}^{vp} = g(\sigma): \sigma$  pour l'approche sécante (Molinari et al., 1987) ou sous la forme dérivée  $\ddot{\varepsilon}^{vp} = \partial g(\sigma) / \partial \sigma: \dot{\sigma}$  pour l'approche tangente (Hutchinson, 1976). Le problème doit alors être écrit sous une forme dérivée permettant d'intégrer les modules tangents ou sécants.

# 4. Approche par variables internes de l'homogénéisation du comportement de composite viscoélastique ; cas de l'inclusion multi-enrobée

### 4.1 Contexte

Les nombreuses études (Brinson and W. S. Lin 1998; Fisher and Brinson 2001; Friebel et al. 2006; J. Zhang & He 2007; Pichler et al. 2012) dédiées à l'estimation du comportement effectif de composites renforcés viscoélastiques ou élasto-viscoplastiques reposent sur l'approche héréditaire qui utilise les solutions symboliques issues des solutions exactes obtenues dans le cas d'un comportement élastique (Christensen and Lo, 1979; Hervé and Zaoui, 1995, 1993, 1990). Cependant l'inversion numérique des transformées de Laplace se trouve grandement compliquée par l'adjonction d'interphases viscoélastiques (la simulation d'un essai de traction à vitesse constante passe de quelques secondes dans le cas du problème de l'inclusion traité par le schéma auto-cohérent à une demi-heure pour le problème traité par le schéma auto-cohérent généralisé).

Une extension de l'approche à variables internes décrite précédemment permet de résoudre directement dans l'espace temporel le problème d'inclusions viscoélastiques à enrobages multiples. Le problème des transitions entre les différents enrobages est traité par une extension de la technique des opérateurs interfaciaux (Cherkaoui et al., 1996, 1995, Lipinski et al., 2006) prenant en compte le couplage espace-temps lié au comportement viscoélastique. La relation de récurrence liée aux interfaces successives est exprimée via des relations interfaciales réalisées sur chaque phase. Un assemblage généralisé (n+1 – selon la notation proposée par Hervé and Zaoui, 1993) permet d'accéder au module viscoélastique effectif d'un composite constitué d'inclusions multiplement enrobées. L'extension de cette nouvelle méthode ne présente pas de difficultés insurmontables, la formulation écrite dans le cas d'inclusions rejoint celle issue des opérateurs interfaciaux pour les inclusions sphériques enrobées de façon concentrique et homothétique pour une loi de comportement linéaire et isotrope.

## 4.2 Résolution du problème des inclusions viscoélastique à enrobages multiples

#### 4.2.1 Formulation du problème

L'équation intégrale est développée dans le cas du problème des inclusions viscoélastiques à enrobages multiples concentriques et homothétiques plongés dans une matrice. Les fractions volumiques des différentes phases sont définies par  $\phi_k(r) = V_k / V_I$  pour  $k \in \{1, 2, ..., n\}$  avec  $V_I = \sum_{k=1}^n V_k$  le volume de l'inclusion composite. Les parties fluctuantes des complaisances élastique et visqueuses évoquées précédemment sont exprimées par :

$$\delta s(r) = \sum_{k=1}^{n} \Delta s^{k/0} \theta_k(r) \quad \text{et} \quad \delta m(r) = \sum_{k=1}^{n} \Delta m^{k/0} \theta_k(r) \text{ où } \theta_k(r) = \begin{cases} 1 & si \quad r \in V_k \\ 0 & si \quad r \notin V_k \end{cases}.$$

$$\Delta s^{k/0} = s^k - S^0 \text{ et } \Delta m^{k/0} = m^k - M^0$$
(II-28)

L'équation intégrale (II-20) peut alors être formulée pour le problème des inclusions multi-enrobées :

$$\sum_{k=1}^{n} \phi_k \left( \boldsymbol{L}_2^{k/\theta} : \overline{\boldsymbol{\sigma}}^k + \boldsymbol{L}_1^{k/\theta} \, \overline{\boldsymbol{\sigma}}^k + \boldsymbol{L}_0^{k/\theta} : \overline{\boldsymbol{\sigma}}^k \right) = \ddot{\boldsymbol{\varepsilon}}^0 + \lambda^0 \dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^0 \tag{II-29}$$

où  $L_{2}^{k/\theta} = A^{C^{0^{k/0}-1}} : s^{k}$ ,  $L_{I}^{k/\theta} = (m^{k} - S^{C^{\theta}} : \Delta m^{k/0}) + \lambda^{0} (s^{k} - S^{B^{\theta}} : \Delta s^{k/0})$  et  $L_{\theta}^{k/\theta} = \lambda^{0} A^{B^{0^{k/0}-1}} : m^{k}$ . Les tenseurs de localisation  $A^{C^{0^{k/0}}}$  et  $A^{B^{0^{k/0}}}$  sont définis classiquement en fonction des tenseurs de polarisation  $T^{C^{\theta}}$  et  $T^{B^{\theta}} : A^{C^{0^{k/0}}} = [I + T^{C^{\theta}} : \Delta c^{k/0}]^{-1}$  et  $A^{B^{0^{k/0}}} = [I + T^{B^{\theta}} : \Delta b^{k/0}]^{-1}$  avec  $T^{C^{\theta}} = S^{C^{\theta}} : C^{0^{-1}}$  et  $T^{B^{\theta}} = S^{B^{\theta}} : B^{0^{-1}}$  (Hill, 1983).

L'équation (II-29) est insuffisante à la résolution du problème des inclusions viscoélastiques (*n* inconnues  $\overline{\sigma}^k$  et leurs dérivées premières et secondes); il est indispensable de lui adjoindre des relations complémentaires issues des conditions de liaisons parfaites des interfaces :

$$\begin{cases} v_i^{k+1} - v_i^k = 0, & \dot{v}_i^{k+1} - \dot{v}_i^k = 0\\ \overline{\sigma}_{ij}^{k+1} N_j^k - \overline{\sigma}_{ij}^k N_j^k = 0, & \overline{\sigma}_{ij}^{k+1} N_j^k - \overline{\sigma}_{ij}^k N_j^k = 0 \end{cases}$$
(II-30)

où  $N^k$  est le vecteur unitaire extérieur 'k' entre les phases k and k+1. La traduction des conditions de compatibilité de polarisation conduit à la formulation conjointe des sauts de déformation en terme de vitesse et d'accélération :

$$[\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}]^{k} = \boldsymbol{P}^{\boldsymbol{b}^{k+1}} : \boldsymbol{b}^{k+1} : \boldsymbol{R}^{k/k+1} + \boldsymbol{P}^{\boldsymbol{b}^{k+1}} : \boldsymbol{b}^{k+1} : \boldsymbol{s}^{k+1} : [\dot{\boldsymbol{\sigma}}]^{k}$$
(II-31)

$$[\ddot{\varepsilon}]^{k} = \mathbf{P}^{c^{k+1}} : c^{k+1} : \dot{R}^{k/k+1} + \mathbf{P}^{c^{k+1}} : c^{k+1} : m^{k+1} : [\dot{\sigma}]^{k}$$
(II-32)

où  $P^{c^{k+1}}$  et  $P^{b^{k+1}}$  sont respectivement les opérateurs 'interfaciaux' élastique et visqueux et  $R^{k/k+1} = \Delta s^{k/k+1} : \dot{\sigma}^k + \Delta m^{k/k+1} : \sigma^k$  la fluctuation à l'interface.

On retrouve comme dans le cas du problème de l'inclusion simple l'occurrence de deux termes difficiles à évaluer de façon indépendante  $P^{b^{k+1}}: b^{k+1}: [\dot{\sigma}]^k$  et  $P^{c^{k+1}}: c^{k+1}: [\dot{\sigma}]^k$  mais simplifiables après formulation dans le cadre d'un comportement Maxwellien :

$$\boldsymbol{P}^{\boldsymbol{c}^{k+1}} : \boldsymbol{c}^{k+1} : \boldsymbol{m}^{k+1} : [\dot{\boldsymbol{\sigma}}]^k = \frac{3}{3\kappa^{k+1} + 4\mu^{k+1}} \left( \frac{\kappa^{k+1}}{\kappa^{\nu^{k+1}}} - \frac{\mu^{k+1}}{\eta^{k+1}} \right) [\dot{\boldsymbol{\sigma}}_s]^k N^k N^k$$

$$\boldsymbol{P}^{\boldsymbol{b}^{k+1}} : \boldsymbol{b}^{k+1} : \boldsymbol{s}^{k+1} : [\dot{\boldsymbol{\sigma}}]^k = \frac{3}{3\kappa^{\nu^{k+1}} + 4\eta^{k+1}} \left( \frac{\kappa^{\nu^{k+1}}}{\kappa^{k+1}} - \frac{\eta^{k+1}}{\mu^{k+1}} \right) [\dot{\boldsymbol{\sigma}}_s]^k N^k N^k$$
(II-33)

On obtient alors pour chaque interphase une relation liant les champs de vitesse et accélération en déformation :

$$\begin{bmatrix} \ddot{\varepsilon} \end{bmatrix}^{k} + \lambda^{k+1} [\dot{\varepsilon}]^{k} = \mathbf{P}^{c^{k+1}} : c^{k+1} : \dot{R}^{k/k+1} + \lambda^{k+1} \mathbf{P}^{b^{k+1}} : b^{k+1} : R^{k/k+1}$$
(II-34)  
où  $\lambda^{k} = \mu^{k} \alpha^{c^{k}} / \eta^{k} \alpha^{\nu^{k}}$  avec  $\alpha^{c^{k}} = 3\kappa^{k} / (3\kappa^{k} + 4\mu^{k})$  et  $\alpha^{\nu^{k}} = 3\kappa^{\nu^{k}} / (3\kappa^{\nu^{k}} + 4\eta^{k})$ .

En supposant des enrobages de faible épaisseur, il est alors possible de moyenner les champs de contrainte et leurs dérivées dans toutes les phases pour accéder à la relation généralisée :

$$\sum_{i=1}^{k} \phi_i \left( s^{k+1} : \overline{\sigma}^{k+1} + \left( m^{k+1} + \lambda^{k+1} s^{k+1} \right) : \overline{\sigma}^{k+1} + \lambda^{k+1} m^{k+1} : \overline{\sigma}^{k+1} \right) = \sum_{i=1}^{k} \phi_i \left( L_2^{i/k+1} : \overline{\sigma}^i + L_1^{i/k+1} \overline{\sigma}^i + L_0^{i/k+1} : \overline{\sigma}^i \right)$$
(II-35)

où les tenseurs  $L_2^{i/k+1}$ ,  $L_1^{i/k+1}$  et  $L_0^{i/k+1}$  s'expriment en fonction des tenseurs de localisation élastique et visqueux  $A^{C^{0^{i/k+1}}} = [I + T^{C^{k+1}} : \Delta C^{i/k+1}]$ ,  $A^{B^{k+1^{i/k+1}}} = [I + T^{B^{k+1}} : \Delta B^{i/k+1}]$  et des différences de comportement entre les interphases  $\Delta c^{i/k+1}$  et  $\Delta m^{i/k+1}$  (Dinzart and Sabar, 2014). On obtient alors un système constitué de l'équation intégrale (II-29) portant sur l'inclusion-composite et d'un système de *k* équations décrivant l'évolution de la contrainte moyenne  $\overline{\sigma}^{k+1}$  dans le  $k+1^{ième}$  enrobage en fonction de l'évolution de la contrainte moyenne  $\overline{\sigma}^{k+1}$  dans le *k*+1<sup>ième</sup> enrobage en fonction de l'évolution de la contrainte moyenne d'ans les enrobages d'ordre inférieur (II-35). Selon le schéma d'homogénéisation choisi, il est possible alors de déterminer l'évolution du champ de contrainte moyen en fonction d'une sollicitation imposée.

Le système d'équations différentielles est résolu par une méthode incrémentale en considérant un pas de temps suffisamment précis pour décrire l'intégralité d'un chemin de chargement. Cette formulation nécessite une programmation rigoureuse du schéma incrémental qui peut paraître longue et fastidieuse. Les efforts de programmation sont largement récompensés par une résolution extrêmement rapide (inférieure à 1 min) comparativement à celle issue de l'approche héréditaire (surtout lors de la présence d'enrobages multiples).

#### 4.2.2 Application au problème de l'inclusion viscoélastique multi-enrobée

La résolution du système constitué des équations (III-26) et (III-32) constitue la solution du problème de l'inclusion viscoélastique multi-enrobée. On se propose d'appliquer un schéma d'homogénéisation auto-cohérent généralisé permettant la description de la topologie inhérente aux composites. Dans le cadre de cette approche, le milieu homogène de référence '0' est remplacé par le milieu homogène équivalent '*eff*' dont on recherche les propriétés. L'équation de concentration devient alors :

$$\sum_{k=1}^{n} \phi_k \left( \boldsymbol{L}_2^{k/eff} : \overline{\boldsymbol{\sigma}}^k + \boldsymbol{L}_1^{k/eff} \, \overline{\boldsymbol{\sigma}}^k + \boldsymbol{L}_0^{k/eff} : \overline{\boldsymbol{\sigma}}^k \right) = \ddot{\boldsymbol{E}} + \lambda^{eff} \, \dot{\boldsymbol{E}} \tag{II-36}$$

Le comportement du milieu effectif s'écrit :

$$\dot{E} = S^{eff} : \dot{\Sigma} + M^{eff} : \Sigma$$
(II-37)

Le schéma de résolution incrémental considère que les propriétés élastiques sont indépendantes du temps et satisfont  $C^{eff} = \overline{c:A^{c^{eff}}}$ ,  $\overline{A^{c^{eff}}} = I$ . Les propriétés visqueuses sont évaluées à chaque pas de calcul afin de satisfaire les conditions d'autocohérence  $\overline{\dot{\varepsilon}} = \dot{E}$  et  $\overline{\ddot{\varepsilon}} = \ddot{E}$ .

## - Schéma auto-cohérent généralisé : modèles à (2+1)-phases et (3+1)-phases

La résolution du problème de l'inclusion viscoélastique a été conduite selon le schéma autocohérent généralisé dans les cas d'un composite à 2 phases (inclusion-matrice) et à 3 phases (inclusioninterphase-matrice). Les inclusions ainsi que leurs enrobages concentriques et homothétiques ont été considérés sphériques. Les systèmes d'équations issus du schéma d'homogénéisation sont détaillées dans Dinzart and Sabar (2014). Une comparaison des modules effectifs de compressibilité et de cisaillement a été réalisée avec les solutions exactes fournies par Hervé et Zaoui (Hervé and Zaoui, 1993) traduites dans l'espace de Laplace. Il a été démontré que les parties sphériques des modules effectifs décrivant les modules de compressibilité avaient les mêmes expressions analytiques que les expressions symboliques associées aux solutions exactes établies par Hervé-Zaoui. Si les parties déviatoriques représentatives des modules de cisaillement se sont révélées avoir des expressions différentes des expressions symboliques, la programmation numérique dans l'espace de Laplace a toutefois montré un très bon accord entre l'approche proposée et celle issue de la solution exacte.

#### - Application au cas d'un matériau viscoélastique à inclusions élastiques

De nombreuses études sont dédiées à l'amélioration du transfert de contrainte entre les inclusions et la matrice par enrobage fin des inclusions. L'objectif est de limiter notamment les phénomènes de décohésion observés dans les résines thermodurcissables renforcées de verre. Les démarches expérimentales s'orientent vers l'augmentation des dimensions de l'interphase (Mallarino et al., 2009) ou l'enrobage des inclusions ou fibres par une nuance différente de celle de la matrice (Johnson et al., 2005) ou par un thermoplastique (Olmos et al., 2011; Ozkoc et al., 2004). Une étude paramétrique des effets des propriétés de l'interphase et de ses dimensions a confirmé les tendances trouvées pour des composites époxy à renfort de verre (Li and Weng, 1996) : l'introduction d'une interphase souple a plus d'effet sur le comportement effectif du composite qu'une interphase dure (en considérant le même rapport de propriétés avec celles de la matrice). Ces effets sont amplifiés quand on augmente l'épaisseur de l'interphase. La validation du modèle ainsi que d'autres applications figurent dans l'article joint en annexe (*Dinzart and Sabar (2014*).



Figure II-6 : Influence de la nature de l'interphase



Figure II-7 : Influence de l'épaisseur de l'interphase

#### 4.3 Conclusions et perspectives

Le problème de l'inclusion multi-enrobée dans le cadre de comportement viscoélastique a pu être traité directement dans l'espace temporel selon une technique s'affranchissant des approximations numériques inhérentes aux inversions des solutions symboliques exactes formulées dans l'espace de Laplace. Cette approche combine avec succès les avancées obtenues par la nouvelle formulation intégrale

de l'équation de concentration et l'extension au cas du comportement viscoélastique des opérateurs interfaciaux. L'universalité de la méthode laisse entrevoir des extensions pour des formes ellipsoïdales d'inclusions et pour des comportements anisotropes. Cette approche présente l'avantage de proposer des solutions rapides et élégantes qui ne sont plus tributaires des techniques de calculs engagées pour les transformations de Laplace inverse. La principale difficulté réside dans l'établissement de l'équation intégrale intégrant les termes de fluctuations élastiques et visqueuses et en remplaçant la formulation des termes d'intégration volumique par des expressions exactes et aisées à évaluer. Une extension est envisagée pour décrire le comportement effectif de composites à renforts multiples dans le cadre d'un comportement élasto-viscoplastique. La formulation de l'équation intégrale pour la description de la partie viscoplastique du comportement existe déjà (Coulibaly et Sabar, 2011), il reste à imaginer comment tenir compte de ces non-linéarités dans les équations décrivant les interactions avec l'interphase.

#### Chapitre III : Etude de composites renforcés - analyse de l'endommagement

## 1. Introduction

La formulation de composites à matrice polymère sert de base à beaucoup d'industries de pointe (aéronautique, transport ...) et bénéficie d'un taux de croissance supérieur à tout autre secteur industriel d'élaboration de matériaux. Par le choix de renforts adéquats et par l'utilisation de nouvelles techniques d'élaboration, le composite peut acquérir une meilleure résistance à la chaleur et à la déformation mécanique que le polymère constitutif de la matrice. Cependant la plupart des polymères dérivent des hydrocarbures et le problème du recyclage en fin de vie s'est posé de façon cruciale. Aussi nous nous somme intéressés à l'introduction de matières premières secondaires et au remplacement de fibres synthétiques par des fibres végétales comme renforts dans des matrices polymères thermoplastiques. Deux thèses (*J. Olhagaray* pour le caoutchouc recyclé et *F. Gehring* pour les fibres de chanvre) ont servi de points d'ancrage à ces études de composites innovants.

Le principal problème soulevé par la formulation de ces composites réside tout d'abord dans le choix de la matrice permettant d'accueillir ces charges de nature pour le moins originale et dans la façon de les intégrer sans provoquer de clusters, de porosité et de décohésion à l'interface. Ce premier challenge étant validé, la phase de caractérisation mécanique et éventuellement thermique peut prendre le relais. Et si les premières études ont révélé que ces composites présentaient des défauts inhérents au cahier des charges imposé à la matrice lors de leur formulation (fragilité, endommagement précoce, ...), il restait à étudier les mécanismes d'endommagement spécifiques de ces composites afin de proposer des pistes d'amélioration éventuelles. Mais au-delà de la compréhension physique des phénomènes observés lors des essais expérimentaux, ces composites servent de base de modélisation permettant d'affiner certains modèles dédiés à l'endommagement (par cavitation pour les particules de caoutchouc et par formation de craquelures pour la matrice polymère du composite à fibres de chanvre).

## 2. Application aux composites renforcés par caoutchouc recyclé

## 2.1 Contexte

L'étude de la valorisation de matières premières 'secondaires' s'est concrétisée par la réalisation, suivie de la caractérisation, de composites à matrice polymère thermoplastique renforcés de poudrettes de pneumatiques non recyclables (PUNR). La grande originalité de ce travail (et aussi sa grande difficulté) a été de créer un composite 'ad nihilo' avec des résidus de broyage de poudrettes fournies gracieusement par une société de recyclage de la région (RBSI). Le choix de la matrice s'est arrêté sur un thermoplastique de grande diffusion, de nature semi-cristalline et sans grande sensibilité à l'humidité : le polypropylène. Les semi-cristallins présentent l'avantage d'avoir une résistance thermique plus élevées

que les amorphes. Ce choix a également été influencé par l'utilisation répandue de ce polymère dans l'industrie automobile et par les études disponibles sur ses possibilités de compatibilisation avec des poudrettes de pneumatiques (George et al., 1999, 1995; Nakason et al., 2006). Les fractions volumiques de PUNR ont été choisies (5% à 25% en masse par incrément de 5%) en perspective d'une étude par approche micromécanique des propriétés des mélanges. Le grade de polypropylène retenu devait permettre l'injection d'éprouvettes de traction avec une minimisation des défauts (cluster, porosité, décohésion d'interface ...). Après formulation du compound dosé à différentes fractions de PUNR et de compatibilisant, une analyse par tomographie RX a permis de vérifier l'absence de porosité (jusqu'à 20%) et de conglomérats. Le comportement mécanique des composites réalisés a été étudié par DMA et essais de traction. Un dispositif de traction tomographique RX in-situ a été développé afin d'analyser les mécanismes d'endommagement. Compte tenu des géométries particulièrement complexes des poudrettes obtenues après broyage, la création d'une modélisation par éléments finis des composites s'est imposée pour comparer avec les observations faites lors d'un essai de traction (classique et in-situ RX) et de raffiner l'identification des mécanismes d'endommagement dans les particules de PUNR et dans la matrice thermoplastique.

