الديمقراطية الجمهورية الجزائرية
الشعبية

République Algérienne Démocratique et Populaire

وزارة التعليم العالي والبحث العلمي

Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

جامعة الشهيد الشيخ العربي التبسي - تبسة

Mémoire

Présentée pour obtenir le diplôme de

Master

Spécialité : Génie des matériaux

Filière : Génie mécanique

THEME

Étude du comportement mécaniques et rhéologique des polymères

Présenté par :

HEMAIZIA Rima

Mémoire soutenue le 10 / 06/ 2025 devant le jury composé de

Président :	**KHELIFA Houcine**	MCB	Université cheikh Larbi Tebessi – Tébessa
Encadreur :	**LAOUADI Bouzid**	MCB	Université cheikh Larbi Tebessi– Tébessa
Examinateur :	**BOUNOUARA Abdelouahab**	MCB	Université cheikh Larbi Tebessi – Tébessa

Promotion : 2024/2025

Au terme de ce travail, nous tenons à exprimer notre profonde gratitude envers Dieu Tout-Puissant, qui nous a accordé la force, le courage et la patience nécessaires pour mener à bien ce mémoire.

الحمد لله حمدًا كثيرًا

Nos sincères remerciements vont à notre encadreur dont la confiance, les remarques constructives et les encouragements ont été d'une grande valeur tout au long de cette recherche à caractère recherche-développement.

Nous adressons également nos vifs remerciements à tous les membres du jury pour avoir accepté d'évaluer et de commenter ce travail avec attention.

Notre reconnaissance va aussi à l'ensemble de nos enseignants, pour leur dévouement et leur volonté constante de nous guider vers la réussite tout au long de notre cursus universitaire.

Enfin, nous remercions chaleureusement toutes les personnes qui, de près ou de loin, ont contribué à l'élaboration de ce travail.

DEDICACE

Merci Allah de m'avoir donné la capacité d'écrire et de réfléchir, la force d'y croire, la patience d'aller jusqu'au du rêve.

Je dédié ce modeste travail :

A l'homme de ma vie, mon exemple éternel, mon soutien moral et source de joie et de bonheur, celui qui s'est toujours sacrifié pourrie voir réussir, qui éclaire mon chemin et m'illumine de douceur et amour, que Dieu te garde pour nous mon père.

A ma très chère maman en signe d'amour, de reconnaissance et de gratitude pour tous les soucis et les sacrifices dont elle a fait preuve à mon égard.

A la prunelle de mes yeux, mon petit frère Haider,
la bougie de la maison.

A mes sœurs, qui mon toujours soutenu moralement et encouragé.

A tous les membres de ma famille: tente, oncles, cousin maternelle et paternelle.

A ceux que j'aime beaucoup, qui m'ont toujours soutenue et étaient toujours à mes côtés, mes chers amis.

Je termine avec la personne qui a partagé tous le travail, qui a supporté mon humeur au moment de stresse, mon binôme et mon bon amis.

Et à tous ceux qui ont contribué de près ou de loin pour que ce projet soit possible, je vous dis merci.

Résumé

Dans notre travail on a étudié le comportement mécanique et rhéologique de deux polymères thermoplastiques semi-cristallins largement utilisés dans l'industrie : le polypropylène (PP) et le polyéthylène à haute densité (PEHD). L'objectif principal est de comprendre comment leurs structures moléculaires, leur cristallinité, leur morphologie et leurs conditions d'utilisation influencent leurs propriétés mécaniques et viscoélastiques.

Une analyse du comportement mécanique via modélisation et essais expérimentaux (traction, fluage, relaxation). Le PP se distingue par sa rigidité et bonne tenue à la traction, mais est fragile à basse température, tandis que le PEHD offre une excellente résistance aux chocs. Les mécanismes de déformation (fissuration...) sont liés à la microstructure des matériaux (sphérolites).

Ainsi, une étude rhéologique met en lumière le comportement viscoélastique complexe des deux polymères, avec des phénomènes de relaxation dépendant de la température, du temps et de la fréquence. Ce travail éclaire les facteurs clés influençant la performance des polymères PP et PEHD, fournissant une base scientifique pour leur optimisation industrielle et ouvrant des perspectives pour le développement de nouveaux composites.

Mots-clés : Polypropylène à haute densité, Polyéthylène, Traction, Fluage, Relaxation.

الملخص

في هذا العمل، قمنا بدراسة السلوك الميكانيكي والرّيولوجي لنوعين من البوليمرات الحرارية شبه المتبلورة والتي تُستخدم على نطاق واسع في الصناعة، وهما: البولي بروبيلين (PP) والبولي إيثيلين عالي الكثافة .(PEHD) الهدف الرئيسي هو فهم كيف تؤثر البنية الجزيئية، والتبلور، والمورفولوجيا، وظروف الاستخدام على الخصائص الميكانيكية واللزوجية المرنة لهذه المواد. تم تحليل السلوك الميكانيكي من خلال النمذجة والاختبارات التجريبية (الشد، الزحف، الاسترخاء). يتميز البولي بروبيلين بصلابته ومقاومته الجيدة للشد، لكنه هش عند درجات الحرارة المنخفضة، في حين يتمتع البولي إيثيلين عالي الكثافة بمقاومة ممتازة للصدمات. وترتبط آليات التشوه بالبنية الدقيقة للمواد (الكريات البلورية - السفيروليتات).