#### 2.2 Etude expérimentale

#### 2.2.1 Formulation du composite

Le caoutchouc issu de filière de valorisation provient de mélanges d'élastomères, de charges (noirs de carbone, silice ...), d'huiles et également de stabilisants divers qui ont été mis en forme puis vulcanisés ; cette dernière opération induisant une structure réticulée qui ne peut être à nouveau fondue et moulée par augmentation de la température. Cette stabilisation thermique explique principalement les difficultés de réutilisation du caoutchouc réticulé comme matière première dans un processus de fabrication. Le choix de la matrice thermoplastique s'est orientée vers un PolyPropylène (PP) dont l'indice de fluidité à chaud (MFI) élevé (55g/10 min à 230°) permet un enrobage efficace des particules de forme complexe et une injection possible sans apparition de porosités.



Figure III-1 : Analyse tomographique des particules (thèse J. Olhagaray)

L'analyse tomographique aux rayons X met en évidence deux familles de caoutchouc par comptabilisation des pixels. Le choix du compatibilisant s'est orienté vers un copolymère bloc : le PP greffé anhydride maléique (MA) OREVAC CA100. L'étude de l'évolution du MFI en fonction du taux de compatibilisant a permis de fixer celui-ci à 20% de la masse de PUNR intégrée. L'analyse tomographique des éprouvettes a confirmé la bonne distribution des poudrettes (de 5 à 20% de PUNR), l'absence d'agglomérat et de porosités (avec toutefois l'apparition de grosses porosités pour les mélanges à 25% de poudrettes).



Figure III-2 : Faciès de rupture post-mortem d'une éprouvette PP/PUNR 90/10 et analyse tomographique in-situ (*thèse J. Olhagaray*)

ruptur

# 2.2.2 Analyse thermique dynamique

Une série d'essais d'analyse thermique dynamique a été réalisée en balayant le domaine de température de façon à faire apparaître les signatures thermiques caractéristiques du caoutchouc (-40°C) et du polypropylène (20°C pour la transition vitreuse de la phase amorphe). L'essai réalisé sur le caoutchouc a été prélevé sur le flanc d'un pneumatique de véhicule léger supposé être suffisamment représentatif du caoutchouc recyclé pour servir d'élément de comparaison. Le pic du facteur de perte associé au caoutchouc est bien présent dans tous les composites réalisés.



Figure III-3 : Evolution du facteur de perte en fonction de la température à 5Hz (thèse J. Olhagaray)

#### 2.2.3 Analyse expérimentale de l'endommagement

Outre les essais classiques de DMA et de traction à différentes vitesses de déformations, un dispositif de traction in situ a été conçu et réalisé pour visualiser les différentes étapes de l'endommagement (ce dispositif a été élaboré en étroite collaboration avec J-M Hiver de l'Institut Jean Lamour de Nancy). Une analyse fine des images tomographiques pour les différentes fractions volumiques de PUNR testées a permis de déceler un début de cavitation des poudrettes généralement antérieur à la décohésion des interfaces. On a observé que le phénomène de fissuration dans la matrice s'initiait le plus souvent au niveau d'interfaces endommagées. Une bonne corrélation des niveaux de contrainte et déformation nominales a été constatée avec l'essai de traction sur machine *Instron*® à la vitesse de  $10^{-4} s^{-1}$  bien que les conditions d'essais soient différentes puisque le niveau de contrainte était maintenu lors des essais de traction in-situ avec une attente d'une demi-heure avant le tir tomographique pour assurer une reconstruction correcte du volume sans effets liés à la relaxation.

### 2.3 Analyse du phénomène de cavitation des poudrettes

La cavitation est un phénomène d'endommagement classique des élastomères se traduisent par la formation de porosités lors de chargement induisant des contraintes hydrostatiques suffisamment élevées. Ces cavités peuvent apparaître dans des pièces massives ou à l'interface cœur rigide-coquille élastomère dans les polymères renforcés.

### 2.3.1 Analyse de l'endommagement par suivi-tomographique in situ

La cavitation des poudrettes de caoutchouc est le premier mécanisme d'endommagement à se développer pour un contrainte nominale appliquée de l'ordre de 10*MPa* quel que soit le taux de particules. La déformation nominale associée augmente avec la fraction volumique de poudrettes (en accord avec les

observations faites dans la littérature). La limite élastique du polypropylène choisi comme matrice étant de 14*MPa*, le phénomène de cavitation précède le développement d'instabilité plastique de la matrice.

## 2.3.2 Analyse de la cavitation par simulation numérique

La modélisation par éléments finis est basée sur le maillage d'un échantillon à partir d'images tomographiques bidimensionnelles préalablement segmentées. Les surfaces de particules sont alors maillées par des éléments triangulaires. Ainsi, les volumes élémentaires générés sont des tétraèdres. Le comportement de la matrice polypropylène est intégré dans le logiciel de calcul par éléments finis à partir d'une courbe moyenne expérimentale. Le comportement de l'élastomère PUNR est décrit par un modèle hyperélastique de type Mooney-Rivlin. La simulation numérique d'un essai de traction à vitesse constante est réalisée jusqu'à une déformation nominale de 2%. Bien que les résultats de la simulation ne permettent pas de retrouver exactement les niveaux de contraintes observées lors des essais de traction, certaines conclusions demeurent intéressantes à l'issue du dépouillement des résultats. Les particules sont chargées uniquement de façon hydrostatique ce qui est cohérent par rapport aux études classiques menées sur les polymères 'choc'. La cartographie de la déformation équivalente au sens de von Mises permet de retrouver le développement d'instabilités plastiques sous forme de bandes de cisaillement dans la matrice prenant origine à l'équateur des particules (Haward and Owen, 1973; Sue and Yee, 1988; Steenbrink and Van der Giessen, 1999) . On retrouve également la distribution de déformation associé aux incompatibilités de comportement entre les inclusions souples et la matrice rigide : le niveau de déformation est plus important dans les particules à l'équateur qu'au pôle (Goodier, 1933).



Figure III-4 : Cartographies de la déformation équivalente de von Mises à 6% de déformation *(thèse J. Olhagaray)* 

La cartographie des contraintes hydrostatiques ne permet pas de visualiser le niveau atteint dans les particules, par contre une analyse des champs locaux des contraintes aux nœuds associés aux particules permet d'accéder à ce niveau de contrainte hydrostatique. Les champs de contrainte locaux ont été réalisés en sélectionnant cinq particules de taille et de voisinage divers.



Figure III-5 : Contrainte hydrostatique pour 5 particules dans un composite à 3.6% de PUNR, (Volume de 2 et  $3 \approx 0.1 mm^3$ , volume de 1 et  $4 \approx 0.25 mm^3$ , *thèse J. Olhagaray*)

On remarque le niveau de contrainte hydrostatique semble être moins important pour les particules isolées et de volume important (voir particules 1 et 2). La proximité importante avec d'autres particules tend à augmenter le niveau de contrainte hydrostatique. Le niveau de contrainte hydrostatique est comparable avec celui prévu par Fond (Fond et al., 1996, Fond et al., 2002)  $p_h = \frac{1-v_m}{1+v_m} \frac{3\kappa_r}{4G_m+3\kappa_r} Tr(\overline{\sigma})$  pour une inclusion sphérique plongée dans une matrice isotrope élastique en fonction de la contrainte appliquée au VER  $\overline{\sigma}$  ( $v_m = 0.4$  et  $G_m = 571.4MPa$  pour la matrice et  $\kappa_r = 4545MPa$  pour le caoutchouc estimés par analyse des essais de traction). L'effet de l'interaction des particules qui n'est pas pris en compte dans ce modèle semble toutefois jouer un rôle important (plus que la forme complexe des particules). La contrainte hydrostatique critique de cavitation est calculée d'après la formule de Gent et Lindley (Gent and Lindley, 1959) sous l'hypothèse de comportement élastique linéaire des particules :  $p_{hcav} = 3.48MPa$ . Cette pression de cavitation est comparable à celle observée lors des essais de traction in-situ pour lesquels la contrainte moyenne estimée  $\overline{\sigma}_{exp} = 10MPa$  conduit à  $p_{hcav} = 3.7MPa$ .

## 2.3.3 Analyse des critères de croissance de cavités

Les critères de croissance des cavités font appel le plus généralement à des bilans énergétiques portés sur l'énergie élastique stockée dans la particule d'élastomère et l'énergie de création et d'expansion de la surface de vide. Après interprétation du bilan énergétique pour une particule sphérique élastique isotrope plongée dans une matrice élasto-plastique (Géhant et al., 2003), l'énergie disponible à la cavitation s'écrit :

$$U_{cav} = -\underbrace{\Delta U_{e,r}}_{\acute{e}lastique \ particule} - \underbrace{\Delta U_{e,m}}_{\acute{e}lastique \ matrice} - \underbrace{\Delta U_{p,m}}_{plastique \ matrice}$$
(III-1)

La densité d'énergie stockée calculée pour les 5 particules sélectionnées apparaît relativement homogène (exception faite de la particule la plus volumineuse et isolée) et du même ordre de grandeur  $MJ.m^{-3}$ . On constate une faible contribution de la variation de l'énergie plastique de la matrice. La simulation numérique sur deux taux de renfort en poudrettes montre que le niveau d'énergie est le plus faible dans le composite le plus chargé, l'énergie de déformation se répartissant entre les particules, la cavitation se développe plus pour une déformation nominale plus importante et se répartit entre les particules comme observé expérimentalement.

## 2.4 Conclusions et perspectives

Une mesure plus fine des niveaux de contrainte et de déformation lors des essais de traction tomographique in-situ devrait permettre une corrélation plus précise avec l'estimation des volumes et surfaces de porosités créés dans les poudrettes lors de l'endommagement. Il serait également possible de mettre en évidence la distribution de la création de porosité en fonction de la fraction volumique et de la taille des particules. L'étude de l'évolution du volume de porosité pourrait être reliée à l'énergie transmise à l'échantillon. Il serait alors possible de raffiner les critères de cavitation (et de trancher éventuellement entre ceux liés à une déformation et ceux liés à une contrainte). Le logiciel de reconstruction des surfaces maillées est en phase d'amélioration en coopération avec des chercheurs de Cracovie (la segmentation d'images reste cependant un problème complexe que les mécaniciens peinent à résoudre seuls). Il serait alors possible d'associer les observations expérimentales menées lors des essais de traction in-situ à une simulation numérique. La création et l'évolution des porosités dans les particules de PUNR pourraient être reliées aux champs locaux de contrainte et de déformation. L'extension de ces travaux font l'objet d'une collaboration avec Pr S. Wronski de Cracovie (AGH University of Science and Technology).

## 3. Application aux composites renforcés de fibres végétales

## 3.1 Contexte

L'utilisation de matrices thermoplastiques dans les composites est relativement récente mais prometteuse compte tenu de leur potentialité en terme de recyclabilité et de résilience. La mise en forme par injection oriente la nature des renforts vers des fibres dites 'courtes' (les fibres 'longues' impliquant des techniques de formage). Outre les contraintes d'ordre mécanique, la masse volumique du renfort est devenu un critère de sélection important lorsque l'allégement des structures est recherché. Avec leur propriétés spécifiques <sup>1</sup> supérieures à leurs homologues synthétiques (Sobczak et al., 2012), les fibres végétales sont apparues comme une voie d'exploration en adéquation avec les directives encourageant les initiatives de 'développement durable'. Après une phase dédiée à la formulation et leur mise en œuvre par injection, il est apparu que ces nouveaux composites avaient des propriétés mécaniques et thermiques limitant leur domaine d'application à des pièces d'aspect plutôt qu'à des pièces de structure. Le travail de thèse de F. Gehring a été d'établir expérimentalement les origines des faiblesses des composites à renfort naturel et proposer une modélisation des mécanismes d'endommagement constaté. Pour isoler les causes de défaillance mécanique, une étude de la structure par microtomographie RX a été réalisée afin de vérifier la viabilité des échantillons (absence de porosité, de clusters, orientation homogène des fibres). L'endommagement a été investigué pour un mode de sollicitation en traction (monotone et cyclique). Sous cet éclairage, une modélisation de l'endommagement de composites fibreux s'est imposée par une approche numérique par éléments finis.

### 3.2 Etude expérimentale

#### 3.2.1 Analyse de la microstructure du composite à renfort naturel

Le composite à renfort naturel retenu pour notre étude est un polypropylène renforcé par des fibres courtes de chanvre (de 5% à 20% en masse). Le premier objectif était d'utiliser un matériau naturel impliqué dans l'agriculture lorraine. Notre étude s'est effectuée sur des échantillons de nuance 'industrielle'. De ce fait, nous nous sommes affranchis des étapes délicates de formulation (choix du grade du polypropylène, de l'agent de compatibilisation) et de la mise au point du 'compoundage' et de l'injection. La co-extrusion des fibres naturelles suivie de l'injection du compound nécessite un savoirfaire et des infrastructures dédiées pour éviter la destruction des fibres (mécanique ou thermique). La formulation retenue par le fournisseur peut être considérée de première génération avec une matrice très (trop ?) fluide d'indice de fluidité à chaud (MFI) élevé (90g/10 min à 230°) et des fibres courtes de chanvre à l'allure partiellement 'ébouriffée' (Figure III-6), ces deux caractéristiques témoignant d'un désir d'accroître la qualité de l'adhérence entre les composants. L'étude de la microstructure du composite s'est limitée à l'échelle du composite, les moyens mis en œuvre ne permettant pas l'identification et la quantification d'une structure cristalline de type  $\beta$  plus ductile induite par l'adjonction de fibres végétales dans la matrice polypropylène (Sobczak et al., 2012). La reconstruction tridimensionnelle d'un échantillon de dimension  $10 \times 10 \times 4mm^3$  permet tout d'abord d'estimer l'allure générale de la distribution des renforts : la concentration apparente des fibres semble importante, la structure est compliquée par une disparité entre les longueurs et diamètres, de plus les fibres végétales présentent une tortuosité difficile à quantifier en vue de modélisation. Les échantillons même fortement

<sup>&</sup>lt;sup>1</sup> propriétés rapportées à la masse volumique

chargés sont exempts de porosité dans la matrice et les fibres semblent bien adhérer à la matrice (aucune décohésion détectée).



Figure III-6 : Faciès de rupture analysées au MEB (thèse F. Gehring)

Afin de statuer sur l'anisotropie du matériau provoquée par le processus d'injection, les scans tomographiques des échantillons ont été traités afin d'extraire l'orientation spatiale et la distribution des fibres. L'étude de la distribution des centres de gravité n'a détecté aucun agglomérat. Les fibres s'orientent majoritairement de façon isotrope dans le plan d'injection '*x*,*y*' en bon accord avec les études théoriques dédiées à l'injection. Cependant on observe une orientation préférentielle hors plan d'injection selon un angle moyen  $\phi_{moy} = 75^{\circ 2}$  qui est attribuée à une mobilité accrue des fibres de longueur plus courte ( $250\mu m$ ).



Figure III-7 : Fonction de répartition d'orientation  $(\theta, \phi)$  pour le composite à 5% de chanvre (*thèse F. Gehring*)

### 3.2.2 Analyse thermique dynamique

Le rôle renforçant des fibres de chanvre dans le domaine des faibles déformations est confirmé par l'analyse thermique dynamique. Le module de dissipation mis en évidence est de l'ordre de 10% du module de conservation (composantes respectivement associées aux contributions élastiques et visqueuses du comportement).

<sup>&</sup>lt;sup>2</sup> L'orientation des fibres est décrite par les angles d'Euler  $(\theta, \phi)$  défini par rapport à la direction d'écoulement 'x' et à la direction orthogonale au plan d'injection 'z'



Figure III-8 : Influence de la fraction volumique de chanvre (5Hz) (thèse F. Gehring)

### 3.2.3 Essai monotone de traction uniaxiale

Des essais de traction monotone conduits à des vitesses de déformation différentes ont confirmé les vertus 'rigidifiantes' du chanvre sur le composite avec une très bonne adéquation des modules d'Young estimés avec les modules de conservation issus des analyses de DMA. L'effet de la présence de chanvre ne semble pas jouer sur l'allongement à la rupture. Les essais de traction monotone mettent également en évidence un mode de rupture de type quasi-fragile de la matrice polypropylène par amorçage et propagation de fissures multiples dépendant de la vitesse de déformation (confirmé par thermographie IR in-situ Figure III-9).



Figure III-9 : Visualisation des fissures à rupture par thermographie IR à  $10^{-4}s^{-1}$  (**a**) et  $10^{-2}s^{-1}$  (**b**), composite à 20% de chanvre (*thèse F. Gehring*)

## 3.3 Analyse de l'endommagement par simulation numérique

A partir des travaux de référence de Kachanov (1986, 1958) consacrés à la définition d'une variable continue d'endommagement, Lemaître et Chaboche (1988) ont posé les bases de la mécanique continue de l'endommagement appliquée au cas de comportement isotrope dans le cadre de la

thermodynamique des phénomènes irréversibles. La définition d'une (ou plusieurs) variables(s) représentant l'état de détérioration d'un élément de matière est délicate dans la mesure où les signes d'endommagement sont parfois difficiles à détecter. Parmi les diverses définitions possibles, on retrouve les approches de type phénoménologique et les approches micromécaniques. La modification détectée par des mesures mécaniques phénoménologiques des caractéristiques d'élasticité, de plasticité ou de viscoplasticité est interprétée comme variable d'endommagement. Le comportement du matériau endommagé est traduit par les lois de comportement du matériau vierge où la contrainte usuelle est remplacée par la contrainte effective. Afin de décrire des effets plus complexes d'anisotropie du matériau endommagé ou de phénomène d'ouverture/fermeture de fissures, des tenseurs décrivant la densité de fissures (Sidoroff, 1981; Kanatani, 1984; Cauvin and Testa; 1999) ont été mis en place en fonction de la distribution statistique des fissures et de leurs caractéristiques.

#### 3.3.1 Reconstruction de la microstructure

Le volume élémentaire représentatif utilisé dans le code par éléments finis est construit en accord avec les observations faites en microtomographie RX : distribution aléatoire des centres de gravité des fibres et orientation préférentielle hors plan d'injection selon un angle moyen  $\phi_{moy} = 75^{\circ}$  et écart type de  $28.64^{\circ}$ . Les fractions volumiques de chanvre sont calculées pour les nuances de 5% et 10% en masse en considérant une masse volumique moyenne  $\rho_{fibre} = 1530 kg.m^{-3}$  (soit 3.02% et 6.17% respectivement). Les fibres sont modélisées par des cylindres de diamètre moyen  $d_{moyen} = 30\mu m$  sous l'hypothèse que leurs extrémités sont plutôt plates qu'arrondies. La tortuosité des fibres a été négligée. L'algorithme de répartition des fibres place les cylindres par méthode additive en supprimant les intersections et en séparant les fibres coupées par un bord de part et d'autre du volume (Kari et al., 2007).