كما أبرزت الدراسة الريولوجية السلوك اللزوجي المرن المعقد لكلا البوليمرين، مع ظواهر استرخاء تعتمد على درجة الحرارة والزمن والتردد. يسلط هذا العمل الضوء على العوامل الرئيسية التي تؤثر في أدائهما، مما يوفر قاعدة علمية لتحسين استخدامها الصناعي ويفتح آفاقًا لتطوير مركبات جديدة.

الكلمات المفتاحية : البولي بروبيلين، البولي إيثيلين عالي الكثافة، الشد، الزحف، الاسترخاء.

.

Abstract

In this work, we studied the mechanical and rheological behavior of two widely used semi-crystalline thermoplastic polymers: polypropylene (PP) and high-density polyethylene (HDPE). The main objective is to understand how molecular structure, crystallinity, morphology, and usage conditions influence the mechanical and viscoelastic properties of these materials.

The mechanical behavior was analyzed through modeling and experimental tests (tensile, creep, and relaxation). Polypropylene is characterized by its stiffness and good tensile performance but becomes brittle at low temperatures, whereas high-density polyethylene offers excellent impact resistance. The deformation mechanisms are closely related to the microstructure of the materials (spherulites).

The rheological study also highlighted the complex viscoelastic behavior of both polymers, with relaxation phenomena dependent on temperature, time, and frequency. This work sheds light on the key factors influencing **their performance**, providing a scientific basis for optimizing their industrial use and opening new perspectives for the development of advanced composites.

Keywords: polypropylene, high-density polyethylene, tensile, creep, relaxation.

PP	Polypropylène
PE	Polyéthylène
PEHD	Polyéthylène à Haute Densité
PEBD	Polyéthylène à Basse Densité
Tg	Température de transition vitreuse
Tf	Température de fusion
E	Module d'élasticité (Young)
σ	Contrainte
ε	Déformation
η	Viscosité
G'	Module de stockage (composante élastique)
G''	Module de perte (composante visqueuse)
Tan φ	Coefficient d'amortissement
MFI	Indice de fluidité (Melt Flow Index)
Xc	Taux de cristallinité
Tm	Température de fusion cristalline
Vc	Volume cristallin
V	Volume total de l'échantillon
ZN	Ziegler-Natta (catalyseur)
EPP	Polypropylène expansé
EPDM	Éthylène-Propylène-Diène Monomère
EPM	Éthylène-Propylène Monomère
ASTM	American Society for Testing and Materials
ISO	International Organisation for Standardisation