Figure III-10 : Génération du maillage (thèse F. Gehring)

## 3.3.2 Modélisation de l'endommagement progressif de la matrice

Les observations expérimentales ont montré un endommagement prépondérant de la matrice par rapport aux phénomènes de décohésion et de déchaussement des fibres (analyse MEB in situ). Dans une première approche, la cinétique d'endommagement a été reproduite par génération de fissures simulées par des défauts type 'penny-shape' (de rapport d'aspect  $\varepsilon$ ) sans interactions dans une matrice considérée élastique linéaire. La détermination du comportement effectif de la matrice affaiblie est doublement singulier : il repose sur deux passages à la limite des problèmes d'homogénéisation classiques (géométrie et comportement de l'inclusion). Une première approche a consisté à implémenter une loi de comportement de la matrice affaiblie par des micro-fissures en s'inspirant des travaux initiés par Pichler et Dormieux (2007) pour l'étude de la fissuration de milieu élastique. Dans cette première approche, une seule famille de défauts de plan orthogonal à l'axe de traction a été prise en considération pour représenter la génération de fissure observée expérimentalement (Figure III-9). L'objectif principal était initialement d'interpréter l'effet de la fraction volumique de fibres et de leur rapport de forme (longueur sur diamètre) sur l'évolution de l'endommagement du composite. Les paramètres permettant la description du polypropylène affaibli ont été identifiés sur des essais de traction dans un domaine volontairement limité aux faibles déformations. Les premières tentatives numériques ont confirmé l'amélioration de la résistance mécanique des composites à fibres longues. Cependant, l'augmentation du nombre d'extrémités de fibres avec la diminution de la longueur induit numériquement une diminution du nombre de site de concentrations de contrainte et d'amorçage de l'endommagement.



Figure III-11 : Simulation numérique de l'endommagement (thèse, F. Gehring)



Figure III-12 : Specimen endommagé (thèse, F. Gehring)

Les calculs reflètent simplement une augmentation de la résistance mécanique en corrélation avec la diminution du niveau de contrainte moyenné sur le VER. Outre ses problèmes liés à la modélisation des fibres du composite, l'utilisation du modèle microfissuré purement élastique à une matrice polymère viscoélastique limite également la pertinence du modèle.

#### **3.4 Conclusions et perspectives.**

Le couplage viscoélastique du comportement est un aspect des plus ardus à traiter lors de la recherche du comportement effectif des composites. L'étude du comportement effectif de milieux viscoélastiques micro-fissurés relève de la même classe de difficulté. Des approches récentes ont proposé d'inclure au potentiel de dissipation la contribution visqueuse du comportement (Nguyen et al., 2009, 2013) afin de mettre en évidence l'évolution de l'endommagement dans un milieu fragile viscoélastique microfissuré. Cette perspective constitue un axe de recherche à part entière, les méthodes existantes présentent les inconvénients des premières approches destinées à l'homogénéisation des milieux viscoélastiques : en traitant de façon séparée la contribution visqueuse et en lui associant un formalisme dédié à la déformation plastique, le problème complexe du couplage viscoélastique dans les étapes transitoires de développement est volontairement occulté. Nous avons procédé à identification plus pertinente du comportement de la matrice polymère lors du master de Mr Kounoudji. La modélisation du comportement consiste en une extension de la loi de comportement viscoélastique linéaire par l'introduction d'une dépendance non linéaire de la réponse à l'histoire du chargement (Schapery, 1964a). Cette loi repose sur l'introduction de fonctions de non linéairié  $g_0, g_1, g_2$  et *a*, toutes dépendantes de la contribution de la comportement viscoélastique linéaire de la contribution de la contribution de comportement de la contribution de la comportement (Schapery, 1964a).

contrainte  $\sigma = g_0 l_0 \sigma + g_1 \int_0^t \Delta l(\psi - \psi') \frac{dg_2 \sigma}{d\tau} d\tau$  où le temps réduit est défini par  $\psi(t) = \int_0^t \frac{dt'}{a_\sigma(\sigma(t'))}$ .

La poursuite de ces travaux devrait être réalisée avec Mr Gehring nommé maître de conférences à l'IUT d'Alençon.

# Chapitre IV : Etude du couplage magnéto-électro-élastique :application aux matériaux adaptatifs

## 1. Introduction

Les matériaux adaptatifs constituent une classe de matériaux dont les propriétés physiques couplant des phénomènes mécaniques, électriques et magnétiques permettent la transformation d'une forme d'énergie en une autre.



Figure IV-1 : Description des phénomènes de couplage (Nguyen, 2012)

Le couplage entre un signal électrique, magnétique et/ou mécanique se fait rarement dans un matériau unique d'où l'intérêt de réaliser des composites échangeant entre eux plusieurs formes d'énergie. La structure du composite peut alors être optimisée pour favoriser les différentes formes de couplage selon les directions de polarisation imposées. Les matériaux adaptatifs monolithiques présentent de nombreux inconvénients qui viennent s'ajouter à leur synthèse difficile : fragilité, coût, ... . Ainsi les matériaux piézorésistifs sont remplacés avantageusement par des composites intégrant la fonction piézoélectrique à une matrice polymère permettant ainsi de mettre à profit la résistance et la souplesse de ce matériau. Beckert et al. (2001) ont synthétisé un composite hybride comportant un noyau cylindrique de verre enrobé de matériau piézoélectrique (PZT) intégrés dans une matrice de résine époxy. Dans la même optique, il a été montré que les propriétés électro-élastiques étaient améliorées par introduction de poudre de verre dans la céramique PZT (Torah et al., 2004; Wang et al., 2001). L'amélioration du couplage magnéto-électrique (ME) est empreinte de la même démarche : l'augmentation du transfert de la déformation élastique à travers les enrobages du cœur à la matrice est à l'origine de phénomènes favorisant le couplage. Ainsi, de nouvelles fibres hybrides constituées d'un noyau entouré d'un matériau piézoélectrique ont vu le jour. Xie et al. (2008) ont synthétisé des nanofibres multiferroïques CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> -Pb(Zr<sub>0.52</sub>Ti<sub>0.4</sub>)O<sub>3</sub> par 'electrospinning' et ont obtenu des propriétés ferroélectrique et ferromagnétique

supérieures aux composites standard. La prédiction du comportement effectif des composites électroélastiques et magnéto-électro-élastiques en fonction des propriétés des composants et de leur microstructure est devenu une étape indispensable dans la conception des matériaux adaptatifs qui permet une optimisation des propriétés de couplage mais aussi des propriétés mécaniques de résistance. Le principal objectif consiste à modéliser les interactions induites par l'introduction d'une phase supplémentaire dans la création de composites comportant un cœur, un enrobage et une matrice (le choix d'organisation de la structure à partir des matériaux développant les couplages restant à établir en fonction des propriétés effectives recherchées).

## 2. Contexte

La présence d'une interphase peut réduire les concentrations de contrainte et de chaleur le long de l'interface et contribuer à une meilleure résistance du composite (Suresh, 2001). L'estimation des propriétés effectives du composite piézoélectrique est compliquée par le couplage des propriétés mécaniques, électriques et magnétiques. La démarche générale peut être simplifiée en considérant un problème plan associé à une géométrique cylindrique des inclusions (à trace circulaire ou ellipsoïdale) et dans le cadre d'une polarisation anti-plan. La résolution exacte du problème devient alors possible par introduction de fonctions complexes. Cette méthode s'applique avec succès au cas de couplage électroélastique (Jiang et al., 2001; Sudak, 2003) et Shen et al. (2005) dans le cas d'enrobages concentriques multiples. Tong et al. (2008) ont proposé une extension de cette méthode au cas du couplage thermomagnéto-électro-élastique en introduisant un champ de déformation propre (de type 'eigenstrain'). Toujours dans le cadre de sollicitations planes, Kuo (2011) et Kuo and Pan (2011) ont généralisé un développement classique de Rayleigh afin d'analyser les propriétés effectives de composites. Parmi les nombreuses méthodes permettant l'analyse des couplages électro-élastique et magnéto-élastique, on retrouve les approches numériques par éléments finis dédiées aux structures périodiques (lamellaire ou fibreux : Lee et al., 2005; Liu et al., 2003). Le concept de structure périodique a été amélioré par Tang and Yu (2008) en utilisant une approche variationnelle. La résolution du problème des composites à inclusions enrobées dans le cas de comportements électro-élastique et magnéto-électro-élastique par des approches à champs moyens est suffisamment rare pour être signalée : Li (2000) par extension de la méthode de la double inclusion proposé par Hori and Nemat-Nasser (1993). Le principal inconvénient de cette méthode est de reposer sur une hypothèse d'homogénéité des champs magnéto-électro-élastiques dans chacune des phases (voir chapitre V pour discussion dans le cas élastique). Nous avons abordé l'étude de l'influence de l'interphase en généralisant le concept d'opérateurs interfaciaux dans le cadre de comportement à couplages électro-élastique ou magnéto-électro-élastique.

### 3. Approche micromécanique du comportement effectif de matériaux adaptatifs

#### 3.1 Loi de comportement des matériaux adaptatifs

Afin de mieux appréhender les analyses conduites sur l'homogénéisation du comportement de matériaux présentant des couplages électro-élastique ou magnéto-électro-élastique, une synthèse rapide des lois de comportement utilisées est proposée pour les matériaux piézoélectriques et magnétostrictifs.

## 3.1.1 Matériaux piezoélectriques

Les équations d'état permettent d'appréhender quantitativement les phénomènes piézoélectriques (déformation, apparition de champ électrique...) :

$$\begin{cases} \sigma = C\varepsilon - eE\\ D = e\varepsilon + \kappa E \end{cases}$$
(IV-1)

où  $\sigma$  et  $\varepsilon$  sont les tenseurs de contrainte et déformation avec *C* le tenseur élastique généralement orthotrope. Les déplacements et champs électriques sont désignés par *D* et *E*. Le couplage électromécanique *e* est représenté par un tenseur du  $3^{ième}$  ordre dont la notation est simplifiée par la convention de Nye (1957). Les expériences font très souvent appel à la constante  $d_{33}$  issue du tenseur  $d_{ijk}$  lié à  $e_{ijk}$  par  $d_{ijk} = C_{ijmn}^{-1} e_{mnk}$ . Les considérations de symétrie du milieu cristallin permettent de réduire le nombre de coefficients non nuls des tenseurs  $d_{ijk}$  et  $e_{ijk}$ . Les permittivités électriques sont représentées par le tenseur du  $2^{ième}$  ordre  $\kappa$ .

#### 3.1.2 Matériaux magnétostrictifs

Les équations d'état sont décrites sous la forme :

$$\begin{cases} \sigma = C\varepsilon - e \ E - qH \\ D = e\varepsilon + \kappa E + \alpha H \\ B = q\varepsilon + \alpha E + \eta H \end{cases}$$
(IV-2)

Les déplacements et champs magnétiques sont désignés par *B* et *H*. Le couplage magnétomécanique *q* est représenté par un tenseur du  $3^{ième}$  ordre. Les permittivités électriques sont représentées par le tenseur du  $2^{ième}$  ordre  $\eta$ . Le couplage magnéto-électrique est décrit par le tenseur du  $2^{ième}$  ordre  $\alpha$ .

#### 3.2 Formulation du problème

Le composite est modélisé par une inclusion de volume  $V_l$  entouré d'un enrobage fin de volume  $V_c$  intégrés dans une matrice. Pour des raisons de simplification de l'approche micromécanique, les équations d'état sont présentées en utilisant la notation de Barnett and Lothe (1975) permettant

l'introduction d'un module L (IV-5) liant champs de déplacement U, de déformation Z et de contrainte  $\Sigma$  (IV-4) par une équation d'état simplifiée (Alshits et al., 1992):

$$\Sigma_{iJ} = L_{iJMn} Z_{Mn} \tag{IV-3}$$

avec

$$U_{M} = \begin{cases} u_{m} \\ \Phi \\ \zeta \end{cases}, \quad Z_{Mn} = \begin{cases} \varepsilon_{mn} \\ -E_{n} \\ -H_{n} \end{cases}, \quad \Sigma_{nM} = \begin{cases} \sigma_{nm} & M = 1, 2, 3 \\ D_{n} & \text{et} & M = 4 \\ B_{n} & M = 5 \end{cases}$$
(IV-4)

Le module s'exprime sous la forme générique :

$$L_{iJMn} = \begin{bmatrix} C_{ijmn} & e_{ijn} & q_{ijn} \\ e_{imn} & -\kappa_{in} & -\alpha_{in} \\ q_{imn} & -\alpha_{in} & -\eta_{in} \end{bmatrix} \text{ avec } \begin{bmatrix} J, M = 1, 2, 3 & J = 1, 2, 3 & M = 4 & J = 1, 2, 3 & M = 5 \\ M = 1, 2, 3 & J = 4 & J = 4 & M = 4 & J = 4 & M = 5 \\ M = 1, 2, 3 & J = 4 & J = 5 & M = 4 & J = 5 & M = 5 \end{bmatrix}$$
(IV-5)

pour les indices (J,M) définis pour les positions identiques de la matrice *L*. Le cas des matériaux piézoélectriques correspond aux composantes des champs magnétiques nulles  $(\zeta, H_n, B_n)$  et des propriétés magnétoélectrique  $(q, \alpha, \eta)$ .

Les équations d'équilibre se traduisent sous la forme simplifiée :

$$\Sigma_{iJ} = (L_{iJMn}U_{M,n})_{,i} = 0 \tag{IV-6}$$

## 3.3 Equation intégrale magnéto-électro-élastique

Le problème se résume à rechercher les champs de magnéto-électro-élastiques U, Z et  $\Sigma$  en un point arbitraire r dans chaque phase quand le composite est sollicité uniformément par le champ de déplacement  $U_M^0 = Z_{Mn}^0 x_n$ . En utilisant la technique des fonctions de Green  $G_{JK}(r)$ , l'équation différentielle est transformée en une équation intégrale liant les champs de déplacement  $Z_{Kl}$  au tenseur  $Z_{Kl}^0$ .

$$Z_{Kl}(r) = Z_{Kl}^{0} - \int_{V} \Gamma_{iJKl}(r - r') \delta L_{iJMn}(r') Z_{Mn}(r') dV'$$
(IV-7)

Il apparait le tenseur modifié de Green  $\Gamma(r-r')$  au sens magnéto-électro-élastique. Ce tenseur présente des difficultés de calculs inhérentes à la présence de tenseur d'ordres multiples (1 tenseur d'ordre 4, 2 tenseurs d'ordre 3 et 3 tenseurs d'ordre 2).

Le comportement local du matériau L(r) est séparé en une partie uniforme associée au milieu homogène infini et à une partie fluctuante qui sera décomposée en deux parties correspondant à l'inclusion et à l'enrobage :

$$L(r) = L^{0} + \delta L(r) \text{ avec } \delta L(r) = \Delta L^{I} \theta^{I}(r) + \Delta L^{c} \theta^{c}(r)$$
(IV-8)  
où  $\Delta L^{I} = L^{I} - L^{0} \text{ et } \Delta L^{c} = L^{c} - L^{0}.$ 

L'équation intégrale devient alors :

$$Z_{Kl}(r) = Z_{Kl}^{0} - \int_{V_{l}} \Gamma_{iJKl}(r-r') \Delta L_{iJMn}^{I}(r') Z_{Mn}(r') dV' - \int_{V_{c}} \Gamma_{iJKl}(r-r') \Delta L_{iJMn}^{c}(r') Z_{Mn}(r') dV'$$
(IV-9)

Le comportement L(r) est considéré uniforme par morceaux, permettant ainsi de considérer des champs de déformation Z moyens dans chaque phase. En utilisant les tenseurs d'Eshelby étendus au cas magnéto-électro-élastique proposés par Li and Dunn (1998), on obtient une relation liant les champs moyennés dans l'inclusion enrobée  $\overline{Z}^2$  aux champs dans l'inclusion  $\overline{Z}^I$  et dans l'enrobage  $\overline{Z}^c$ . Les tenseurs de polarisation ont été calculés dans le cas de comportement électro-élastique et comparés aux résultats de la littérature (Dunn and Taya, 1993; Wang, 1992). En exprimant  $\overline{Z}^2 = \frac{V_I}{V_2}\overline{Z}^I + \frac{V_c}{V_2}\overline{Z}^c$ , on

obtient une relation simple liant les deux champs  $\overline{Z}^{I}$  et  $\overline{Z}^{c}$ :

$$\frac{V_I}{V_2} \left( I_{KlMn} + T_{iJKl}^2 \left( L^0 \right) \Delta L_{iJMn}^I \right) \overline{Z}_{Mn}^I + \frac{V_c}{V_2} \left( I_{KlMn} + T_{iJKl}^2 \left( L^0 \right) \Delta L_{iJMn}^c \right) \overline{Z}_{Mn}^c = Z_{Kl}^0$$
(IV-10)

La séparation des champs inconnus  $\overline{Z}^{I}$  et  $\overline{Z}^{c}$  est obtenue par les concepts d'opérateurs interfaciaux étendus au cas du comportement magnéto-électro-élastique ou piézoélectrique.

## 3.4 Estimation numérique des tenseurs de polarisation

La principale difficulté réside dans l'estimation des tenseurs de polarisation (tenseurs 'T') dont l'extension de la définition classique dans le cas élastique au cas magnéto-électro-élastique est due à Li et Dunn (1998). Pour des raisons de simplification, seules les grandes lignes de la démarche sont proposées pour le comportement magnéto-électro-élastique.

Le tenseur de Green magnéto-électro-élastique satisfait l'équation :

$$L_{iJMn}G_{ML,in}(\mathbf{x}) + \delta_{JL}\delta(\mathbf{x}) = 0 \tag{IV-11}$$

où  $\delta_{JL}$  est une généralisation à une forme matricielle comportant 9 tenseurs de type Kroneker. L'interprétation des différentes fonctions du tenseur de Green dépend également de la position considérée dans la matrice constituée de 9 tenseurs (relatifs aux tenseurs décrits en (IV-6)). La transformée de Fourier est appliquée à l'équation (IV-19) pour donner :

$$L^0_{iJMn}G_{ML}(\boldsymbol{w})w_jw_l = \delta_{JL}$$
(IV-12)

Le vecteur  $\boldsymbol{w}$  est décrit par le changement de coordonnées sphériques  $w_i = \omega \xi_i$  avec  $\xi_1 = \sin \theta \cos \varphi$ ,  $\xi_2 = \sin \theta \sin \varphi$  et  $\xi_3 = \cos \theta$  et  $\omega \in [0, +\infty]$ ,  $\theta \in [0, \pi]$  et  $\varphi \in [0, 2\pi]$ . L'équation (IV-11) devient alors  $\omega^2 \boldsymbol{G}_{IM}(\boldsymbol{w}) = M_{IM}^{-1}$ (IV-13)

où **G** est la transformée de Fourier de G selon  $G_{IM}(w) = \int G_{IM}(x)e^{-iw \cdot x} dx$ . On désigne par '**M**' la matrice comportant 9 tenseurs décrite par :

$$M_{IM} = \begin{bmatrix} C_{ijmn}^{0}\xi_{j}\xi_{n} & e_{ijn}^{0}\xi_{j}\xi_{n} & q_{ijn}^{0}\xi_{j}\xi_{n} \\ e_{imn}^{0}\xi_{i}\xi_{n} & -\kappa_{in}^{0}\xi_{i}\xi_{n} & -\alpha_{in}^{0}\xi_{i}\xi_{n} \\ q_{imn}^{0}\xi_{i}\xi_{n} & -\alpha_{in}^{0}\xi_{i}\xi_{n} & -\eta_{in}^{0}\xi_{i}\xi_{n} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} C^{\xi\xi}_{im} & e^{\xi\xi}_{i} & q^{\xi\xi}_{i} \\ e^{\xi\xi}_{m} & -\kappa^{\xi\xi} & -\alpha^{\xi\xi}_{i} \\ q^{\xi\xi}_{m} & -\kappa^{\xi\xi} & -\eta^{\xi\xi}_{i} \end{bmatrix}$$
(IV-14)

Les tenseurs issus de '*M*' sont tous symétriques. Les tenseurs de polarisation '*T*' s'obtiennent par des intégrations de surface prises sur des ellipsoïdes transformées en éléments de sphères (Mura, 1987). On écrit alors l'inverse de la matrice '*M*' en fonction du déterminant du second ordre *D* de la matrice '*M*' et de la matrice des cofacteurs '*N*' de '*M*' (en considérant  $\alpha^{\xi\xi} = 0$  pour le calcul de tenseur '*T*' pour une phase ne présentant pas de couplage magnéto-électrique puisqu'elle est supposée provenir d'interactions entre deux phases) :

$$N_{im} = \begin{bmatrix} \kappa^{\xi\xi} \eta^{\xi\xi} & e^{\xi\xi} i \eta^{\xi\xi} & \kappa^{\xi\xi} q^{\xi\xi} i \\ e^{\xi\xi} i \mu^{\xi\xi} & C^{\xi\xi} i m \eta^{\xi\xi} - q^{\xi\xi} i q^{\xi\xi} m & q^{\xi\xi} i e^{\xi\xi} m \\ \kappa^{\xi\xi} q^{\xi\xi} i & q^{\xi\xi} i e^{\xi\xi} m & C^{\xi\xi} i m \kappa^{\xi\xi} - e^{\xi\xi} i e^{\xi\xi} m \end{bmatrix}$$
(IV-15)  
$$D_{im} = \kappa^{\xi\xi} (q^{\xi\xi} i q^{\xi\xi} m) + \eta^{\xi\xi} e^{\xi\xi} i e^{\xi\xi} m + \kappa^{\xi\xi} \eta^{\xi\xi} C^{\xi\xi} i m$$

Chacun des 9 tenseurs 'T' de polarisation est obtenu en effectuant les calculs d'intégrales :

$$T_{iJMn} = \frac{a_1 a_2 a_3}{4\pi} \int_{S(\xi)} \xi_n \xi_j D_{ip}^{-1} N_{qr}(\xi) \left( a_1 \xi_1^2 + a_2 \xi_2^2 + a_3 \xi_3^2 \right)^{-3/2} dS(\xi)$$
(IV-16)

$$T_{iJMn} = \begin{bmatrix} T^{C}_{ijmn} & T^{e}_{ijn} & T^{q}_{ijn} \\ T^{e}_{imn} & -T^{\kappa}_{in} & -T^{\alpha}_{in} \\ T^{q}_{imn} & -T^{\alpha}_{in} & -T^{\eta}_{in} \end{bmatrix} \text{ avec } \begin{bmatrix} J, M = 1, 2, 3 & J = 1, 2, 3 & M = 4 & J = 1, 2, 3 & M = 5 \\ M = 1, 2, 3 & J = 4 & J = 4 & M = 4 \\ M = 1, 2, 3 & J = 4 & J = 5 & M = 4 \end{bmatrix}$$
(IV-17)

Lorsque l'axe principal de polarisation est orienté par rapport à l'axe principal de l'ellipsoïde, il faut alors prendre en compte le changement d'orientation pour le calcul de chaque tenseur de polarisation. On note alors la matrice de passage P définie à l'aide des angles d'Euler  $(\theta, \psi, \phi)$  qui permettra la transformation des tenseurs d'ordre 2, 3 et 4 à partir des produits tensoriels :

$$C_{ijkl}(\theta,\psi,\phi) = P_{im}P_{jn}P_{ko}P_{lp}C_{mnop}$$

$$e_{ijk}(\theta,\psi,\phi) = P_{im}P_{jn}P_{ko}e_{mno}$$

$$a_{ij}(\theta,\psi,\phi) = P_{im}P_{jn}Pa_{mn}$$
(IV-18)

L'étude de l'influence de l'orientation de l'axe principal de polarisation a été conduite pour des inclusions ellipsoïdales alignées. L'application aux composites réels nécessite l'identification d'une fonction décrivant la distribution d'orientation des particules par une analyse similaire à celle conduite sur composites à renforts végétaux traités dans le chapitre III.