Liste des matières

Dédicace

Remerciements ..... **I**

Résumé ..... **II**

ملخص ..... **III**

Abstract ..... **IV**

Table des matières ..... **V**

Liste des figures ..... **VI**

Liste des tableaux ..... **VII**

Liste des abréviations ..... **VIII**

Introduction générale 1

Chapitre I : Étude bibliographique

I.1. Généralités sur les polymères 3

I.2. Polypropylène (PP) 3

I.2.1. Historique 4

I.2.2. Définition 6

I.2.3. Propriétés d'usage des polypropylènes 6

I.2.3.1. Propriétés physiques 7

I.2.3.2. Propriétés mécaniques 7

I.2.3.3. Propriétés chimiques 8

I.2.3.4. Propriétés électriques 8

I.2.3.5. Propriétés thermiques 9

I.3. Microstructure du polypropylène 10

I-3.1. Les phases cristallines 12

I-3.2. Morphologies cristallines de α et β 12

I.4. Mobilité moléculaire dans les cristallites 13

I-4.1. Identification des phénomènes de relaxation 13

I.5. Cristallisation du PP non chargé 14

I-5.1. Germination homogène des phases α et β 15

I-5.2. Croissance des phases α et β..... 15

I.6. Polyéthylène haute densité (PEHD)..... 15

I.6.1. Synthèse 15

I.6.2. Polyéthylènes haute densité (PEHD)..... 15

I.6.3. Polyéthylènes basse densité (PEBD)..... 16

I.7. Définition du polyéthylène 17

I.7.1. La structure chimique du polyéthylène haute densité..... 17

I.8. Les caractéristiques du PEHD 18

I.8.1. Propriétés physiques et thermiques 18

I.8.2. Le taux de cristallinité..... 19

I.8.3. Propriétés électriques..... 20

I.8.4. Propriétés mécaniques 22

I.9. Domaine d'application du PEHD..... 22

Chapitre II : Comportement mécanique des polymères

II.1. Introduction 22

II-2. Comportement des matériaux 22

II.3. Structure et morphologie des polymères 25

1. Polyéthylène haute densité (PEHD) 25

2. Polypropylène (PP) 25

II.4. Propriétés fondamentales des polymères..... 26

1. Polyéthylène haute densité (PEHD) 26

2. Polypropylène (PP)..... 26

II.5. Propriétés mécaniques des polymères 26

II.5.1. Comportement thermique..... 26

II.5.2. Masse volumique 28

II.5.3. Sensibilité du module à la température et au temps 29

II.6. Paramètres influençant la température de transition vitreuse (Tv) 30

II.6.1. Polyéthylène à haute densité 31

II.6.2. Polypropylène 32

II-7. Facteurs influençant les propriétés de traction 34

Chapitre III : Comportement rhéologique des polymères

III-1. Introduction 35

III-2. Définitions 35

III-2.1. La rhéologie 35

III-3. Propriétés rhéologiques 36

III-4. Grandeurs analysées dans le domaine de la rhéologie 37

III-4.1. Limitation de cisaillement 37

III-4.2. Taux de cristallinité 38

III-4.3. Transition vitreuse 38

III-4.4. Température de transition vitreuse 38

III-5. Les déformations et les contraintes 39

III-5.1. Déformations 39

III-5.2. Les courbes de contrainte-déformation 40

III-6. Viscosité et élasticité des polymères 41

III-6.1. Comportement viscoélastique 42

III-6.2. Module d'élasticité et module de viscosité 42

III-7. Modèles rhéologiques 43

III-7.1. Modèles de comportement viscoélastique 43

1. Modèle de Maxwell 43

2. Modèle de Kelvin-Voigt 43

3. Modèle de Burgers 44

4. Modèle de Zener 44

5. Modèle de Maxwell généralisé 44

III-8. Réaction à une charge statique 45
III-8.1. Fluage et relaxation..... 45

Chapitre IV : Étude expérimentale

IV-1. Introduction..... 46
IV-2. Choix du matériau 46
IV-3. Méthode d'essais mécaniques 47
IV-3.1. Essai de traction 47
IV-3.2. Principe de l'essai..... 47
IV-3.3. Géométrie et fabrication des échantillons 47
IV-3.4. Courbe d'essai de traction ..... .47
IV-3.5. Dimensions des éprouvettes et conditions et la machine d'essais 48
IV-4. Comportement contrainte-déformation 49
IV-5. Étapes de l'essai 52
IV-6. Analyse détaillée des résultats mécaniques 53
IV-6.1. Essais de traction à vitesse faible (essais statiques) 53
IV-6.2. Résultats expérimentaux 54
IV-6.3. Essai de traction du PEHD 55
IV-6.4. Analyse des résultats 58
IV-7. Essai de relaxation du PEHD 59
IV-7.1. Condition de l'essai..... 60
IV-8. Essai de fluage 60
IV-8.1. Principe 61
IV-8.2. Machine de fluage 62
IV-8.3. Description de l'appareil de fluage 64
IV-8.4. Conditions expérimentales 65
IV.9. Résultat fluage /relaxation 65
IV-9.1. Essai de relaxation..... 65
IV-9.2. Explication d'une courbe de fluage 68

Conclusion générale 71

Références bibliographiques 73

Liste des figures

		page
	CHAPITRE I	
Figure I.1	Formule chimique du polypropylène	4
Figure I.2	Structure du polypropylène	4
Figure I.3	Les structures représentatives des chaînes de polypropylène	5
Figure I.4	Diffractogrammes et schémas des différentes phases cristallines du PP isotactique	10
Figure I.5	Schéma de la morphologie cristalline du PP à différentes échelles macromolécule (1 Å) – cristallite (100 Å) – lamelle (500 Å) – fibrille (1 µm) – sphérolite (1mm))	11
Figure I.6	Croissance des sphérolites	11
Figure I.7	Vitesse de croissance cristalline	14
Figure I.8	Évolution du mode de synthèse du polyéthylène	15
Figure I.9	Schéma représentatif du polyéthylène	17
Figure I.10	Structure chimie de PEHD	17
Figure I.11	Quelques objets fabriqués par polyéthylène (PE)	21
	CHAPITRE II	
Figure II.1	courbe traction type des plastiques	23
Figure II.2	Température en relation avec la chaleur pour un polymère amorphe(a), cristallin (b)	28
Figure II.3	Influence de la température sur l'état des polymères	29
Figure II.4	Graphiques $\sigma = f(c)$ en relation avec la température	30
	CHAPITRE III	
Figure III.1	Expérience de mouvement de cisaillement sur un fluide	37
Figure III.2	: Variation du volume spécifique en fonction de la température pour des polymères amorphes, partiellement cristallin et cristallin	39
Figure III.3	Courbe de déformation plastique des polymères	40
Figure III.4	Courbes contrainte-déformation	41

Liste des figures

Figure III.5	Comportement viscoélastique	42
Figure III.6	Réponse en fluage et relaxation	45
	CHAPITRE IV	
Figure IV.1	Géométrie des différentes éprouvettes	48
Figure IV.2	Courbe de traction	48
Figure IV.3	Éprouvette de type haltère utilisée pour l'essai sur le PP	49
Figure IV.4	Éprouvette de type haltère utilisée pour l'essai de traction sur le PEHD	50
Figure IV.5	Machine de traction (hydraulique universelle)	51
Figure IV.6	Machine de traction	51
Figure IV.7	Éprouvette, machine de traction, courbe contrainte- déformation	53
Figure IV.8	Résultats de l'essai de traction statique de PP	54
Figure IV.9	Différentes zones de traction unie axiale d'un PEHD	56
Figure IV.10	Courbes comportement mécanique en traction du PEHD 80 (pour V=25 mm/min)	56
Figure IV.11	Courbes comportement mécanique en traction du PEHD 80 (pour V=50mm/min)	57
Figure IV.12	Illustration du principe d'une expérience de relaxation de contrainte	59
Figure IV.13	: Essai de fluage	62
Figure IV.14	illustration des deux machines de fluage	63
Figure IV.15	Machine de fluage	64
Figure IV.16	Courbe de relaxation d'éprouvette en PEHD	66
Figure IV.17	résultat de relaxation comparatif à différentes déformations imposées éprouvette à rayon d'entaille 2mm	66
Figure IV.18	: résultat de relaxation comparatif à différentes déformations imposées éprouvette à rayon d'entaille 4mm	67
Figure IV.19	résultat de relaxation comparatif à différentes déformations imposées éprouvette à rayon d'entaille 10mm	68
Figure IV.20	courbe de fluage présentant les deux stades du fluage sous contrainte constante sur une éprouvette à entaille de 2mm en PEHD	69

Liste des Tableaux

		Page
Tableau I.1	Propriétés mécaniques des polypropylènes	7
Tableau I.2	Propriétés électriques du polypropylène	8
Tableau I.3	Propriétés physiques et thermiques du PEHD	18
Tableau I.4	Les caractéristiques électriques du PEHD	19
Tableau I.5	Évolution des propriétés mécaniques en fonction des paramètres structuraux	20
Tableau II.1	Températures de transition vitreuse (Tv) de différents polymères	27
Tableau II.2	Propriétés rhéologiques comparées du PEHD et du PP	36
Tableau III.1	Propriétés mécaniques moyennes des éprouvettes obtenues par essai de traction	55
Tableau IV.2	Propriétés mécaniques expérimentales du PEHD80 (v = 25 mm/min)	57
Tableau IV.3	Données expérimentales concernant les propriétés mécaniques du PEHD80	58
Tableau IV.4	Condition sur la déformation imposée pour chaque essai de relaxation	60

Les polymères jouent un rôle très important dans notre vie quotidienne, leurs applications sont de plus en plus vastes. La demande mondiale de ces matières augmente d'une année à l'autre, ceci grâce à leurs diverses propriétés. Leurs propriétés physico-chimiques, leur résistance au changement de la température, la facilité de mise en forme, leur élasticité et leur compatibilité avec d'autres milieux font que les polymères peuvent être utilisés pour protéger l'environnement des déchets industriels. Le comportement des polymères à la déformation diffère de celui des métaux de construction en ce qu'il n'est pas seulement fonction de l'ordre de grandeur de la contrainte, mais également de la durée d'application [3].

D'autres polymères à connaître sont Le polypropylène : C'est un polymère thermoplastique semi-cristallin qui propose de multiples formes ayant des degrés de cristallinité tout à fait différents. La forme la plus isotrope est d'une extrême rigueur et résistance, ce qui la destine à de multiples utilisations industrielles [1]. Le polyéthylène haute densité : C'est un polymère thermoplastique semi-cristallin qui compte de bonnes propriétés mécaniques, une bonne rigidité et une faible perméabilité aux gaz et à l'humidité. Il est largement utilisé dans la fabrication de conteneurs, de tuyaux, de films et de pièces moulées. Afin de mieux comprendre ces matériaux,

Le mémoire est structuré en quatre chapitres :

Dans le premier chapitre on présente une étude bibliographique complète sur deux polymères thermoplastiques les plus utilisés : le polypropylène ainsi que le polyéthylène à haute densité. Après un rappel des généralités sur les polymères, leur structure et leur classification, ainsi que sur le type de polymères, une brève étude est faite sur le polypropylène, en faisant une petite histoire des différentes structures polaires à savoir l'iso-tactisme, le syndiotactisme, l'atactisme, ainsi que des propriétés d'usage et de la microstructure cristalline. Ainsi on va présenter. Les mécanismes de cristallisation et l'influence des charges minérales sur les propriétés des polymères.

La suite du travail présente la synthèse du PEHD, y compris des méthodes d'obtention, une description de sa structure linéaire, des propriétés physiques, mécaniques et électriques et des domaines d'application. Avec cela, le lecteur est fourni avec toutes les connaissances nécessaires pour comprendre les comportements mécaniques et rhéologiques étudiés dans les chapitres à venir.