## 3.5 Opérateurs interfaciaux étendus au comportement magnéto-électro-élastique

Si l'épaisseur de l'enrobage est faible, on peut considérer que les champs magnéto-électroélastiques sont uniformes dans l'enrobage et dans l'inclusion et peuvent être reliés à partir d'une formulation simplifiée des équations de champs conduisant aux opérateurs interfaciaux :

$$\overline{Z}_{Mn}^{c} = \overline{Z}_{Mn}^{I} + T^{c}{}_{IJMn}\left(L^{c}\right) \Delta L^{Ic}{}_{iJRs}\overline{Z}_{Rs}^{I} \text{ avec } T^{c}{}_{IJMn}\left(L^{c}\right) = \frac{1}{V_{c}} \int_{V_{c}} P^{c}{}_{iJMn}\left(L^{c}, N\right) dV$$
(IV-19)

avec

$$T^{c}_{IJMn}(L^{c}) = \frac{1}{V_{c}} \int_{V_{c}} P^{c}_{iJMn}(L^{c}, N) dV = T^{I}_{iJKl}(L^{c}) - \frac{V_{I}}{V_{c}} \left(T^{2}_{iJKl}(L^{c}) - T^{I}_{iJKl}(L^{c})\right)$$
(IV-20)

Dans le cadre d'inclusions homothétiques, on peut considérer que  $T^{I} = T^{2}$  donc  $T^{c} = T^{I}$ .

#### 4. Modélisation du comportement de composites piezoélectriques

## 4.1 Contexte

De nouveaux composites adaptatifs ont vu le jour intégrant un cœur en verre finement enrobé de matériau piézoélectrique et intégrés dans une matrice de résine thermodurcissable (Beckert et al., 2001). Ces nouveaux matériaux présentent des propriétés électromécaniques améliorées par rapport aux composites biphasiques classiques (Fox et al., 1997; Park et al., 1999; Shiah et al., 2006) avec une économie substantielle effectuée sur les matériaux piézoélectriques. L'étude des propriétés de l'interphase revêt alors un enjeu supplémentaire par rapport à l'approche classique dédiée à la modélisation des défauts et endommagements de l'interface (Sevostianov and Kachanov, 2007). L'amélioration des performances des capteurs et actionneurs piézoélectriques peut être étudiée en fonction de propriétés contrôlables telles l'épaisseur, la fraction volumique et les propriétés électro-élastiques des composants. La formulation des propriétés effectives du composite piézoélectrique est compliquée par le couplage des propriétés mécaniques des solides au problème des inclusions enrobées en prenant en compte les phénomènes de couplage électro-élastique caractéristique des composites piézoélectriques.

### 4.2 Résolution du problème de l'inclusion piézo-électrique enrobée

#### 4.2.1 Comparaison des tenseurs de localisation avec les approches bidimensionnelles

Les tenseurs de localisation électro-élastiques ont été comparés avec succès avec les expressions analytiques établies par Jiang et al. (2001) dans le cas d'inclusions cylindriques de trace circulaire et soumises à un cisaillement anti-plan et une polarisation plane. Dans le cas de cylindres de trace ellipsoïdales dans le plan, une bonne corrélation du modèle développé est obtenue avec les résultats fournis par Sudak (2003) pour différents rapports de couplage électromécanique et taille d'inclusions  $\rho_l$ .



Figure IV-2 : Influence de l'interphase sur le champ électrique dans l'inclusion (Dinzart et Sabar, 2009).

### 4.2.2 Application au cas d'un matériau piézoélectrique enrobé

Le comportement homogénéisé du matériau composite est obtenu à travers un schéma de Mori-Tanaka. Les applications portent sur l'optimisation des propriétés des matériaux hybrides à 3 phases verre/PZT/epoxy tels que ceux élaborés par Beckert et al. (2001). Les effets liés à la forme de l'inclusion (facteur de forme c/a) sont proposés sur la figure(IV-5) en comparaison avec la méthode de la double inclusion.



Figure IV-3 : Influence du facteur de forme (Dinzart et Sabar, 2009).

L'amélioration potentielle des propriétés du matériau hybride par rapport à un composite PZT /époxy sont proposés sur la Figure IV-4 pour une fraction volumique identique de PZT (*Dinzart and Sabar*, 2009).



Figure IV-4 : Influence de la fraction volumique (Dinzart et Sabar, 2009).

#### 5. Modélisation du couplage magnétoélectrique dans les composites à inclusions enrobées

Le couplage magnéto-électrique apparaît rarement dans les cristaux naturels monolithiques (Alshits et al., 1992) mais peut être considérablement augmenté dans des composites (Harshe et al., 1993) mettant à profit les propriétés croisées ou en produit absentes des phases isolées (Bichurin et al., 2002; Nan et al., 2008). L'introduction d'une interphase dans ces composites est destinée à diminuer certains phénomènes de décohésion et de proposer des pistes d'amélioration du couplage magnéto-électrique selon le choix des matériaux, la forme géométrique et la fraction volumique des inclusions et de l'enrobage.

## 5.1 Application aux composites 1-3

En dépit de leur synthèse plus compliquée, les composites 1-3 (à renfort fibreux) sont préférés aux composites 2-2 (lamellaires) pour leur plus grand couplage ME à fraction volumique équivalente de renforts à magnétostriction géante (plus onéreux). Les composites sont soumis à des sollicitations mécaniques dans le plan perpendiculaire aux fibres (*'in-plane'*) et à des chargements électriques et magnétiques longitudinaux. Tong et al. (2008) ont étudié le comportement des composites 1-3 en introduisant des fonctions complexes multi-champs. Plus récemment, Kuo (2011) et Kuo et Pan, (2011) ont généralisé une approche classique des développements de Rayleigh aux potentiels élastique, électrique et magnétique pour accéder aux propriétés effectives du composite fibreux à 3 phases.

La formulation des lois de comportement  $\Sigma = LZ$  se voit fortement simplifiée si on considère une géométrie '1-3' dans le plan ' $x_1$ - $x_2$ ' soumise à un chargement 'anti-plane'  $\left((\varepsilon_{13}^0, \varepsilon_{23}^0), (E_1^0, H_1^0), (E_2^0, H_2^0)\right)$ .

# 5.1.1 Etude des tenseurs de localisation –comparaison avec la méthode des fonctions complexes

La formulation du problème des inclusions magnéto-électro-élastique enrobées est simplifiée par introduction de champs complexes  $(u_3, \varphi, \phi)$  définis par :

$$2\varepsilon_{13} = u_{3,1}, \quad E_1 = -\varphi_{,1}, \quad H_1 = -\phi_{,1}$$
  

$$2\varepsilon_{23} = u_{3,2}, \quad E_2 = -\varphi_{,2}, \quad H_2 = -\phi_{,2}$$
  
(IV-21)

Les équations d'équilibre se traduisent par des opérateurs Laplacien des champs identiquement nuls:  $\nabla^2 u_3 = 0$ ,  $\nabla^2 \varphi = 0$ ,  $\nabla^2 \phi = 0$ . Les champs sont alors développés sous la forme de série de Laurent dont les termes satisfont les conditions de continuité aux interfaces. Les champs de déformation, électrique et magnétique à travers les interfaces sont liés par des équations de localisation identiques à celles obtenues par l'approche des opérateurs interfaciaux :

$$v^{I} = 4 \left[ \left( l^{c} + l^{0} \right) : l^{c^{-1}} : \left( l^{I} + l^{c} \right) + f : \left( l^{c} - l^{0} \right) : l^{c^{-1}} : \left( l^{I} - l^{c} \right) \right]^{-1} : l^{0} \cdot v^{0}$$
(IV-22)

$$v^{c} = \frac{l^{c^{-1}}}{2} : (l^{c} + l^{l}) \cdot v^{l}$$
(IV-23)

avec

$$v^{*} = \begin{bmatrix} A_{1}^{*} \\ B_{1}^{*} \\ C_{1}^{*} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -2\overline{\varepsilon}_{23}^{*} \\ \overline{E}_{2}^{*} \\ \overline{H}_{2}^{*} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} -(\overline{\sigma}_{23}^{*} + e_{15}^{*}\overline{E}_{2}^{*} + q_{15}^{*}\overline{H}_{2}^{*})/C_{44}^{*} \\ \overline{E}_{2}^{*} \\ \overline{H}_{2}^{*} \end{bmatrix} \text{ et } l^{*} = \begin{bmatrix} C_{44}^{*} & e_{15}^{*} & q_{15}^{*} \\ e_{15}^{*} & -\kappa_{11}^{*} & -\alpha_{11}^{*} \\ q_{15}^{*} & -\alpha_{11}^{*} & -\eta_{11}^{*} \end{bmatrix} (*=(I,c,0))$$
(IV-24)

Ce résultat est une extension au cas magnéto-électro-élastique du résultat obtenu par Tong et al. (2008) dans le cas électro-élastique.

# 5.1.2 Application à l'étude du couplage ME de composites magnéto-piézoélectriques enrobés

Le comportement homogénéisé du matériau composite est obtenu à travers un schéma de Mori-Tanaka. Les applications portent sur l'optimisation des propriétés des matériaux hybrides à 3 phases comportant un matériau piézoélectrique (BaTiO<sub>3</sub> noté 'B') et deux matériaux magnétostrictif (CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> et le terfenol D notés 'C' et 'T'). Le coefficient de voltage défini par  $\alpha_{II}^{eff} / \kappa_{II}^{eff}$  obtenus par notre approche est en accord avec les résultats obtenus par Kuo et Pan (2011) lors de l'étude des influences combinées de la fraction volumique d'inclusion  $f^{I}$  et de l'épaisseur relative de l'enrobage  $\Delta a/a$ .



Figure IV-5 : Coefficient de voltage effectif  $\alpha_{11}^{eff}$  /  $\kappa_{11}^{eff}$  du composite BTC(*Dinzart and Sabar, 2012*).



Figure IV-6 : Coefficient de voltage effectif  $\alpha_{11}^{eff}$  /  $\kappa_{11}^{eff}$  du composite TBC (*Dinzart and Sabar, 2012*).

L'étude paramétrique conclut à une optimisation du couplage ME quand on procède à une alternance entre matériau piézoélectrique et magnétostrictif (*Dinzart and Sabar, 2012*).

# 5.2 Application aux composites magnéto-électro-élastique à inclusions de géométrie variable

Le comportement homogénéisé du matériau composite est obtenu grâce à un schéma de Mori-Tanaka. Les matériaux utilisés en renfort des composites piézoélectriques sont généralement le verre et les fibres de carbone (Lin and Sodano, 2010). Les applications proposées par cette étude sont dédiées aux composites avec une phase inclusionnaire (verre ou carbone) enrobée d'une fine couche de matériau piézoélectrique plongée dans une matrice magnétoélectrique. Sont analysés l'effet 'forme' des inclusions enrobées (de lamellaire à cylindrique), l'épaisseur de l'enrobage sur le couplage ME et l'orientation des fibres par rapport à la direction de polarisation. Les résultats sont en bon accord avec ceux obtenus par Srinivas et al. (2006) dans le cas de composites biphasés notamment pour les courbes traitant des couplages  $\alpha_{33}^{eff}$  et  $\alpha_{11}^{eff}$ . L'étude permet d'accéder aux modifications apportées sur les couplages ME par l'introduction d'une troisième phase inclusionnaire (*Dinzart and Sabar, 2011*).



Figure IV-7 : Influence de la forme du renfort BaTiO<sub>3</sub> sur le couplage ME  $\alpha_{33}^{eff}$  (composites BaTiO<sub>3</sub>/ CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> avec  $\Delta a / a = 0$ )(*Dinzart and Sabar, 2011*).



la la forma du ranfort DaTiO que la coupleza ME et <sup>eff</sup>

Figure IV-8 : Influence de la forme du renfort BaTiO<sub>3</sub> sur le couplage ME  $\alpha_{11}^{eff}$  (composites Verre/BaTiO<sub>3</sub>/CoFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>,  $\Delta a/a = 0.02$ ) (*Dinzart and Sabar*, 2011).

# 6. Conclusions et Perspectives

Les approches micromécaniques à champs moyens ont permis l'évaluation des propriétés effectives des matériaux piézoélectriques ou magnéto-électro-élastiques à renforts enrobés. L'effet de l'interphase sur le comportement effectif est obtenu par une extension des fonctions de Green et des opérateurs interfaciaux au cas du comportement magnéto-électro-élastique. Dans ce cadre, des résultats

encourageants ont été obtenus concernant le rôle de l'enrobage sur l'amélioration des performances de ces matériaux. L'effort de modélisation va se poursuivre pour intégrer les problèmes d'interface (décohésion mécanique induite par des sauts des propriétés magnéto-électriques) pour comprendre les moindres performances observées expérimentalement des composites synthétisés. La généralisation de la démarche des opérateurs interfaciaux à des enrobages multiples devraient permettre l'utilisation d'autres schémas d'homogénéisation mais aussi de s'intéresser à une évolution des propriétés par palier dans l'interphase. Le concept d'enrobage multiple relève d'une démarche orientée vers les matériaux à gradient de propriétés (Sevostianov and Kachanov, 2007) à destination de composites multiferroïques (Wang et al., 2010; Wang and Pan, 2007). Un autre axe de développement concerne les applications des composites magnétoélectriques à structure périodique lamellaire pour lesquels l'étude d'une réponse dynamique serait de première importance (Chen et al., 2002). Enfin la non-linéarité du couplage électro-élastique (Lin and Muliana, 2013) ou magnéto-élastique doit faire l'objet de prospectives dans la modélisation de la loi de comportement. Les approches permettant d'étudier l'influence conjointe de ces non-linéarités et de la présence d'une interphase ouvrent de larges pistes de réflexion.
# Chapitre V : Modélisation des effets d'une interphase ou d'une interface imparfaite dans un composite

### 1. Introduction

Le développement de composites à matrice polymère renforcée a connu un essor considérable depuis ces dernières années. Cependant, ces composites présentent souvent une interphase de dimension finie entre les renforts et la matrice. Cette interphase peut être un sous-produit de synthèse (réaction chimique, processus de diffusion, polymérisation) mais elle peut également être introduite volontairement pour améliorer les transferts de contrainte entre la matrice et les renforts. L'étude des interfaces étendue aux problèmes de l'existence d'une interphase de propriétés différentes de l'inclusion et de la matrice a été initiée par Hashin et Rosen (1964) sur la base d'un modèle géométrique. Ces approches analytiques sont généralement basées sur la solution exacte du problème de la sphère ou du cylindre composite élastique isotrope de Love. Hashin (1979) a proposé un modèle analytique exact basé sur le schéma à trois phases de Christensen et Lo (1979). Hervé et Zaoui (1995, 1990) ont généralisé cette approche aux composites à enrobages multiples. Bonfoh et al. (2012, 2014) ont proposé une méthode alternative exacte basée sur l'utilisation de tenseurs d'Eshelby intérieur et extérieur. L'inconvénient de ces approches est leur domaine d'application restrictif : seuls les matériaux isotropes et les géométries sphériques et cylindriques peuvent être traités. Des solutions existent pour des formes d'inclusions plus complexes mais elles se limitent malheureusement à des approches dans le plan par développement de fonctions complexes.

Afin d'accéder au comportement effectif de composites à renforts de forme ellipsoïdale et pour des comportements de phase plus généraux que le classique *'isotrope linéairement élastique'*, on trouve les approches micromécaniques développées par Hori et Nemat-Nasser (1993,1999). La simplicité de la méthode de la Double-Inclusion justifie son abondante utilisation dans la littérature. De plus, les tenseurs d'Eshelby qui en sont issus présentent des connexions avec les approches de Willis et Ponte-Castaneda (1995) et Mori and Tanaka (1973b) (voir Hu et Weng, 2000). Elle autorise de plus des extensions à de multiples comportements incluant des phénomènes de couplage multiphysique. Une approche alternative à la méthode de la Double-Inclusion de Hori et Nemat-Nasser a été d'étendre le concept des opérateurs interfaciaux initialement introduit par Hill (1983) et Walpole (1981) en supposant que le saut de déplacement à l'interface entre l'inclusion et l'enrobage pouvait affecter en moyenne tout le champ de déplacement de l'enrobage (Cherkaoui et al., 1995; Lipinski et al., 2006 pour le multi-enrobé). Les propriétés effectives du composite sont alors estimées en supposant que les champs de déformation sont uniformes dans l'enrobage s'il reste d'épaisseur relative faible (inférieur à 20%) identifiant ainsi l'interface imparfaite à une interphase de propriétés uniformes et d'épaisseur fine.

La méthode d'Hori et Nemat-Nasser repose sur une extension du problème de l'inclusion d'Eshelby où un champ d'*eigenstrain'* permet de rendre compte de la présence d'un enrobage. Une relation est alors mise en évidence entre les champs moyens dans l'inclusion et dans la couche entourant cette inclusion. Le développement ultérieur de la méthode repose intégralement sur l'hypothèse simplificatrice permettant le calcul du champ de déformation moyen sur l'enrobage entourant l'inclusion. Nous proposons dans ce travail une simplification alternative à celle proposée par Hori et Nemat-Nasser pour simplifier le terme issu de l'intégration du champ de déformation sur le ou les enrobages successifs.