Le deuxième chapitre aborde l'analyse du comportement mécanique du PP et du PEHD. Il s'agit d'étudier la réponse de ces matériaux aux sollicitations mécaniques en traction, en fluage et

en relaxation. Comme indiqué précédemment, le PP a une bonne résistance à la traction et une rigidité modérée, tandis que le PEHD a une excellente résistance aux chocs et une bonne ténacité. Ces propriétés mécaniques dépendent des facteurs suivants, par exemple : cristallinité, masse molaire et morphologie du polymère.

Le troisième chapitre est dédié au comportement rhéologique des deux polymères le polyéthylène à haute densité et le polypropylène.

La rhéologie, qui examine l'écoulement et la déformation des matériaux, est également importante pour comprendre les processus de formation des polymères. À cet égard, le PP et le PEHD sont caractérisés par un comportement viscoélastique complexe, qui varie en fonction de la température, de la vitesse de cisaillement et de la structure moléculaire. La compréhension et la prise en considération des propriétés rhéologiques des matériaux permettra d'optimiser les conditions de transformation et de garantir la haute qualité des polymères.

Enfin, la partie expérimentale de notre travail consiste à la réalisation d'essais mécaniques sur des échantillons de polypropylène et de polyéthylène à haute densité. Les tests de traction permettront de déterminer les modules d'élasticité, les contraintes à la rupture et les allongements à la rupture. Les essais de fluage et de relaxation visent à évaluer la déformation des matériaux sous charge constante et la diminution de la contrainte au cours du temps, respectivement. Ces expérimentations fourniront des données précieuses pour la validation des modèles théoriques et la compréhension du comportement à long terme des polymères étudié

CHAPITRE I

Etude bibliographique

I-1. Généralités sur les polymères

Les polymères sont des matériaux constitués de longues chaines de molécules élémentaire assemblées, caractérisées par la répétition d'un ou plusieurs atomes ou groupes d'atomes (unités constitutives ou monomères), liés les uns aux autres en nombre suffisant pour entrainer une série de propriétés qui ne varient pas d'une façon significative par addition ou suppression d'une ou de plusieurs unités constitutives.

En général, ces dernières sont des atomes de carbone sur lesquelles on fixe d'autres éléments, comme de l'hydrogène, du chlore, de l'azote, du fluor ou de l'oxygène.

Les polymères sont des matériaux plus en plus utilisés dans l'industrie grâce à leurs propriétés mécaniques, thermiques, électriques et volumique, leur faible masse.

Les polymères thermoplastiques ont de plus l'avantage de pouvoir être mis en œuvre facilement

Notre étude se concentre sur les anciennes « résines thermoplastiques », élucidant les caractéristiques et les différences entre 2 types de plastiques universellement utilisés, à savoir le polyéthylène (PE), le polypropylène (PP), en fonction de leur résistance à la traction.

I-2. Polypropylène

I-2.1. Historique

La découverte du polypropylène a eu lieu aux débuts des années 1950. Plusieurs sociétés sont à l'origine de cette découverte Montecatini devenue Montedison (contribution du professeur Giulio Natta qui a obtenue en 1963 un prix Nobel partagé avec Ziegler), le groupe Ziegler, et Philips Petroleum. E polypropylène est obtenu par polymérisation à partir d'un catalyseur (dit Ziegler/Natta) constitué d'un mélange d'un sel de métal de transition (généralement Ti) et d'un alkyl aluminium. Le polypropylène a été commercialisé pour la première fois en 1957 par Montecatini en Italie. Très rapidement, d'autres installations de production ont démarré en Europe, aux Etats- Unis et au Japon.

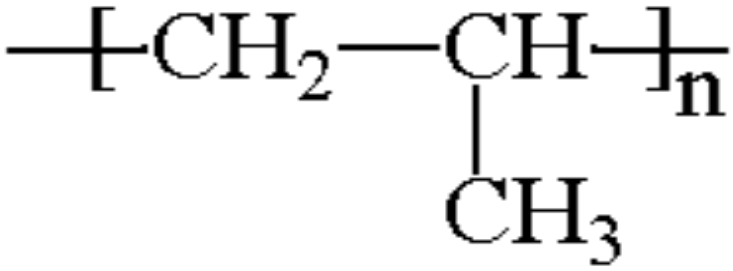


Figure I.1 : Formule chimique du polypropylène [2].