#### 2. Problème de l'interphase pour un composite à enrobages multiples

#### 2.1 Formulation du problème de l'inhomogénéité à enrobages multiples

Le composite est constitué de différentes phases dont le comportement est décrit par :

$$\sigma(r) = C(r) : \varepsilon(r) . \tag{V-1}$$

Le problème de l'inhomogénéité est traité par la technique des fonctions de Green permettant ainsi d'accéder à une équation intégrale écrite en tenant compte des comportements des enrobages successifs de l'inclusion :

$$\varepsilon(r) = \varepsilon^0 - \sum_{K=1}^N \int_{V'_K} \Gamma^0(r - r') \colon \Delta C^{K/0} \colon \varepsilon(r') dV'_K$$
(V-2)

où  $\Delta C^{K/0}$  représente les fluctuations des propriétés de la  $K^{ième}$  phase par rapport au milieu homogène de référence noté '0'. Les tenseurs de localisation ne sont pas évalués en estimant la relation liant les champs de déformations moyens de la  $K^{ième}$  phase par rapport à la  $K+1^{ième}$  phase mais en estimant un tenseur de localisation relatif à une inclusion-composite constituée des K premières phases par rapport au milieu qui l'entoure. Cette démarche implique la définition d'inclusion-composites dont le volume est défini par  $\Omega_J = \sum_{K=1}^{J} V_K$ . La relation liant les champs de déformation moyens apparaît d'une grande utilité

lors de l'établissement des relations de localisation :

$$\phi_{K}\overline{\varepsilon}^{K} = \frac{\Omega_{K}}{\Omega_{N}}\overline{\varepsilon}^{\Omega_{K}} - \frac{\Omega_{K-1}}{\Omega_{N}}\overline{\varepsilon}^{\Omega_{K-1}} \text{ avec } \phi_{K} = \frac{V_{K}}{\Omega_{N}}$$
(V-3)

Le principal objectif est alors d'établir les expressions des tenseurs de localisation récursifs  $\bar{\varepsilon}^{\Omega_J} = A^{\Omega_J/\Omega_{J+1}} : \bar{\varepsilon}^{\Omega_{J+1}}$  de façon à pouvoir définir le tenseur de localisation dans la  $K^{ième}$  phase sous la forme  $\bar{\varepsilon}^K = A^{K/0} : \varepsilon^0 \operatorname{avec} A^{K/0} = \frac{\Omega_N}{V_K} \Delta A^{\Omega_K} : A^{\Omega_N/0}$ . La dernière étape de localisation  $A^{\Omega_N/0}$  est exacte et s'obtient de façon classique en moyennant le champ de déformation issu de l'équation intégrale sur l'inclusion-composite  $\Omega_N$ .

### 2.2 Expression du tenseur de localisation de l'inclusion-composite

La principale difficulté réside dans le calcul des tenseurs de localisation 'intermédiaires' entre chaque inclusion-composite. La formulation exacte peut être obtenue pour des géométries sphériques et cylindriques en utilisant la solution du problème de l'inclusion composite donnée par Love dans le cas d'un comportement isotrope élastique. Pour accéder à une solution dans le cadre plus général d'une inclusion ellipsoïdale et pour un comportement anisotrope (élastique, viscoélastique, magnéto-électro-élastique), il est indispensable de proposer des hypothèses permettant de simplifier la seconde intégrale apparaissant dans le calcul de la moyenne du champ de déformation dans l'inclusion-composite  $\Omega_J$ :

$$\overline{\varepsilon}^{\Omega_{J}} = \varepsilon^{0} - \frac{1}{\Omega_{J}} \sum_{k=1}^{J} \int_{\Omega_{J}} \int_{V'_{K}} \Gamma^{0}(r-r') : \Delta C^{K/0} : \varepsilon(r') dV'_{K} d\Omega_{J}$$

$$- \frac{1}{\Omega_{J}} \sum_{K=J+1}^{N} \int_{\Omega_{J}} \int_{V'_{K}} \Gamma^{0}(r-r') : \Delta C^{K/0} : \varepsilon(r') dV'_{K} d\Omega_{J}$$

$$(V-4)$$

$$\underbrace{\operatorname{terme \ délicat \ à \ estimer}}_{terme \ délicat \ à \ estimer}$$

La première intégrale est déterminée de façon exacte d'après Eshelby en introduisant le tenseur de polarisation  $T_0^{\Omega_J}$  calculé sur l'inclusion-composite  $\Omega_J$  et relatif au comportement du milieu homogène de référence '0'. En effet, tout se joue sur le second terme intégral '*délicat à estimer*' de façon exacte puisque le terme  $\int_{\Omega_J} \Gamma^0(r-r') d\Omega_J$  n'est pas uniforme car le volume d'intégration  $V'_K$  est extérieur à l'inclusion-composite  $\Omega_J$ . Hori et Nemat-Nasser dans leur approche de la Double-Inclusion étendue au problème des enrobages multiples (*Multi-Inclusion 'MI' problem*) proposent de considérer que la déformation locale  $\varepsilon(r')$  dans  $V'_K$  est assimilable à sa valeur moyenne  $\overline{\varepsilon}^K$ . La déformation moyenne dans l'inclusion-composite devient alors :

$$\overline{\varepsilon}^{\Omega_{J}} = \varepsilon^{0} - \frac{1}{\Omega_{J}} \sum_{k=1}^{J} \int_{\Omega_{J}} \int_{V'_{K}} \Gamma^{0}(r-r') : \Delta C^{K/0} : \varepsilon(r') dV'_{K} d\Omega_{J}$$

$$- \frac{1}{\Omega_{J}} \sum_{K=J+1}^{N} \int_{\Omega_{J}} \int_{V'_{K}} \Gamma^{0}(r-r') : \Delta C^{K/0} : \overline{\varepsilon}^{K} dV'_{K} d\Omega_{J}$$

$$- \frac{1}{\Omega_{J}} \sum_{K=J+1}^{N} \int_{\Omega_{J}} \int_{V'_{K}} \Gamma^{0}(r-r') : \Delta C^{K/0} : \overline{\varepsilon}^{K} dV'_{K} d\Omega_{J}$$

$$- \frac{1}{\Omega_{J}} \sum_{K=J+1}^{N} \int_{\Omega_{J}} \int_{V'_{K}} \Gamma^{0}(r-r') : \Delta C^{K/0} : \overline{\varepsilon}^{K} dV'_{K} d\Omega_{J}$$

$$- \frac{1}{\Omega_{J}} \sum_{K=J+1}^{N} \int_{\Omega_{J}} \int_{V'_{K}} \Gamma^{0}(r-r') : \Delta C^{K/0} : \overline{\varepsilon}^{K} dV'_{K} d\Omega_{J}$$

$$- \frac{1}{\Omega_{J}} \sum_{K=J+1}^{N} \int_{\Omega_{J}} \int_{V'_{K}} \Gamma^{0}(r-r') : \Delta C^{K/0} : \overline{\varepsilon}^{K} dV'_{K} d\Omega_{J}$$

$$- \frac{1}{\Omega_{J}} \sum_{K=J+1}^{N} \int_{\Omega_{J}} \int_{V'_{K}} \Gamma^{0}(r-r') : \Delta C^{K/0} : \overline{\varepsilon}^{K} dV'_{K} d\Omega_{J}$$

$$- \frac{1}{\Omega_{J}} \sum_{K=J+1}^{N} \int_{\Omega_{J}} \int_{V'_{K}} \Gamma^{0}(r-r') : \Delta C^{K/0} : \overline{\varepsilon}^{K} dV'_{K} d\Omega_{J}$$

$$- \frac{1}{\Omega_{J}} \sum_{K=J+1}^{N} \int_{\Omega_{J}} \int_{V'_{K}} \Gamma^{0}(r-r') : \Delta C^{K/0} : \overline{\varepsilon}^{K} dV'_{K} d\Omega_{J}$$

$$- \frac{1}{\Omega_{J}} \sum_{K=J+1}^{N} \int_{\Omega_{J}} \int_{V'_{K}} \Gamma^{0}(r-r') : \Delta C^{K/0} : \overline{\varepsilon}^{K} dV'_{K} d\Omega_{J}$$

$$- \frac{1}{\Omega_{J}} \sum_{K=J+1}^{N} \int_{\Omega_{J}} \int_{V'_{K}} \Gamma^{0}(r-r') : \Delta C^{K/0} : \overline{\varepsilon}^{K} dV'_{K} d\Omega_{J}$$

Nous proposons une méthode alternative qui consiste à isoler l'inclusion-composite  $\Omega_J$  constituée de l'inclusion et des *J-1* enrobages comme décrit sur la figure V-1.



Figure V-1: Topologie de l'inclusion-composite  $\Omega_I$ 

On détermine une relation entre les déformations moyennes  $\bar{\epsilon}^{\Omega_J}$  et  $\bar{\epsilon}^{\Omega_{J+1}}$  en isolant l'inclusioncomposite de rang supérieur  $\Omega_{J+1}$ . Toute la subtilité du raisonnement réside dans le choix d'un milieu homogène de référence qui permettrait l'élimination des intégrales difficiles à évaluer. Ce problème se reproduit à chaque enrobage de l'inclusion multiplement enrobée pour *J* variant de *l* à *N-1*. Les intégrales incriminées se simplifient si on assimile la déformation locale à la déformation moyenne (*hypothèse de Hori et Nemat-Nasser*) ou si on choisit un milieu de référence ad-hoc pour chaque enrobage de façon à annuler  $\Delta C^{K/0}$  pour tous les enrobages à partir du rang *J+1*. Ce choix privilégié s'inspire de la méthode proposée par Aboutajeddine and Neale (2005) consistant à réaliser une 'double localisation' de type Mori-Tanaka pour une inclusion enrobée plongée dans le milieu de référence assimilé à la matrice. Friebel et al. (2006) ont repris cette méthode (désignée par MT-MT c.a.d 'double Mori-Tanaka') pour un composite renforcé où l'inclusion et son enrobage sont concentriques et homothétiques.

Dans le cas général d'un composite à inclusions multi-enrobées, on obtient alors une relation de récurrence liant les déformations moyennes entre les inclusions composites successives :

$$\bar{\varepsilon}^{\Omega_{J+1}} - \bar{\varepsilon}^{\Omega_{J}} = \frac{V_{J+1}\Omega_{N}}{\Omega_{J}\Omega_{J+1}} T_{J+1}^{J+1} : \sum_{K=1}^{J} \phi_{K} \Delta C^{K/J+1} : \bar{\varepsilon}^{K} \text{ où } T_{J+1}^{J+1} = T_{J+1}^{\Omega_{J+1}} - \frac{\Omega_{J+1}}{V_{J+1}} \left( T_{J+1}^{\Omega_{J+1}} - T_{J+1}^{\Omega_{J}} \right).$$
(V-6)

avec des tenseurs de polarisation  $T_{J+1}^{\Omega_J}$  calculés pour le comportement de la phase J+I et pour la géométrie de l'enveloppe de l'inclusion-composite  $\Omega_J$  sous la forme $T_{J+1}^{\Omega_J} = \int_{\Omega_J} \Gamma^{J+1}(r-r') d\Omega_J$ . Cette formulation permet de considérer des enrobages successifs non homothétiques à travers le terme de variation  $(T_{J+1}^{\Omega_{J+1}} - T_{J+1}^{\Omega_J})$ . Il reste alors à exprimer les tenseurs de localisation  $A^{\Omega_J/\Omega_{J+1}}$  permettant de lier les champs de déformation moyen dans les inclusion-composites  $\overline{\epsilon}^{\Omega_J} = A^{\Omega_J/\Omega_{J+1}} : \overline{\epsilon}^{\Omega_{J+1}}$ .

#### 2.3 Comportement effectif d'un composite renforcé

#### 2.3.1 Homogénéisation du comportement du composite multiplement enrobé

Dès le tenseur de localisation  $A^{\Omega_J/\Omega_{J+1}}$  obtenu sous cette forme récursive, il est possible d'accéder au comportement effectif du composite multiplement enrobé sous différents schémas d'homogénéisation. La littérature étant plus prolixe sous la forme du schéma auto-cohérent généralisé, nous avons proposé des illustrations de cette méthode d'homogénéisation (Dinzart et al., 2016). Le module élastique effectif s'écrit alors en prenant en compte les fractions volumiques de chaque phase  $f_K = V_K/V$ :

$$\boldsymbol{C}^{eff} = \boldsymbol{C}^{N} + \sum_{K=1}^{N-1} f_{K} \Delta \boldsymbol{C}^{K/N} : \boldsymbol{A}^{K/eff} \text{ avec } \boldsymbol{A}^{K/eff} = \frac{\Omega_{N}}{V_{K}} \Delta \boldsymbol{A}^{\Omega_{K}/\Omega_{N}} : \boldsymbol{A}^{\Omega_{N}/eff}$$
(V-7)

Le choix du milieu homogène de référence comme le milieu effectif apporte juste une modification à la dernière étape de localisation  $A^{\Omega_N/eff}$ . Le schéma d'homogénéisation de Mori-Tanaka a également été développé et programmé (sans être présenté dans l'article pour ne pas alourdir le propos). L'expression du module élastique effectif  $C_{MT}^{eff}$  s'obtient alors en assimilant le dernier enrobage d'ordre *N* au milieu homogène de référence. La dernière étape de localisation doit alors être écrite soigneusement car elle ne repose plus sur les relations de récurrence générales développées dans le paragraphe précédent.

$$C_{MT}^{eff} = C^{N} + \sum_{K=1}^{N-1} \Delta C^{K/N} : A_{MT}^{K/N} \text{ avec } A^{\Omega_{N-1}/N} = \left[ I + T_{N}^{\Omega_{N-1}} : \sum_{K=1}^{N-1} \Delta C^{K/N} : \Delta A^{\Omega_{K}/N} \right]^{-1}.$$
(V-8)

#### 2.3.2 Comportement élastique effectif, modèle à (2+1) et (3+1) phases

La résolution du problème de l'inclusion élastique a été conduite selon le schéma auto-cohérent généralisé dans les cas d'un composite à 2 phases et à 3 phases pour un comportement élastique isotrope afin de pouvoir comparer les modules effectifs de compressibilité et de cisaillement établis de façon exacte par Hervé et Zaoui (Hervé and Zaoui, 1993). Le nouveau modèle proposé pour décrire les localisations entre inclusion-composites permet d'obtenir les expressions exactes du module de compressibilité  $\kappa^{eff}$ . L'analyse paramétrique conduite sur différents contrastes de comportement entre l'inclusion, l'enrobage et la matrice montre la supériorité de ce nouveau modèle par rapport à l'approche classique de Hori et Nemat-Nasser (Figure V-2).



Figure V-2: Module de cisaillement effectif en fonction du contraste de comportement enrobage/matrice (*Dinzart et al., 2016*)

# 2.3.3 Comportement élastique effectif, analyse de l'effet forme

Le principal intérêt de la nouvelle estimation des tenseurs de localisation entre inclusioncomposites réside dans la possibilité de prendre en compte des géométries ellipsoïdales pour lesquelles les solutions exactes du comportement effectif n'existent pas. L'introduction de ce type de particules complique le calcul des composantes du module élastique effectif puisqu'un effet d'anisotropie induite par la géométrie apparaît alors. Il a été considéré des inclusions ellipsoïdales dont l'enrobage était considéré concentrique et homothétique. L'effet forme a été analysé à travers le paramètre  $\alpha = a_1/a_3 = a_2/a_3$  défini à partir des dimensions  $(a_1, a_2, a_3)$  des demi-axes principaux des ellipsoïdes. L'enrobage a été choisi plus souple ou plus rigide que l'inclusion et la matrice environnantes de façon à mieux mettre en évidence les différences entre la nouvelle approche et celle de Hori et Nemat-Nasser, la solution exacte de la géométrie sphérique venant s'intégrer naturellement dans l'analyse.



Figure V-3: Composantes adimensionnalisées du module élastique effectif (Dinzart et al, 2016)

L'hypothèse proposée par Hori et Nemat-Nasser d'identifier le champ de déformation local dans l'enrobage à sa moyenne apparaît comme pertinente pour certaines composantes du module élastique effectif ( $C_{33}^{eff}$  par exemple). Cette observation tendrait à prouver que la dimension principale incriminée dans le calcul du module effectif devient un paramètre qui pourrait être négligé lors d'un développement asymptotique qui pourrait être réalisé en fonction du facteur de forme. Ainsi, l'augmentation relative de  $a_3$  observée entre une ellipsoïde prolate et une fibre cylindrique n'induit pas de différences fondamentales sur le module  $C_{33}^{eff}$ , le facteur de forme  $\alpha$  intervenant comme un paramètre du second ordre. Ceci expliquerait pourquoi les résultats issus de l'approche de Hori et Nemat-Nasser sont les plus éloignés de la solution exacte quand on considère des inclusions sphériques.

#### 2.4 Conclusions et perspectives

L'intérêt de cette démarche est de traiter le problème de l'inclusion à enrobages multiples homothétiques ou non pour des matériaux élastiques (puisque c'est le cadre initial de cette méthode) anisotropes en adoptant le formalisme développé pour les matériaux adaptatifs pour des comportements plus compliqués présentant des phénomènes de couplage. Cette méthode peut également être étendue aux comportements viscoélastiques lors d'une approche héréditaire du comportement effectif en utilisant le principe de correspondance (*thèse de Schoeneich*).

# 3. Problème de l'interface imparfaite

#### 3.1 Contexte général

Le problème de l'interface imparfaite a souvent été abordé dans la littérature sous l'angle d'une interphase parfaitement liée aux phases environnantes et dont l'épaisseur et le comportement permet de simuler les phénomènes de décohésion (Benveniste, 1985, 2006a, 2006b). Une approche alternative consiste à affiner la modélisation des discontinuités lors du passage de l'interface et de traiter leurs conséquences sur le comportement effectif du composite en accédant aux tenseurs de localisation. Le modèle de l'interface imparfaite élastique 'linéaire' développé par Hashin (1991, 2002) admet deux familles de comportement associés à deux scénarios différents de décohésion : les *'interface displacement model-IDM'* et *'interface stress model- ISM'* associés respectivement à des sauts à l'interface en *'déplacement'* ou en *'contrainte.* De nombreux travaux dans la littérature établissent l'équivalence de ces modèles d'interface imparfaite et des modèles d'interphase de faible épaisseur par utilisation de développements asymptotiques (Hashin, 2002; Nie and Basaran, 2005; Benveniste, 2006a):

- si l'interphase est plus rigide que la matrice, le champ de déplacement est continu des renforts vers la matrice,

- si l'interphase est plus souple que la matrice, la contrainte de traction se transmet intégralement entre les différentes phases.

Dans le cas de cette description 'linéaire' du comportement de l'interface, il est possible de proposer des solutions analytiques exactes au problème d'homogénéisation du comportement et aux champs locaux de contrainte et de déformation en utilisant la théorie de Love. Au-delà de la description simplifiée de l'interface, s'ajoutent les limitations inhérentes à ce type de méthode : comportement élastique isotrope des phases et géométrie sphérique ou cylindrique des renforts. Les pistes d'amélioration de ces modèles sont multiples et peuvent s'orienter dans un premier temps vers une prise en compte plus rigoureuse des discontinuités à l'interface. L'approche micromécanique basée sur l'utilisation des fonctions de Green nous a semblé la plus prometteuse pour intégrer dans l'équation intégrale la contribution des deux familles de discontinuités. La méthodologie permettant de traiter la contribution au champ de déformation moyen dans l'inclusion du champ de déformation issu de l'interface imparfaite est présentée dans ses grandes lignes dans la suite de ce mémoire. L'intégralité de ce travail est actuellement soumis à publication à l'*International Journal of Solids and Structures*.

### 3.2 Formulation du problème de l'interface imparfaite

Le composite est constitué de différentes phases dont le comportement est décrit par (IV-3). Le comportement de l'interface entre l'inclusion et la matrice est décrit par

 $[\sigma_{nm}]N_m = (\sigma_{nm}^+ - \sigma_{nm}^-)N_m \text{ pour un saut en contrainte,}$  $[u_m] = (u_m^+ - u_m^-) \text{ pour un saut en déplacement,}$ 

où *N* est le vecteur unitaire normal extérieur dirigé vers  $S_I^+$  qui représente la surface de l'inclusion vue du coté de la matrice.