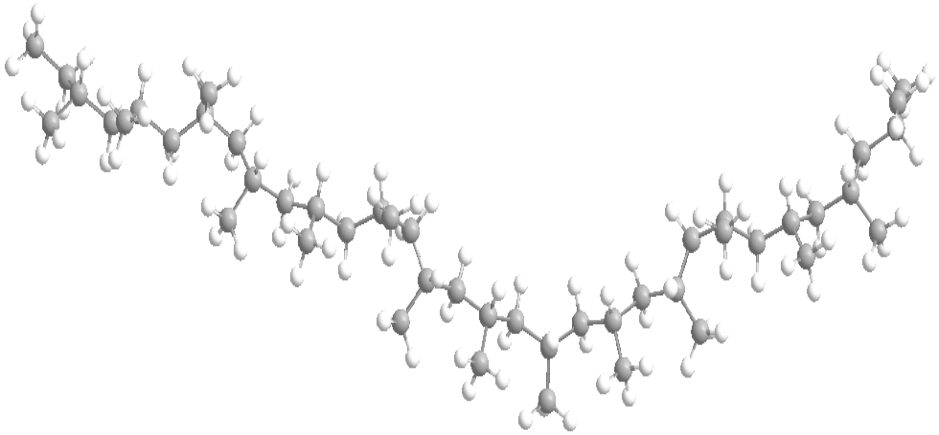


Figure I.2 : Structure du polypropylène [3].

I-2.1. Définition

Les polypropylènes (PP) sont des matériaux thermoplastiques semi-cristallins obtenus par la polymérisation du propylène. Ils existent sous trois formes, suivantes, qui dépendent du mode d'organisation des groupes méthyle par rapport au point de vue de la chaîne :

• **Polypropylène isotactique :** les groupes méthyles sont répartis du même côté de la chaîne macromoléculaire.

• **Polypropylène syndiotactique :** les groupes méthyles sont disposés alternativement de part et d'autre de la chaîne macromoléculaire.

• **Polypropylène atactique :** dans ce cas, la répartition des groupes méthyles est aléatoire [3].

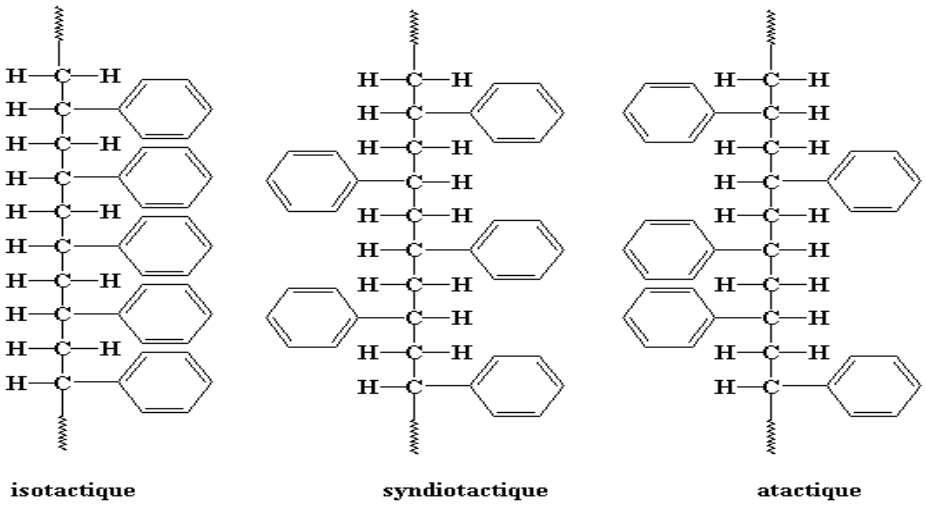


Figure I.3 : Les structures représentative des chaînes de polypropylène [3].

Le polypropylène n'est intéressant industriellement que sous sa forme isotactique, dont le taux d'iso tacticité se situe entre 90 et 98 %. Le polypropylène atactique a quelques applications industrielles limitées.

L'iso tacticité est obtenue par l'emploi de catalyseurs ioniques de Ziegler (chlorure de titane/dérivé de chlorures d'aluminium) dits stéréospécifiques.

Les polypropylènes isotactiques se répartissent en trois familles, qui sont les suivantes :

• **Les homopolymères :** ils sont obtenus par polymérisation d'un seul monomère, le propylène. On recherche l'iso tacticité maximale, les homopolymères ont une grande rigidité et une faible tenue au choc à froid.

• **Les copolymères :** ils sont obtenus par copolymérisation du propylène et de l'éthylène. L'ordre de succession des unités monomères dans la chaîne obéit aux lois du hasard. Ces copolymères, plus souples, sont caractérisés par de bonnes propriétés optiques en film et une tenue au choc moyenne sous forme de pièces injectées.

• **Les copolymères séquencés (à blocs) :** ils sont obtenus par la polymérisation successive du propylène puis de l'éthylène. Le matériau obtenu est un alliage réalisé in situ matrice

polypropylène/ nodules de polyéthylène. Ces matériaux sont caractérisés par une excellente tenue au choc à froid, au détriment de la rigidité [3].

I-2.2. Propriétés d'usage des polypropylènes

Les propriétés des polypropylènes sont étroitement liées à leur structure. Les paramètres caractéristiques sont le degré de cristallinité ou l'indice d'iso tacticité et leur composition chimique : homopolymère, copolymère statistique ou séquencé, leur masse moléculaire et leur distribution en masse moléculaire.