La méthode des fonctions de Green permet d'accéder au champ de déplacement sous la forme de l'équation intégrale :

$$u_{k}(r) = -\int_{V'} G_{mk,ni}(r-r')C_{ijmn}^{0}u_{j}(r')dV'$$
(V-9)

Il est indispensable de faire apparaître dans le calcul intégral les discontinuités des vecteurs contrainte  $[\sigma_{nm}]N_m$  et déplacement  $[u_m]$  contenues dans le volume V en transformant les intégrales de volume en intégrales de surface sur  $\partial V$  de normale extérieure n:

$$u_{k}(r) = -\int_{\partial V'} \mathbf{G}_{mk,n'}(r-r') C_{ijmn}^{0} u_{j}(r') n_{i} dS' - \int_{V'} \mathbf{G}_{mk,n'}(r-r') \delta C_{ijmn}^{0} \varepsilon_{ij}(r') dV'$$

$$-\underbrace{\int_{S'} \mathbf{G}_{mk}(r-r') [\mathbf{\sigma}_{mn}(r')] N_{n} dS'}_{saut\ en\ contrainte} + \underbrace{\int_{S'} \mathbf{G}_{mk,n'}(r-r') C_{ijmn}^{0} [u_{j}(r')] N_{i} dS'}_{saut\ en\ deplacement}$$
(V-10)

L'expression du champ de déplacement local est alors obtenue en considérant les conditions à la limite :

$$u_{k}(r) = u_{k}^{0}(r) - \int_{V'} \mathbf{G}_{mk,n'}(r-r') \partial \mathcal{C}_{ijmn}^{0} \varepsilon_{ij}(r') dV' - \underbrace{\int_{S'} \mathbf{G}_{mk}(r-r') [\mathbf{\sigma}_{mn}(r')] N_{n} dS'}_{saut\ en\ contrainte} + \underbrace{\int_{S'} \mathbf{G}_{mk,n'}(r-r') \mathcal{C}_{ijmn}^{0} [u_{j}(r')] N_{i} dS'}_{saut\ en\ deplacement}$$
(V-11)

Cette expression est simplifiée dans le cas d'un saut en déplacement uniquement :

$$\varepsilon_{kl}(r) = \varepsilon_{kl}^0 - \int_{V'} \Gamma_{klmn}(r - r') \delta C_{ijmn}^0 \varepsilon_{ij}(r') dV' + \int_{S'} \Gamma_{klmn}(r - r') C_{ijmn}^0 \left[ u_j(r') \right] N_i dS'$$
(V-12)

#### 3.3 Problème de l'inclusion d'Eshelby avec interface imparfaite

On considère maintenant une inclusion de volume  $V_I$  limitée par une interface imparfaite  $\partial V_I$ plongée dans un milieu de référence infini élastique. La déformation moyenne sur l'inclusion est issue de l'intégration sur le volume  $V_I$  de l'équation (V-11) :

$$\overline{\varepsilon}_{kl}^{I} = \varepsilon_{kl}^{0} - T_{ijkl}^{0i} \Delta C_{ijmn} \overline{\varepsilon}_{mn}^{I} + \frac{1}{V_{I}} \int_{V_{I}} (\int_{S'} \Gamma_{klmn} (r - r') C_{ijmn}^{0} [u_{j}(r')] N_{i} dS') dV_{I}$$

$$\text{avec } \Delta C = C^{I} - C^{0}.$$

$$(V-13)$$

La principale difficulté réside dans le calcul de la seconde intégrale de (IV-13). Cette difficulté est levée en utilisant les propriétés des tenseurs d'Eshelby intérieur et extérieur (Eshelby, 1959, 1957) permettant ainsi de retrouver la contribution de la déformation moyenne induite par l'interface imparfaite  $\bar{\varepsilon}^{S}$  dans l'équation de localisation. On retrouve la déformation moyenne  $\bar{\varepsilon}^{S}$  issue de la littérature (Hashin, 1991a, Levy and Dong, 1998, Benveniste and Miloh, 2001) :

$$\bar{\varepsilon}_{ij}^{S} = -\frac{1}{2V_{I}} \int_{S_{I}^{++}} \left[ \left[ u_{j}(r') \right] N_{i} + \left[ u_{i}(r') \right] N_{j} \right] dS_{I}^{++}$$
(V-14)

L'équation de localisation de la déformation s'écrit de façon générale pour tout type de saut en déplacement :

$$\overline{\varepsilon}_{kl}^{I} = \varepsilon_{kl}^{0} - T_{ijkl}^{0i} \Delta C_{ijmn}^{0} \overline{\varepsilon}_{mn}^{I} - \left( C_{ijmn}^{0} T_{klmn}^{0i} - I_{ijmn} \right) \overline{\varepsilon}_{ij}^{S}$$
(V-15)

Afin d'accéder au comportement effectif par un schéma d'homogénéisation, il est indispensable de définir la déformation moyenne  $E = \bar{\varepsilon} = \frac{1}{V} \int_{V} \varepsilon(r) dV$  par :

$$E_{ij} = f\overline{\varepsilon}_{ij}^{I} + (1 - f)\overline{\varepsilon}_{ij}^{M} - f\overline{\varepsilon}_{ij}^{s} .$$
(V-16)

Cette formulation reste très générale et supporte diverses modélisations du saut de déplacement à l'interface. L'équation de localisation obtenue diffère de celle de Qu (1993a,1993b)  $\bar{\varepsilon}_{kl}^{I} = \varepsilon_{kl}^{0} - T_{ijkl}^{0i} \Delta C_{ijmn}^{0} \bar{\varepsilon}_{mn}^{I} + C_{ijmn}^{0} T_{klmn}^{0i} \bar{\varepsilon}_{ij}^{S}$ , la méthode d'intégration du second terme de (IV-13) proposée par Qu conduisant à des incohérences de calculs (relevées par Yanase et Ju, 2012). Afin de permettre des comparaisons avec des approches analytiques exactes, l'équation de localisation de la déformation est simplifiée en considérant un saut de déplacement proportionnel à la composante normale du vecteur contrainte :

$$[\sigma_{nm}]N_m = (\sigma_{nm}^+ - \sigma_{nm}^-)N_m = 0$$
  

$$[u_m] = (u_m^+ - u_m^-) = \eta_{mp}\sigma_{pk}N_k \text{ avec } \eta_{mp} = \alpha\delta_{mp} + (\beta - \alpha)N_mN_p$$
(V-17)

Les paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  sont positifs et décrivent le glissement et le déplacement à l'interface. En supposant de plus que le champ de contrainte est uniforme dans l'inclusion (ce qui ne s'observe malheureusement que pour certaines conditions à la limite telle qu'un champ de compression uniforme ou un glissement pour une inclusion sphérique), l'équation de localisation s'exprime en fonction d'un tenseur *R* défini par  $R_{jipq} = \frac{1}{V} \int_{S_{i}} \eta_{jp} N_{q} N_{i} dS_{i}$  décrivant les effets combinés de la géométrie et des paramètres d'interface.

$$\bar{\varepsilon}_{kl}^{I} = A_{klmn}^{0-m} \varepsilon_{kl}^{0} \text{ avec } A_{klmn}^{0-m} = (I_{ijmn} + T_{ijkl}^{0i} \Delta C_{ijmn} + (I_{ijmn} - C_{ijmn}^{0} T_{klmn}^{0i}) R_{mnrs} C_{ijmn}^{I})^{-1}$$
(V-18)

#### 3.4 Localisation de la déformation, cas de la sphère

La validation du modèle a été réalisée par comparaison avec les solutions exactes fournies dans la littérature pour deux géométries simples : la sphère (Zhong and Meguid, 1997) et le cylindre Kuo and Huang (2016). Zhong et Meguid obtiennent des relations de localisation exacte en considérant que le saut de déplacement à l'interface pouvait être représenté par un champ de dislocation de Somigliana.

Dans le cas de la sphère et pour un comportement élastique linéaire isotrope, nous avons retrouvé de façon immédiate la partie sphérique du tenseur de localisation établie par Zhong and Meguid (1997) car le chargement limite associé conduit un champ de déformation uniforme dans l'inclusion. La comparaison de la partie déviatorique a nécessité le calcul du champ de déformation moyen dans l'inclusion car la présence d'une interface imparfaite conduit nécessairement à un champ local non uniforme :

$$A_{s}^{0-m} = \frac{3\kappa^{0} + 4\mu^{0}}{3\kappa^{l} + 4\mu^{0} + 12\beta_{a}\kappa^{l}\mu^{0}}, A_{d}^{0-m(\alpha=\beta)} = \frac{5\mu^{0}(3\kappa^{0} + 4\mu^{0})}{5(3\kappa^{0} + 4\mu^{0}) + 6(\kappa^{0} + 2\mu^{0})(\mu^{l} - \mu^{0}) + 2\beta_{a}\mu^{l}(9\kappa^{0} + 8\mu^{0})}$$
(V-19)

# 3.5 Localisation de la déformation, cas du cylindre

Le cas de la géométrie cylindrique a été traité par Kuo and Huang (2016) en utilisant des développements de fonctions complexes dans le cadre d'un problème plan. Nous n'avons conservé de l'analyse de Kuo et Huang (initialement dédiée aux matériaux piézoélectriques) que les contributions au comportement élastique isotrope transverse. L'interface imparfaite est décrite par un saut en déplacement formulé par (V-17). Les tenseurs de localisation dédiés aux champs de déformation sont identiques à ceux

proposés par Kuo and Huang (2016). Le comportement effectif est obtenu par un schéma d'homogénéisation de Mori-Tanaka afin de permettre une comparaison des simulations numériques. Nous obtenons une superposition exacte avec les applications proposées par Kuo and Huang (ellesmêmes en accord avec les connections proposées par Benveniste, 2014).



Figure V-4: Comparaison des modules effectifs  $C_{11}$  et  $C_{12}$ BaTiO3 (BTO)  $C_{11} = 166 GPa, C_{12} = 77GPa$ , CoFe2O4 (CFO):  $C_{11} = 286 GPa, C_{12} = 173GPa$  $\alpha = 5.10^8$  et  $\beta = 3.10^9$ 

# 3.5 Comportement élastique effectif, analyse des effets combinés de la forme et de l'interface

Le principal intérêt de la démarche est de pouvoir analyser les effets combinés de la géométrie des inclusions et des paramètres décrivant l'interface imparfaite. Le composite analysé est un matériau biphasé dont l'interface imparfaite est décrite par le modèle linéaire décrit par (V-17). Il a été considéré des inclusions ellipsoïdales dont la forme est gérée par le paramètre  $\gamma = a_1/a_3 = a_2/a_3$  défini à partir des dimensions  $(a_1, a_2, a_3)$  des demi-axes principaux des ellipsoïdes. Il a été choisi d'adopter l'adimensionalisation des paramètres d'interface suggérée par Nan et al. (1997) pour l'étude de la conductivité effective des composites afin de procéder à des comparaisons sur les effets couplés de forme et d'interface:

$$\alpha_a = \alpha C_{11}^M / a_1 \text{ pour les ellipsoïdes 'prolate' } \gamma < 1$$

$$\alpha_a = \alpha C_{11}^M / a_3 \text{ pour les ellipsoïdes 'oblate' } \gamma > 1$$
(V-20)

Le comportement effectif du composite est obtenu par un schéma d'homogénéisation de type 'Mori-Tanaka' (le schéma dilué n'étant pas suffisamment précis). La première conclusion attendue est naturellement une 'anisotropisation' induite par l'effet forme, seule la composante  $C_{33}^{eff} / C_{33}^{M}$  est analysée dans la suite de la synthèse. Comme déjà démontré par Nan, il apparaît une valeur critique du paramètre  $\alpha_a^*$  au-delà de laquelle les propriétés chutent, cette valeur dépend à la fois de la forme et du paramètre d'interface  $\alpha$ .



Figure V-5: Influence du paramètre d'interface sur  $C_{33}^{eff} / C_{33}^{M}$  pour  $\beta = 0$ 

L'analyse de l'effet forme est plus compliqué pour un paramètre d'imperfection  $\alpha$  fixé: les évolutions peuvent présenter plusieurs extremums selon la valeur de  $\alpha$ .



Figure V-6: Influence de l'effet forme sur  $C_{33}^{eff}$  /  $C_{33}^{M}$  pour  $\beta = 0$ 

# **3.6 Conclusion et perspectives**

Une bonne corrélation avec les résultats analytiques disponibles dans la littérature (Zhong and Meguid, 1997) a permis d'asseoir très rapidement les fondements de cette nouvelle approche des interfaces imparfaites décrites par un saut de déplacement. Une analyse des effets combinés du facteur de forme et des paramètres décrivant le comportement de l'interface a montré une augmentation des effets associés à certaines géométries toujours pour une discontinuité linéaire en déplacement à l'interface. Différents schémas d'homogénéisation (non présentés ici) ont également été comparés (dilué, Mori-Tanaka et auto-cohérent). Enfin, l'équivalence des modèles interface imparfaite et interphase souple de faible épaisseur a été vérifiée à partir d'illustrations proposées par Duan et al. (2007).

Enfin, une extension du modèle aux composites piézoélectriques à interfaces imparfaites a également été développée et va être soumise très prochainement. Ce travail sur les composites piézoélectriques est chronologiquement antérieur à celui des composites élastiques car il constituait notre première intention d'application. Le traitement original de l'interface par utilisation de tenseurs d'Eshelby intérieur et extérieur nous a convaincu de proposer le modèle dans le cas de comportement élastique. L'analyse des travaux issus de la bibliographie nous a permis d'établir des comparaisons avec des solutions exactes (ce qui n'est naturellement pas possible si le comportement est compliqué par la prise en compte des couplages électro-élastiques). Enfin, un détour vers les solutions existantes pour le problème de conductivité thermique des composites nous a conforté dans les expressions analytiques mises en évidence (travail de thèse d'A. Jeancolas).

### Projet de recherche

# Thème A : Matériaux composites visco-magnéto-piézoélectriques, analyse des phénomènes couplés

Les matériaux adaptatifs ont de vastes champs d'application allant de la technologie des mémoires ferroélectriques volatiles (*FRAM*), aux capteurs et actionneurs piézoélectriques (*détecteur de choc, contrôle vibratoire de structures composites, micro-pompes et micro-moteurs à destination médicales*). De nouveaux systèmes hybrides ont été imaginés en combinant le couplage électrique-mécanique des matériaux piézoélectriques au couplage magnétique-mécanique des matériaux magnétostrictifs. Certains composites stratifiés piézoélectrique-magnétostrictifs présentent des effets magnéto-électriques (ME) géants (Dong et al., 2003). Depuis la réalisation de composites à fort couplage ME à température ambiante, les applications visant à utiliser l'effet ME sont de plus en plus nombreuses : capteurs de mesure de champ magnétique en champ micro-onde électrique (Bichurin et al., 2002). Les dispositifs qui peuvent être commandés par un courant ou un potentiel électrique sont des applications prometteuses d'utilisation des matériaux ME. En principe, les composites ME peuvent aussi être utilisés dans les dispositifs à mémoire en raison de leur comportement hystérétique (Bibes and Barthelemy, 2008). Ces systèmes (capteur de champ magnétique, inductance variable, transformateur, etc.) sont en cours de développement pour devenir des produits commerciaux innovants.

Les matériaux piezoélectriques ou magnétoélectriques sont très souvent intégrés dans des systèmes dont les signaux électriques et les réponses mécaniques présentent des boucles d'hystérésis (déformation  $\varepsilon$  en fonction de l'intensité du champ E) dont la forme caractéristique en 'papillon' décrit une évolution temporelle notamment lorsqu'il se produit un changement de polarisation à chargement électrique ou mécanique élevé.

Les matériaux piezoélectriques existent rarement sous une forme monolithique mais sont inclus sous forme de charges fortement électrostrictives (aléatoirement ou organisées en structure régulière et périodique) dans une matrice polymère (électroactive ou non) afin d'éviter les phénomènes de rupture (Hori and Nemat-nasser, 1998; Jiang and Batra, 2002; Muliana and Li, 2010). Les céramiques utilisées comme charges (le PZT notamment) présentent une réponse temporelle non-linéaire lors de chargements mécaniques et électriques évoluant en fonction du temps. Les lois de comportement des matériaux adaptatifs se voient alors compliquées par des dépendances temporelles auxquelles on peut associer différents modèles décrivant les phénomènes de fluage et de relaxation. Le polymère induit une amplification de la contrainte appliquée par son comportement viscoélastique pouvant conduire à une augmentation de la température. Cet effet peut être volontairement recherché pour les matériaux pyroélectriques, mais le plus souvent le phénomène d'instabilité thermique ainsi induit restreint le domaine d'application et la fiabilité du système.

Les composites piezoélectriques présentent une incompatibilité de permittivité entre la matrice polymère et les inclusions céramiques conduisant notamment à des difficultés de polarisation observées à travers les diagrammes d'hystérésis. La viscoélasticité de la matrice affecte toutes les propriétés piezoélectriques effectives du composite : le coefficient piezoélectrique de charge d et le coefficient de permittivité  $\kappa$  qui traduit l'efficacité de la transformation d'énergie. Si le comportement viscoélastique C(t) de la matrice polymère et les permittivités électriques  $\kappa(t)$  des charges piézoélectriques ont des temps de relaxation différents, les propriétés de couplage d(t) ou e(t) vont présenter des réponses combinant ces deux temps de relaxation.

L'amélioration des propriétés des composites adaptatifs et de la fiabilité des systèmes qui les intègrent passe par une meilleure compréhension de la dépendance thermique et temporelle de leurs propriétés électromécaniques effectives. De par sa structure 'inclusionnaire', les méthodes d'analyse les plus adaptées à la recherche du comportement effectif sont les approches micromécaniques.

Le principal objectif de cet axe du projet de recherche sera donc d'étendre aux composites présentant des phénomènes de couplage piézoélectrique et magnétoélectroélastique les approches déjà développées lors de l'étude du comportement viscoélastique des polymères. Les réponses mécaniques dans le domaine fréquentiel seront investiguées sur la base de résultats expérimentaux de DMA. L'influence des propriétés des charges ainsi que de leur géométrie et répartition sera analysée à travers les diagrammes d'hystérésis de polarisation.

Enfin, l'influence de la viscoélasticité et de la dépendance en température de la matrice sur les coefficients 'd' et ' $\kappa$ ' fera l'objet d'une analyse dans le domaine temporel. Ce dernier point permettra d'alimenter un axe conjoint de ce thème : l'analyse des conditions d'instabilité électromécanique et thermomécanique en fonction de la fréquence des sollicitations imposées (Hong, 2011). Le concept d'instabilité instantanée associé aux phénomènes électromécaniques est analogue à celui d'instabilités plastiques observées dans les cristaux. L'étude des critères de développement de phénomènes instables pourra s'inspirer des approches développées dans le chapitre I.

# Thème B : Effet de l'interface imparfaite sur les propriétés des composites, analyse des phénomènes couplés

Les propriétés effectives des composites dépendent naturellement des matériaux qui les constituent, de la géométrie des phases et de leur organisation. Les approches micromécaniques sont en ce sens particulièrement bien adaptées puisqu'elles permettent de prédire le comportement par une description pertinente de la microstructure.

Un paramètre crucial intervenant durant toute la vie d'un composite (de sa formulation à la tenue en service) est la nature des liaisons entre les différents constituants. La décohésion entre les renforts et la matrice entraîne une dégradation dans le transfert de contrainte dans le cadre du comportement purement

mécanique. Les discontinuités observées lors de phénomènes de transfert (thermique, électrique) ou en présence de couplages multiphysiques (piézoélectrique, magnétoélectrique ...) affectent également les performances attendues du composite.

Aussi la modélisation des discontinuités à travers l'interface devient une étape indispensable à l'estimation du comportement effectif du composite. En reprenant les conditions de continuités établies par Hadamard (1903), les discontinuités aux interfaces ont été rapportées sur les projections normales du tenseur des contraintes ou des déformations. La modélisation du comportement d'une interface par une relation linéaire liant le vecteur de traction et le déplacement à l'interface est une première étape de modélisation permettant l'estimation du comportement à l'interface. Comme évoqué dans le mémoire, cette première approche consiste à se rapprocher de la modélisation d'une interphase d'épaisseur infiniment faible dont le comportement linéaire correspond aux deux comportements limites de l'interface : saut en déplacement rendu proportionnel à la contrainte de traction interfaciale ou déplacement continu à l'interface conjugué à une loi liant le saut de vecteur contrainte normal à composante tangentielle du tenseur de déformation à l'interface sont classiquement répertoriés sous deux familles génériques en fonction de la nature de la discontinuité à l'interface : en 'déplacement' ou en 'contrainte'. Les deux familles de modèles présentent des intérêts distincts tant dans leurs méthodologies de mise en œuvre que dans leurs domaines d'applications.

La famille 'saut en déplacement' apparaît souvent comme un outil permettant d'accéder au champ de contraintes au voisinage des particules dans les composites. Il peut toutefois faire apparaître l'effet de la taille des particules. La famille 'saut en contrainte' puise ses origines physiques dans la description d'une énergie d'interface ramenée à l'échelle de l'atome. Cette modélisation repose sur l'introduction d'énergies potentielles modifiées décrivant rigoureusement les effets de surface Gibbs (1928). Le facteur d'échelle qui en est issu est moins artificiel que celui issu des modèles en 'saut de déformation' et reflète le rapport surface/volume de l'interface. La compréhension et la modélisation de ces phénomènes bénéficient à la conception des composites nanostructurés (Duan et al., 2005; Chen et al., 2007). La structuration de ces matériaux réside dans l'équilibre des atomes au voisinage des surfaces de renforts se présentant exfoliés ou assimilables à des 'nano-onions'. Ces composites sont en plein essor sous la forme de matériaux 'intelligents' intégrant des phénomènes de couplage multiphysique (électronique, optique, magnétique et phénomènes couplés).

Le comportement effectif de composites à interfaces imparfaites peut être estimé par diverses approches (numériques, analytiques exactes pour les cas de comportement isotrope et de géométries simples). Mon intention est tout d'abord de poursuivre sur les approches micromécaniques et de raffiner les modélisations de comportement d'interface décrites dans le chapitre V. Nous avons proposé dans une première approche basée sur la technique des fonctions de Green d'amender l'équation intégrale par un

terme intégral supplémentaire permettant de rendre compte des discontinuités du champ de déplacement à l'interface. La discontinuité en déplacement à l'interface apparaît alors sous la forme d'un tenseur de déformation dont l'expression est indépendante de la loi choisie pour décrire le saut qui peut être choisie linéaire. L'intérêt de la démarche est de pouvoir estimer l'influence combinée de la géométrie de l'inclusion et des paramètres décrivant l'interface. Le problème dual de l'interface caractérisée par un saut en contrainte sera également abordé toujours en incluant un terme supplémentaire dans l'équation de localisation de la déformation mais qui rendra compte cette fois de la loi de saut en contrainte. L'objectif est d'accéder aussi bien aux tenseurs de localisation de la déformation qu'aux tenseurs de concentration des contraintes qui sont plus efficaces pour décrire le voisinage des nano-renforts.

Ces approches connaissent leurs équivalents dans les problèmes de transfert thermique pour des interfaces présentant un saut en température ou en flux. La formulation plus simple de l'équation de la chaleur en conductivité a permis d'initier certaines méthodes mathématiques établissant de manière rigoureuse l'équivalence entre le modèle de l'interphase de faible épaisseur et l'interface correspondante faiblement (modèle de Kapitza, 1941) ou hautement conductrice. Des premières analogies ont été mises en évidence à travers les formulations tensorielles des relations de localisation et sur des comportements effectifs issus des schémas d'homogénéisation (dilué, Mori and Tanaka ,1973b).

Les modèles de comportement 'linéaire' d'interface présentent des limitations. La principale réside dans la limite infinie de l'énergie de cohésion à l'interface pour une interface parfaite. Le modèle d'interface linéaire ne permet pas de rendre compte de certains phénomènes tels que l'adoucissement du matériau associé à la décohésion interfaciale (Levy; 1996, 2000). Il faut alors s'inspirer de scénarios de décohésion phénoménogiques pour proposer une loi de comportement d'interface plus réaliste (Needleman, 1990; Tan et al., 2005; Nguyen and Levy, 2009). Le dernier objectif de cet axe de recherche sera d'inclure une description du comportement de l'interface non linéaire par un choix raisonné des paramètres satisfaisant les conditions d'existence thermodynamique des fonctions décrivant les phénomènes de décohésion interfaciale.

# Thème C : Comportement effectif dynamique des matériaux composites, effet de l'interphase / interface

La plupart des modèles micromécaniques dédiés à l'estimation du comportement effectif des composites a été élaborée en restant dans un formalisme 'statique' : en effet, ce sont bien des équations d'équilibre où les effets d'inertie sont négligées. Ainsi l'équation de Navier  $div\sigma = 0$  ou l'équation de

Laplace de transfert thermique  $div(\overrightarrow{grad}T) = 0$  ne présentent pas de termes d'inertie 'mécanique' ( $\rho \frac{\partial u}{\partial t}$ ) ou 'thermique' (à travers la diffusivité thermique *a* par  $\frac{1}{a} \frac{\partial T}{\partial t}$ ).

Rares sont les formulations 'statiques' qui peuvent se prévaloir d'une équivalence ou lien quelconque avec le formalisme dédié à un problème dynamique. Maxwell Garnett (1904) en optique a cependant établi les connexions entre les approches 'statiques' et 'dynamiques' en retrouvant la résistivité électrique apparente d'un composite établie par Maxwell (1873) en partant de l'équation dynamique de propagation des ondes électromagnétiques (formulation scalaire). Ce rapprochement est également connu sous l'intitulé de relation de Clausius-Mossotti-Lorenz-Lorentz et a permis de nombreuses applications dans les problèmes de transfert (Nan, 1993).

La formulation d'un problème de propagations d'ondes élastiques (vectorielles) requiert des informations supplémentaires (masse volumique des particules) et des hypothèses sur la hiérarchisation des longueurs (taille, espacement des particules et longueurs d'onde). La résolution du problème de propagation d'onde scalaire suppose que l'onde diffractée est identique ou proportionnelle au champ d'onde moyen 'homogène' (hypothèse de quasi-cristallinité de Lax, 1952). La détermination de cette onde moyenne dans le cas des ondes élastiques se complique par les phénomènes de superposition de paquets d'ondes interférant. Des hypothèses de troncature des développements asymptotiques doivent alors être posées pour accéder à une solution. Pour surmonter cette difficulté, une méthode alternative de résolution utilisant des fonctions de Green dynamiques permet ainsi de formuler une équation intégrale de dispersion d'onde moyenne valable pour toutes fréquences incidentes, propriétés élastiques et fractions volumiques des inclusions diffusantes (Kanaun and Levin, 2005; Sabina and Willis, 1988; Wang et al., 2005). Il est alors possible en théorie d'optimiser le composite au regard des résultats obtenus sur les vitesses de phase et facteur d'atténuation des ondes incidentes du modèle. La propagation des ondes dans les composites relève d'un domaine clé de caractérisation de la fiabilité des structures : le contrôle non destructif par ultrasons. Comme évoqué dans le *thème B*, des défauts et décohésions existent à l'interface entre les renforts et la matrice et affectent les performances d'un composite. L'interprétation des signaux émis par analyse par ultrasons repose sur une maîtrise des phénomènes de diffraction d'ondes dans les composites.

Ainsi, le principal objectif de cet axe du projet de recherche est de raffiner les solutions issues de la résolution du problème de propagation d'ondes élastiques dans les composites à différents types de signaux sources émis (ondes P de compression et S de cisaillement). L'étude de géométrie plus complexe que les classiques 'sphère' et 'cylindre' s'impose afin de reproduire au mieux la diversité des renforts utilisés. Enfin, le diagnostic d'endommagement des composites nécessite la résolution du problème fondamental de la propagation des ondes lors de présence d'interfaces imparfaites dans le cas de saut en déplacement mais surtout lors de saut de contrainte. Enfin, la conception des composites peut également

s'accompagner de l'introduction d'une phase viscoélastique enrobant les particules dont la présence agit sur les facteurs d'atténuation et d'absorption des ondes. Des critères de choix rigoureux de cet enrobage reposent sur la résolution du problème de propagation d'ondes élastiques en présence d'une interphase (élastique ou viscoélastique).

# Bibliographie

- Aboutajeddine, a., Neale, K.W., 2005. The double-inclusion model: A new formulation and new estimates. Mech. Mater. 37, 331–341.
- Alshits, V.L., Darinskii, A.N., Lothe, J., 1992. On the existence of surface waves in half-infinite anisotropic media with piezoelectric and piezomagnetic properties. Wave motion 16, 265–285.
- Argon, A.S., 1973. Chapter7, in: The Inhomogenity of Plastic Deformation. Ohio.
- Barnett, D.M., Lothe, J., 1975. Dislocations and line charges in anisotropic piezoelectric insolators. Phys. Status Solidi b 67, 105–111.
- Beckert, W., Kreher, W., Braue, W., Ante, M., 2001. Effective properties of composites utilising fibres with a piezoelectric coating. J. Eur. Ceram. Soc. 21, 1455–1458.
- Benveniste, Y., 2014. Exact results for the local fields and the effective moduli of fibrous composites with thickly coated fibers. J. Mech. Phys. Solids 71, 219–238.
- Benveniste, Y., 2006a. A general interface model for a three-dimensional curved thin anisotropic interphase between two anisotropic media 54, 708–734.
- Benveniste, Y., 2006b. Exact results for the local fields and the effective moduli of fibrous composites with thickly coated fibers. J. Mech. Phys. Solids 64, 708–734.
- Benveniste, Y., 1985. The effective mechanical behaviour of composite materials with imperfect contact between the constituents. Mech. Mater. 4, 197–208.
- Beurthey, S., Zaoui, A., 2000. Structural morphology and relaxation spectra of viscoelastic heterogeneous materials. Eur. J. Mech. A/Solids 19, 1–16.
- Bibes, M., Barthelemy, A., 2008. Multiferroics : Towards a magnetoelectric memory. Nat. Mater. 7, 425–426.
- Bichurin, M.I., Petrov, M., Kiliba, Y. V, 2002. Magnetic and magnetoelectric susceptibilities of a ferroelectric/ferromagnetic composite at microwave frequencies. Phys. Rev. B 66, 134404.
- Bonfoh, N., Hounkpati, V., Sabar, H., 2012. New micromechanical approach of the coated inclusion problem : Exact solution and applications. Comput. Mater. Sci. 62, 175–183.
- Brinson, L.C., Lin, W.S., 1998. Comparison of micromechanics methods for effective properties of multiphase viscoelastic composites. Compos. Struct. 41, 353–367.
- Cauvin, A., Testa, R., 1999. Damage mechanics: basic variables in continuum theories. Int. J. Solids Struct. 36, 747–761.
- Chandrasekhar, S., 1961. Hydrodynamic and hydromagnetic stability, Clarendon . ed. Oxford.
- Chen, T., Dvorak, G.J., Yu, C.C., 2007. Solids containing spherical nano-inclusions with interface stresses: Effective properties and thermal mechanical connections. Int. J. Plast. 44, 941–955.
- Chen, Z., Yu, S., Meng, L., Lin, Y., 2002. Effective properties of layered magneto-electro-elastic composites. Compos. Struct. 57, 177–182.
- Cherkaoui, M., Sabar, H., Berveiller, M., 1996. Elastic behavior of composites with coated inclusions:

micromechanical approach and applications. Compos. Sci. Technol. 56, 877-882.

- Cherkaoui, M., Sabar, H., Berveiller, M., 1995. Elastic composites with coated reinforcements: a micromechanical approach for nonhomothetic topolog. Int. J. Eng. Sci. 33, 829–843.
- Cho, K.M., Lee, S., Nutt, S.R., Duffy, J., 1993. Adiabatic Shear Band Formation during Dynamic Torsional De- formation of an HY-100 Steel. Acta Met. Mater. 41, 923–932.
- Christensen, R., Lo, K., 1979. Solutions for effective shear properties in three phase sphere and cylinder models. J. Mech. Phys. Solids 27, 315–330.
- Coddington, E.A., Levinson, N., 1955. Theory of ordinary differential equations. Mac Graw Hill, New-York.
- Cole, K., Cole, R., 1941. Dispersion and absorption in dielectrics. J. Chem. Phys. 9, 341.
- Considère, A., 1885. Mémoire sur l'emploi du fer et de l'acier dans les constructions. Ann. Ponts Chaussées 9, 574–775.
- Constable, I., Williams, J.G., Burns, D.J., 1970. Fatigue and cyclic thermal softening of thermoplastics. J. Mech. Engng Sci 12, 20–29.
- Coulibaly, M., Sabar, H., 2011. New integral formulation and self-consistent modeling of elastic– viscoplastic heterogeneous materials. Int. J. Solids Struct. 48, 753–763.
- Coulibaly, M., Sabar, H., 2010. Micromechanical modeling of linear viscoelastic behavior of heterogeneous materials. Arch. Appl. Mech. 81, 345–359.
- Davis, S.H., Kriegsmann, G.A., Laurence, R.L., Rosenblatt, S., 1983. Multiple Solutions and Hysteresis in Steady Parallel Flow. Phys. Fluids 26, 1177–1182.
- Dillon, O., 1966. The heat generated during the torsional oscillations of copper tubes. Int. J. Solids Struct. 2, 181–204.
- Dillon, O., 1962. Temperature generated in aluminium rods undergoing torsional oscillations. J. Appl. Phys. 33, 3100–3105.
- Dinzart, F., 1994. Bandes de cisaillement adiabatique: effets géométriques et effets de conduction. Thèse de doctorat, Université de Metz.
- Dinzart, F., Fressengeas, C., Molinari, A., 1994a. Localisation de la déformation plastique de cisaillement simple: effets de géométrie locale et d'inhomogénéité matérielle. Comptes Rendus l'Académie des Sci. - Ser. IIB - Mech. 319, 381–386.
- Dinzart, F., Fressengeas, C., Molinari, A., 1994b. The catastrophic development of shear localization in thermoviscoplastic materials. J. Phys. C8, 435–440.
- Dinzart, F., Lipiński, P., 2010. Self-consistent approach of the constitutive law of a two-phase viscoelastic material described by fractional derivative models. Arch. Mech. 62, 135–156.
- Dinzart, F., Lipiński, P., 2009. Improved five-parameter fractional derivative model for elastomers. Arch. Mech. 61, 459–474.
- Dinzart, F., Molinari, A., 2004. Linear stability analysis for a thermoviscoplastic material. Contin. Mech. Thermodyn. 17, 83–99.

- Dinzart, F., Molinari, A., 1998. Structure of adiabatic shear bands in thermo-viscoplastic materials. Eur. J. Mech. A/Solids 17, 923–938.
- Dinzart, F., Molinari, A., Herbach, R., 2008. Thermomechanical response of a viscoelastic beam under cyclic bending; self-heating and thermal failure. Arch. Mech. 60, 59–85.
- Dinzart, F., Sabar, H., 2012. Magnetoelectric effect in coated fibrous magnetic-piezoelectric composites. J. Intell. Mater. Syst. Struct. 23, 1249–1261.
- Dinzart, F., Sabar, H., 2011. Magneto-electro-elastic coated inclusion problem and its application to magnetic-piezoelectric composite materials. Int. J. Solids Struct. 48, 2393–2401.
- Dinzart, F., Sabar, H., 2009. Electroelastic behavior of piezoelectric composites with coated reinforcements: Micromechanical approach and applications. Int. J. Solids Struct. 46, 3556–3564.
- Dinzart, F., Sabar, H., Berbenni, S., 2016. Homogenization of multi-phase composites based on a revisited formulation of the multi-coated inclusion problem, Int. J. Eng. Sci. 100, 136–151.
- Dodd, B., Bai, Y., 1996. Width of adiabatic shear bands. Int. J. Plast. 12, 927-934.
- Dong, S., Li, J.F., Viehland, D., 2003. Ultrahigh magnetic field sensitivity in laminates of Terfenol-D and PB(Mg1/3Nb2/3)O3–PbTio3 crystals. Appl. Phys. Lett. 83, 2265.
- Drazin, P., Reid, W.H., 1981. Hydrodynamic stability. Cambridge University Press.
- Duan, H.L., Wang, J., Huang, Z.P., Karihaloo, B.L., 2005. Eshelby formalism for nano-inhomogeneities. Proc. R. Soc. London, A 461, 3335–3353.
- Duan, H.L., Yi, X., Huang, Z.P., Wang, J., 2007. A unified scheme for prediction of effective moduli of multiphase composites with interface effects . Part I: Theoretical framework. Mech. Mater. 39, 81– 93.
- Dunn, M., Taya, M., 1993. An analysis of piezoelectric composite materials containing ellipsoidal inhomogeneities. Proc. R. Soc. London, A 443, 265–287.
- Enelund, M., Olsson, P., 1999. Damping described by fading memory-analysis and application to fractional derivative models. Int. J. Solids Struct. 36, 828–859.
- Eshelby, J.D., 1959. The elastic field outside an ellipsoidal inclusion. Proc. R. Soc. Lond. A 252, 561– 569.
- Eshelby, J.D., 1957. The determination fo the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems. Proc. R. Soc. London, A 241, 376–396.
- Fisher, F.T., Brinson, L.C., 2001. Viscoelastic interphases in polymer–matrix composites: theoretical models and finite-element analysis. Compos. Sci. Technol. 61, 731–748.
- Fond, C., Géhant, S., Schirrer, R., 2002. Effects of mechanical interactions on the hydrostatic stress in randomly distributed rubber particles in an amorphous polymer matrix. Polymer (Guildf). 43, 909– 919.
- Fond, C., Lobbrecht, A., Schirrer, R., 1996. Polymers toughened with rubber microspheres: an analytical solution for stresses and strains in the rubber particles at equilibrium and rupture. Int. J. Fract. 77, 141–159.

- Fox, G., Wuthrich, C., Muller, C., Setter, N., 1997. Piezoelectric coatings for active optical fiber devices. Ferroelectrics 201, 13–22.
- Fressengeas, C., Molinari, A., 1987. Instability and localization of plastic flow in shear at high strain rates. J. Mech. Phys. Solids 35, 185–211.
- Friebel, C., Doghri, I., Legat, V., 2006. General mean-field homogenization schemes for viscoelastic composites containing multiple phases of coated inclusions. Int. J. Solids Struct. 43, 2513–2541.
- Friedrich, C., Braun, H., 1992. Generalized Cole-Cole behavior and its rheological relevance. Rheol. Acta 31, 309–332.
- Géhant, S., Fond, C., Schirrer, R., 2003. Criteria for cavitation of rubber particles: Influence of plastic. Int. J. Fract. 122, 161–175.
- Gel'fand, I.M., Shilov, G.E., 1964. Generalized functions: volume I properties and operations, Academic P. ed. San Diego LA.
- Gent, A., Lindley, P., 1959. Internal rupture of bonded rubber cylinders in tension. Proc. R. Soc. London, A 249, 195–205.
- George, S., Ramamurthy, K., Anand, J., Groeninckx, G., Varughese, K., Thomas, S., 1999. Rheological behaviour of thermoplastic elastomers from polypropylene/acrylonitrile–butadiene rubber blends: effect of blend ratio, reactive compatibilization and dynamic vulcanization. Polymer (Guildf). 40, 4325–4344.
- George, S., Reethamma, J., Sabu, T., Varughese, K., 1995. Blends of isotactic polypropylene and nitrile: morphology, mechanical properties and compatibilization. Polymer (Guildf). 36, 4405–4416.
- Gibbs, J.W., 1928. The Collected Works of J. W. Gibbs. New-York.
- Goodier, J., 1933. Concentration of stress around spherical and cylindrical inclusions and flaws. J. Appl. Mech. 55, 39–44.
- Gurtin, M.E., Murdoch, A.I., 1975. A continuum theory of elastic material surfaces. Arch. Ration. Mech. Anal. 57, 291–323.
- Hadamard, J., 1903. Leçons sur la propagation des ondes et les équations de l'hydrodynamique. Hermann, Paris.
- Harshe, G., Dougherty, J.P., Newnham, R.E., 1993. Theoretical modeling of multilayer magnetoelectric composites. Int. J. Appl. Electromagn. Mech. 4, 145–159.
- Hashin, Z., 2002. Thin interphase/ imperfect interface in elasticity with application to coated fiber composites. J. Mech. Phys. solids 50, 2509–2537.
- Hashin, Z., 1991. The spherical inclusion with imperfect interface. J. Appl. Mech. 58, 444–449.
- Hashin, Z., 1979. Analysis of properties of composites with anisotropic constituents- a survey. J. Appl. Phys. 46, 481–595.
- Hashin, Z., 1965. Viscoelastic behavior of heterogeneous media. J. Appl. Phys. Appl Mech 32, 630-6.
- Hashin, Z., Rosen, B., 1964. The elastic moduli of fiber reinforced materials. J. Appl. Phys. 31, 1–9.
- Haward, R., Owen, R., 1973. The yielding of a two dimensional void assembly in an organic class. J.

Mater. Sci. 8, 1136–1144.