I-2.2.1. Propriétés physiques

Le polypropylène est le plus léger des thermoplastiques usuels :

• Température de fusion : 145 ~ 170°C

• Température de transition vitreuse Tg : -10 ~ 0°C (le cas de notre polymère) 1,1 à 1,6 GPA

• Taux de cristallinité : 0,7 à 0,8 (PPi) ; ~0,3 à 0,4 (PPs) ; ~0 (PPa)

• Retrait : 1 à 2,5 %

Le polypropylène de grade « injection » est très facilement recyclable ; le PP de grade « film » est au contraire beaucoup plus délicat à recycler, surtout s'il est imprimé. Le film plastique imprimé est sûrement l'un des plastiques usuels les plus difficiles à recycler.

Le polypropylène est translucide à opaque, hydrophobe, dur, semi-rigide et très résistant à l'abrasion.

Le polypropylène expansé, de sigle EPP en anglais, est une mousse blanche ressemblant au polystyrène expansé, mais avec une mémoire de forme lui permettant de se déformer sans casser et de conserver sa structure.

Le propylène peut former des homopolymères (polypropylène), des copolymères statistiques ou des copolymères en bloc. Le Co-monomère le plus utilisé est l'éthylène pour donner des polyoléfines élastomères comme l'éthylène-propylène (EPR ou EPM) et l'éthylène-propylène-diène monomère (EPDM) [3].

I-2.2.2. Propriétés mécaniques

Tableau I.1 : Propriétés mécaniques des polypropylènes [4].

Propriétés	Unités	PP homopolymère	PP copolymère séquencé	PP copolymère statistique
Indice de fluidité (230°C, 2.16 kg)	g/150 min	2.5-20	03-40	5
Masse volumique	g /cm³	0.905 -0.900	0.900 -0.900	0.900
Contrainte à la traction au seuil d'écoulement	MPA	32	24	24
Allongement à la rupture	%	800-1000	800-1000	800-1000
Module d'élasticité en traction	MPA	1200-1000	1000	100
Rigidité en torsionà100°C	MPA	80	48-70	29

I-2.2.3. Propriétés chimiques – corrosion

- Corrosion Les polypropylènes ont une remarquable stabilité chimique ; ils sont presque insolubles à des températures inférieures à 60 °C. Ils ne sont pas assaillis par les acides, ni par les bases, ni par les solutions salines. Ils sont non solubles dans l'eau et ont été identifiés comme appropriés pour des usages alimentaires [6].
- Les polypropylènes montrent une grande résistance à la fissuration sous tension lorsqu'ils sont en présence de savons, de détergents t d'alcools. La résistance naturelle est diminuée lors du contact avec le cuivre et ses alliages. Les polypropylènes naturels sont vulnérables à la décomposition due aux rayons ultraviolets.

I-2.2.4 Propriétés électriques

Les polypropylènes sont d'excellents isolants électriques pour des conditions variées d'ambiance.

Tableau I.2 : Propriétés électriques du polypropylène [7].

Propriétés	Unité	Polypropylène homo et copolymère
Perméabilité relative à 10^6 Hz	-	2,2 - 2,3
Facteur de pertes diélectriques à 10^6 Hz	-	3,10 - 4
Rigidité diélectrique	KV/mm	40
Résistivité transversale	Ω.cm	$> 10^6$

I-2.2.5. Propriétés thermiques

La température de fusion d'un polypropylène homopolymère 100 % isotactique est de 176 °C. En pratique, les fractions inévitables de polypropylène atactique ramènent cette température à 165-170°C et sa température de transition vitreuse de la phase amorphe est proche de 0°C [5], pour les polypropylènes homopolymères et copolymères séquencés commerciaux. Dans le cas du Co monomère se traduit par une température de fusion encore plus faible, de l'ordre de 140 °C, En l'absence de contrainte, le polypropylène homopolymère peut supporter une température de 140 °C (stérilisation répétée). Cette température décroît sous charge [5].

I-3. Microstructure du polypropylène

La compréhension des divers mécanismes gouvernant la cristallisation du polypropylène (PP) apparaît déterminante car la maîtrise de la cristallinité est primordiale étant donné son influence sur les propriétés d'usage. De ce point de vue, une vaste revue des connaissances actuelles concernant le PP a été entreprise récemment et nous aura servi de référence [2]. Synthétisé pour la première fois par Ziegler et Natta (1954), le PP est un thermoplastique semi-cristallin formé de chaînes linéaires constituées de motifs propylène. Dans toute la suite nous ne considérerons que le cas d'un polypropylène isotactique. Cette iso tacticité conduit à des taux de cristallinité élevés, supérieure à 50%. Par ailleurs, la phase amorphe du PP possède une température de transition vitreuse voisine de 0°C. Ainsi à la température ambiante, la phase amorphe est à l'état caoutchoutière.