- Hershey, A. V, 1954. The elasticity of an isotropic aggregate of anisotropic cubic crystals. J. Appl. Mech. 21, 236–240.
- Hervé, E., Zaoui, A., 1995. Elastic behaviour of multiply coated fibre- reinforced composites. Int. J. Appl. Electromagn. Mech. J. Engng Sci. 33, 1419–1433.
- Hervé, E., Zaoui, A., 1993. n-Layered inclusion-based micromechanical modeling, International Journal of Engineering Science. Int. J. Eng. Sci. 31, 1–10.
- Hervé, E., Zaoui, A., 1990. Modeling the effective behaviour of nonlinear matrix-inclusion composites. Eur. J. Mech. A/ Solids 6, 505–515.
- Hill, R., 1983. Interfacial operators in the mechanics of composite media. J. Mech. Phys. solids 31, 347–357.
- Hong, W., 2011. Modeling viscoelastic dielectrics. J. Mech. Phys. Solids 59, 637–650.
- Hori, M., Nemat-nasser, S., 1999. On two micromechanics theories for determining micro macro relations in heterogeneous solids. Mech. Mater. 31, 667–682.
- Hori, M., Nemat-nasser, S., 1998. Universal bounds for effective piezoelectric moduli 30, 1–19.
- Hori, M., Nemat-Nasser, S., 1993. Double-inclusion model and overall moduli of multi-phase composites. Mech. Mater. 14, 189–206.
- Hu, G.K., Weng, G.J., 2000. Connections between the double-inclusion model and the Ponte Castaneda-Willis, Mori-Tanaka, and Kuster-Toksoz models. Mech. Mater. 32, 495–503.
- Hutchinson, J., 1976. Bounds and self-consistent estimates for creep of polycrystalline materials. Proc. R. Soc. London A 348, 101–127.
- Jiang, B., Batra, R.C., 2002. Effective Electroelastic Properties of a Piezocomposite with Viscoelastic and Dielectric Relaxing Matrix 12.
- Jiang, C.P., Tong, Z.H., Cheung, Y.K., 2001. A generalized self-consistent method for piezoelectric fiber reinforced composites under antiplane shear. Mech. Mater. 33, 295–308.
- Johnson, A.C., Hayes, S.A., Jones, F.R., 2005. An improved model including plasticity for the prediction of the stress in fibres with an interface/interphase region. Compos. Part A Appl. Sci. Manuf. 36, 263–271.
- Joseph, D.D., 1965. Stability of frictionally-heated flow. Phys. Fluids 8, 2195–220.
- Kachanov, L., 1986. Introduction to continuum damage mechanics. The Netherlands: Martinus Nijhoff Publishers.
- Kachanov, L., 1958. On the creep fracture time. Nauk USSR Otd Tech 31.
- Kanatani, K., 1984. Distribution of directional data and fabric tensors. Int. J. Eng. Sci. 22, 149–164.
- Kanaun, S.K., Levin, V.M., 2005. Propagation of shear elastic waves in composites with a random set of spherical inclusions (effective field approach ). Int. J. Solids Struct. 42, 3971–3997.
- Kapitza, P. l, 1941. The study of heat transfer in helium. J. Phys 4, 181–210.

Kari, S., Berger, H., Gabbert, U., 2007. Numerical evaluation of effective material properties of randomly

distributed short cylindrical fibre composites. Comput. Mater. Sci. 39, 198-204.

- Kouddane, R., Molinari, A., Canova, G., 1993. Self-consistent modelling of heterogeneous viscoelastic and elastoplastic materials., in: (Eds, M.T.C.R.J.S.F. (Ed.), Large Plastic Deformations, Fundamentals and Application to Metal Forming. pp. 185–192.
- Kouddane, R., Molinari, A., Canova, G.R., 1993. Self-consistent modelling of heterogeneous viscoelastic and elastoplastic materials, MECAMAT'91. Balkema, Rotterdam.
- Kröner, E., 1961. Zur plastischen verformung des vielkristalls. Acta Mater. 155–161.
- Kunin, I.A., 1983. Elastic Media with Microstructure II: Three Dimensionnal Models. Berlin, Heidelberg, New-York, Tokyo.
- Kuo, H., Pan, E., 2011. Effective magnetoelectric effect in multicoated circular fibrous multiferroic composites. J. Appl. Phys. 104901, 1–6.
- Kuo, H.-Y., 2011. Multicoated elliptic fibrous composites of piezoelectric and piezomagnetic phases. Int. J. Eng. Sci. 49, 561–575
- Laws, N., McLaughlin, R., 1978. Self-consistent estimates for the visco-elastic creep compliances of composite materials. Proc. R. Soc. Lond. A 359, 251–273.
- Lax, M., 1952. Multiple scattering of waves II. The effective field in dense systems. Phys. Rev. 85, 621–629.
- Lee, J., Boyd, J., Lagoudas, D., 2005. Effective properties of three-phase electro-magneto-elastic composites. Int. J. Eng. Sci. 43, 790–825.
- Lemaître, J., Chaboche, J., 1988. Mécaniques des matériaux solides. Dunod Paris.
- Leroy, Y.M., Molinari, A., 1992. Stability of steady states in shear zones. J. Mech. Phys. Solids 40, 181– 212.
- Lesieutre, G A; Govindswamy, K., 1996. 'Finite element modeling of frequency dependent and temperature dependent dynamic behavior of viscoelastic materials in simple shear. Int. J. Solids Struct. 33, 419–432.
- Lévesque, M., Gilchrist, M.D., Bouleau, N., Derrien, K., Baptiste, D., 2007. Numerical inversion of the Laplace–Carson transform applied to homogenization of randomly reinforced linear viscoelastic media. Comput. Mech. 40, 771–89.
- Li, J., 2000. Magnetoelectroelastic multi-inclusion and inhomogeneity problems and their applications in composite materials. Int. J. Eng. Sci. 38, 1993–2011.
- Li, J., Dunn, M., 1998. Anisotropic coupled-field inclusion and inhomogeneity problems. Philos. Mag. A 77, 1341–1350.
- Li, J., Weng, G., 1996. Effect of a viscoelastic interphase on the creep and stress/strain behavior of fiberreinforced polymer matrix composites. Compos. Part B 27B, 589–598.
- Lin, C.-H., Muliana, A., 2013. Micromechanics models for the effective nonlinear electro-mechanical responses of piezoelectric composites. Acta Mech. 224, 1471–1492.
- Lin, Y., Sodano, H., 2010. A double inclusion model for multiphase piezoelectric composites. Smart

Mater. Struct. 19, 035003.

- Lipinski, P., Barhdadi, E.H., Cherkaoui, M., 2006. Micromechanical modelling of an arbitrary ellipsoidal multi-coated inclusion. Philos. Mag. 86, 1305–1326.
- Liu, Y., Wan, J., Liu, J., Nan, C., 2003. Numerical modeling of magnetoelectric effect in composite structure. J. Appl. Phys. 94, 5111–5117.
- Mallarino, S., Chailan, J.-F., Vernet, J.-L., 2009. Interphase study in cyanate/glass fibre composites using thermomechanical analysis and micro-thermal analysis. Compos. Sci. Technol. 69, 28–32.
- Mandel, J., 1966. Mécanique des milieux continus. Paris.
- Masson, R., Bornert, M., Suquet, P., Zaoui, A., 2000. An affine formulation for the prediction of the effective properties of nonlinear composites and polycrystals. J. Mech. Phys. Solids 48, 1203–1227.
- Masson, R., Zaoui, A., 1999. Self-consistent estimates for the rate-dependent elastoplastic behaviour of polycrystalline materials. J. Mech. Phys. Solids 47, 1543–1568.
- Maxwell Garnett, J.C., 1904. Colours in metal glasses and in metallic films. Philos. Trans. Roy. Soc. Lond. A 203, 385–420.
- Maxwell, J.C., 1873. A Treatise on Electricity and Magnetism, vol1, Clarendon . ed. Oxford.
- Menges, G., Alf, E., 1975. Creep, self-heating and failure of thermoplastics under pulsating tensile stress. J. elastomers Plast. 7, 47–64.
- Mercier, S., Jacques, N., Molinari, A., 2005. Validation of an interaction law for the Eshelby inclusion problem in elasto-viscoplasticity. Int. J. Solids Struct. 42, 1923–1941.
- Mercier, S., Molinari, A., Berbenni, S., Berveiller, M., 2012. Comparison of different homogenization approaches for elastic viscoplastic materials. Model. Simul. Mater. Sci. Eng. 20, 024004.
- Molinari, A., Canova, G., Ahzi, S., 1987. A self-consistent approach of the large deformation polycrystals viscoplasticity. Acta Metall. Materalia 35, 2983–2994.
- Mori, T., Tanaka, K., 1973a. Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions. Acta Met. 21, 571–574.
- Mori, T., Tanaka, K., 1973b. Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions. Acta Metall. 21, 571–574.
- Muliana, A., Li, K., 2010. Time-dependent response of active composites with thermal, electrical, and mechanical coupling effect. Int. J. Eng. Sci. 48, 1481–1497.
- Mura, T., 1987. Micromechanics of defects in Solids. Kluwer Academic Publisher, Boston.
- Nakason, C., Saiwari, S., Kaesaman, A., 2006. Rheological properties of maleated natural rubber/polypropylene blends with phenolic modified polypropylene and polypropylene-g-maleic anhydride compatibilizers. Polym. Test. 25, 413–423.
- Nan, C.W., 1993. Physics of inhomogeneous inorganic materials. Prog. Mater. Sci. 37, 1–116.
- Nan, C.-W., Bichurin, M.I., Dong, S., Viehland, D., Srinivasan, G., 2008. Multiferroic magnetoelectric composites: Historical perspective, status, and future directions. J. Appl. Phys. 103, 031101.
- Nan, C.-W., Birringer, R., Clarke, D.R., Gleiter, H., 1997. Effective thermal conductivity of particulate

composites with interfacial thermal resistance. J. Appl. Phys. 81, 6692-6699.

- Needleman, A., 1990. An analysis of tensile decohesion along an interface. J. Mech. Phys. Solids 38, 289–324.
- Nguyen, C., Levy, A.J., 2009. An exact theory of interfacial debonding in layered elastic composites. Int. J. Solids Struct. 46, 2712–2723.
- Nguyen, S., Dormieux, L., Y, L., Sanahuja, J., 2009. Propagation de fissure et endommagement dans un milieu viscoélastique linéaire non vieillissant. 19ème Congrès Français de Mécanique Grenoble,.
- Nguyen, S.T., Jeannin, L., Dormieux, L., Renard, F., 2013. Fracturing of viscoelastic geomaterials and application to sedimentary layered rocks. Mech. Res. Commun. 49, 50–56.
- Nguyen, T.T., 2012. Modélisation par éléments finis de matériaux composites magnéto-électriques. Thèse Génie électrique Université de Paris 11.
- Nie, S., Basaran, C., 2005. A micromechanical model for effective elastic properties of particulate composites with imperfect interfacial bonds. Int. J. Solids 42, 4179–4191.
- Nye, J.F., 1957. Physical properties of crystals: their representation by tensors and matrix, Clarendon. ed. Oxford.
- Oldham, K., Spanier, J., 1974. The Fractional Calculus, Academic P. ed. New York.
- Olmos, D., Bagdi, K., Mózcó, J., Pukánszky, B., González-Benito, J., 2011. Morphology and interphase formation in epoxy/PMMA/glass fiber composites: effect of the molecular weight of the PMMA. J. Colloid Interface Sci. 360, 289–99.
- Ozkoc, G., Bayram, G., Bayramli, E., 2004. Effects of polyamide 6 incorporation to the short glass fiber reinforced ABS composites: an interfacial approach. Polymer (Guildf). 45, 8957–8966.
- Paquin, A., Sabar, H., Berveiller, M., 1999. Integral formulation and self-consistent modeling of elastoviscoplastic behavior of heterogeneous materials. Arch. Appl. Mech. 69, 14–35.
- Park, S.W., Schapery, R.A., 1999. Methods of interconversion between linear viscoelastic material functions. Part I: a numerical method based on Prony series. Int. J. Solids Struct. 36, 1653–1675.
- Park, Y., Oh, K., Paek, U., 1999. Residual stresses in a dual-coated fiber with depressed primary coating (DIC). J. Light. Technol. 17, 1823–1834.

Petrov, M., Srinivasan, G., Bichuron, M.I., Gupta, A., 2007. Theory of magnetoelectric effects in ferrite piezoelectric nanocomposites. Phys. Rev. B 75, 224407.

- Pichler, B., Dormieux, L., 2007. Cohesive zone size of microcracks in brittle materials. Eur. J. Mech. -A/Solids 26, 956–968.
- Pichler, C., Lackner, R., Aigner, E., 2012. Generalized self-consistent scheme for upscaling of viscoelastic properties of highly-filled matrix-inclusion composites – Application in the context of multiscale modeling of bituminous mixtures. Compos. Part B Eng. 43, 457–464.
- Qu, J., 1993. Eshelby tensor for an elastic inclusion with slightly weakened interface. J. Appl. Mech. 60, 1046–1050.
- Qu, J., 1993. The effect of slightly weakened interfaces on the overall elastic properties of composite

materials. Mech. Mater. 14, 269-281.

- Renaud, F., Dion, J., 2011. A new identification method of viscoelastic behavior: Application to the generalized Maxwell model. Mech. Syst. Signal Process. 25, 991–1010.
- Ricaud, J.-M., Masson, R., 2009. Effective properties of linear viscoelastic heterogeneous media: Internal variables formulation and extension to ageing behaviours. Int. J. Solids Struct. 46, 1599–1606.
- Rittel, D., 2000. An investigation of the heat generated during cyclic loading of two glassy polymers. Part I: Experimental. Mech. Mater. 32, 131–147.
- Rittel, D., Brill, a, 2008. Dynamic flow and failure of confined polymethylmethacrylate. J. Mech. Phys. Solids 56, 1401–1416.
- Rittel, D., Rabin, Y., 2000. An investigation of the heat generated during cyclic loading of two glassy polymers. Part II: Thermal analysis. Mech. Mater. 32, 149–159.
- Rougier, Y., Stolz, C., Zaoui, A., 1994. Self-consistent modelling of elastic-viscoplastic polycrystals. C.R. Acad. Sci. 318, 145–151.
- Rougier, Y., Stolz, C., Zaoui, A., 1993. Representation spectrale en viscoelasticite lineaire des materiaux hétérogènes. C.R. Acad. Sci. Serie II 316, 1517–1522.
- Sabar, H., Berveiller, M., Favier, V., 2002a. A new class of micro macro models for elastic viscoplastic heterogeneous materials. Int. J. Solids Struct. 39, 3257–3276.
- Sabar, H., Berveiller, M., Favier, V., Berbenni, S., 2002b. A new Class of micro-macro models for elasticviscoplastic heterogeneous Materials. Int. J. Solids Struct. 39, 3257–3276.
- Sabina, F.J., Willis, J.R., 1988. A simple self-consisten analysis of wave propagation in particulate composites. Wave Motion 10, 127–142.
- Schapery, R.A., 1964. Effect of cyclic loading on the temperature in viscoelastic media with variable properties. AIAA J. 2, 827–835.
- Schapery, R.A., Cantey, D.E., 1964. 'Thermomechanical response studies of solid propellants subjected to cyclic loading and random loading. AIAA J.
- Schapery, R.A., Park, S.W., 1999. Methods of interconversion between linear viscoelastic material functions. Part II: an approximate analytical method. Int. J. Solids Struct. 36, 566–588.
- Sevostianov, I., Kachanov, M., 2007. Effect of interphase layers on the overall elastic and conductive properties of matrix composites. Applications to nanosize inclusion. Int. J. Solids Struct. 44, 1304– 1315.
- Shen, M.H., Chen, S.N., Chen, F.M., 2005. Piezoelectric study on confocally multicoated elliptical inclusion. Int. J. Eng. Sci. 43, 1299–1312.
- Shiah, Y., Huang, C., Huang, J., 2006. Electromechanical responses of optical fibers with piezoelectric coatings. J. chinese Inst. Eng. 29, 893–902.
- Sidoroff, F., 1981. Description of anisotropic damage application to elasticity, in: IUTAM Colloqium on Physical Nonlinearities in Structural Analysis. Springer-Verlag, pp. 237–244.
- Sobczak, L., Lang, R., Haider, A., 2012. Polypropylene composites with natural fibers and wood -

general mechanical property profiles. Compos. Sci. Technol. 72, 550-557.

- Srinivas, S., Li, J.Y., Zhou, Y.C., Soh, K., 2006. The effective magnetoelectroelastic moduli of matrixbased multiferroic composites. J. Appl. Phys. 99, 043905.
- Staker, M.R., 1981. The relation between adiabatic shear instability strain and material properties. Acta Metall. 29, 683–689.
- Steenbrink, A.C., Van der Giessen, E., 1999. On cavitation, post-cavitation and yield in amorphous polymer-rubber blends. J. Mech. Phys. Solids 47, 732–765.
- Sudak, L.J., 2003. Effect of an interphase layer on the electroelastic stresses within a three-phase elliptic inclusion. Int. J. Eng. Sci. 41, 1019–1039.
- Sue, H., Yee, A., 1988. Deformation behaviour of a polycarbonate plate with a circular hole : finite element model and experimental observations. Polymer (Guildf). 29, 1619–1624.
- Suquet, P., 2012. Four exact relations for the effective relaxation function of linear viscoelastic composites. Comptes Rendus Mech. 340, 387–399.
- Suquet, P., 1985. Elements of homogenisation for inelastic solid mechanics, in: Homogenisation Techniques for Composite Media E. Sanchez-Palencia et A. Zaoui Eds. Berlin Springer Verlag. pp. 193–278.
- Suresh, S., 1991. Fatigue of materials, Cambridge . ed.
- Tan, H., Huang, Y., Liu, C., Geubelle, P.H., 2005. The Mori-Tanaka method for composite materials with nonlinear interface debonding. Int. J. Plast. 21, 1890–1918.
- Tang, T., Yu, W., 2008. Variational asymptotic homogenization of heterogeneous electromagnetoelastic materials. Int. J. Eng. Sci. 46, 741–757.
- Tauchert, T.R., 1966. Heat generation in a viscoelastic solid. Acta. Mech. 3, 385–396.
- Ting, E.C., 1972. 'Heat generated in a torsional spring subjected to sinusoidal oscillations. J. Sound Vib. 22, 81–92.
- Ting, E.C., Tuan, J.L., 1973. Effect of internal pressure on the temperature distribution in a viscoelastic cylinder. Int. J. Mech. Sci. 15, 861–871.
- Tong, Z.H., Lo, S.H., Jiang, C.P., Cheung, Y.K., 2008. An exact solution for the three-phase thermoelectro-magneto-elastic cylinder model and its application to piezoelectric–magnetic fiber composites. Int. J. Solids Struct. 45, 5205–5219.
- Torah, R.N., Beeby, S.P., White, N.M., 2004. Improving the piezoelectric properties of thick-film PZT: the influence of paste composition , powder milling process and electrode material, Sensors and Actuators A: Physical, 110, 378–384.
- Tormey, J.F., Britton, S.C., 1963. Effects of cyclic loading on solid propellant grain structure. AIAA J 1763–1770.
- Walpole, L., 1981. Elastic behavior of composite materials: theoretical foundation. Adv. Appl. Mech. 21, 169–242.
- Wang, B., 1992. Three dimensional analysis of an ellipsoidal inclusion in a piezoelectric material. Int. J.

Solids Struct. 29, 293-308.

- Wang, H., Pan, E., Chen, W., 2010. Enhancing magnetoelectric effect via the curvature of composite cylinder. J. Appl. Phys. 107, 093514.
- Wang, J., Michelitsch, T.M., Gao, H., Levin, V.M., 2005. On the solution of the dynamic Eshelby problem for inclusions of various shapes. Int. J. Solids Struct. 42, 353–363.
- Wang, M.-C., Huang, M.-S., Wu, N.-C., 2001. Effects of 30B2O3-25Bi2O3-45CdO glass addition on the sintering of 12Pb (Ni1/3Sb2/3) O3-40PbZrO3-48PbTiO3 piezoelectric ceramics. J. Eur. Ceram. Soc. 21, 695–701.
- Wang, X., Pan, E., 2007. Magnetoelectric effects in multiferroic fibrous composite with imperfect interface. Phys. Rev. B 76, 1–7.
- Weng, G.J., 1981. Self-consistent determination of time-dependant behavior of metals. J. Appl. Mech. 48, 41–47.
- Willis, J.R., Ponte Castañeda, P., 1995. The effect of spatial distribution on the effective behavior of composite materails and cracked media. J. Mech. Phys. Solids 43, 1919–1951.
- Wineman, A., Kolberg, R., 1997. Response of beams of non-linear viscoelastic materials exhibiting strain-dependent stress relaxation. Int. J. Non-Linear Mech. 32, 863–883.
- Wright, T.W., Ockendon, H., 1992. A model for fully formed shear bands. J. Mech. Phys. Solids 40, 1217–1226.
- Xie, S.H., Li, J.Y., Liu, Y.Y., Lan, L.N., Jin, G., Zhou, Y.C., 2008. Electrospinning and multiferroic properties of NiFe2O4-Pb(Zr0.52Ti0.48)03 composite nanofibers. J. Appl. Phys. 104, 1–7.
- Yanase, K., Ju, J.W., 2012. Effective elastic moduli of spherical particle reinforced composites containing imperfect interfaces. Int. J. Damage Mech. 21, 97–127.
- Yueh, C.S., Weng, C.I., 1996. Linear stability analysis of plane Couette flow with viscous heating. Phys. Fluids 8, 1802–1813.
- Zhang, J., He, C., 2007. A three-phase cylindrical shear-lag model for carbon nanotube composites. Acta Mech. 196, 33–54.
- Zhong, Z., Meguid, S.A., 1997. On the Elastic Field of a Spherical Inhomogeneity with an Imperfectly Bonded Interface. J. Elast. 91–113.