I-3.1. Les phases cristallines

La forme de plus faible énergie d'une chaîne de PP isotactique est celle d'une hélice régulière, enroulée à droite ou à gauche, comportant trois monomères par tour d'hélice. [Natta] ;1960]. Le polypropylène possède trois formes cristallines : la phase α de structure monoclinique, la phase β de structure pseudo-hexagonale, la phase γ de structure tri-clin La phase α de structure monoclinique est la forme la plus stable et la plus compacte.

Densité : 0,936 g/cm3 à 23°C, donc prédominante dans le PP cristallisé à partir de l'état fondu. La compacité élevée de la phase α provient de l'arrangement de ses chaînes.

Les deux autres phases (β et γ) sont dites métastables : elles sont susceptibles de se transformer, spontanément et irréversiblement, en la structure la plus stable (la phase α).

La phase β, de structure hexagonale, possède une densité de 0,92 g/cm³ à 23°C.

Sa la maille s'organise par groupes de trois chaînes isomorphes, appelés triplets [8]. La forme β se forme de l'état fondu entre 110°C et 130 °C, à des teneurs finales ne dépassant généralement, pas quelques pourcents. Des teneurs plus élevées peuvent être obtenues sous certaines conditions :

– par addition d'agents de nucléation : wollastonite [9], quinacridone γ, carbonate de calcium traité en surface,

– Par cisaillement en cours de solidification.

La phase γ possède une structure triclinique relativement proche de la phase β et ne peut être obtenue que sous certaines conditions :

– Faible poids moléculaire du PP,

– Cristallisation sous très fortes pressions (p > 1000 bars).

Les plans cristallographiques associés aux phases cristallines peuvent être indexés sur un diffractogramme de rayon X [6].

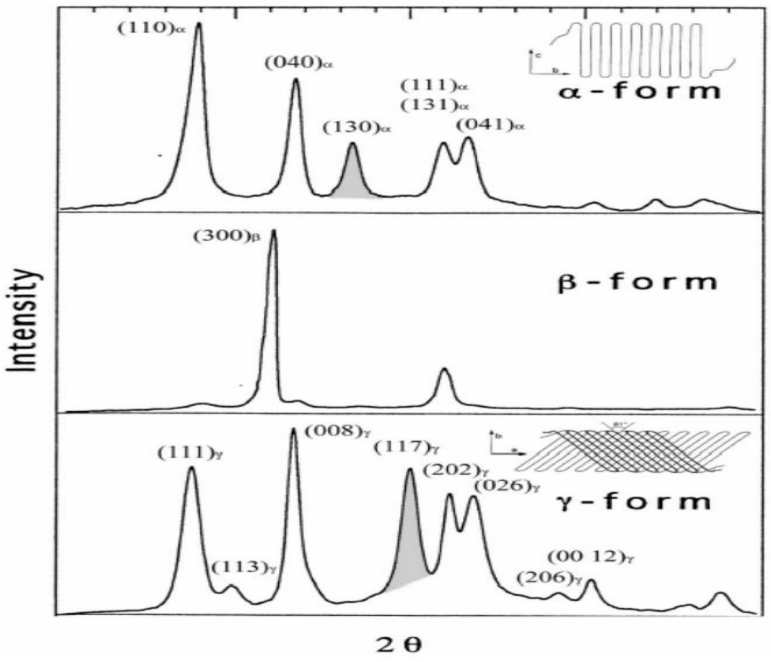


Figure I.4: Diffractogrammes et schémas des différentes phases cristallines du PP isotactique [6].

I-3.2. Morphologies cristallines de α et β

Au cours de la cristallisation du PP, il se forme une superstructure sphérolitique à symétrie sphérique (de diamètre 1 à 120 mm) : les lamelles cristallines se développent à partir d'un centre de nucléation, en rayonnant sous forme de fibrilles dans toutes les directions. Les lamelles (épaisseur caractéristique : 5 à 30 nm dans le PP) sont constituées de plusieurs régions de structure très différentes. Figure I.5 Les zones cristallines (ou cristallites) du PP sont obtenues au cours du refroidissement par repliement multiple d'une même chaîne macromoléculaire en segments parallèles de longueurs voisines. L'arrangement sous forme de chaînes repliées résulte d'un compromis thermodynamique : l'augmentation de l'énergie libre due aux oscillations longitudinales et torsion elles tend à être compensée par la propension du cristal à présenter une énergie libre de surface minimale. Les zones inter lamellaires ont une structure amorphe à laquelle participent les extrémités de chaînes émergeant de la cristallite, les boucles formées par les chaînes appartenant en partie à une même cristallite, les chaînes reliant deux cristallites différentes.

Les zones interfaciales, situées entre la cristallite et la zone amorphe, ont leur structure qui dépend de la régularité de repliement des chaînes de la cristallite et de la longueur des boucles qui

en émergent. Les lamelles ne sont pas nécessairement planes, mais peuvent avoir une topologie complexe : leur section (normale au rayon) peut décrire une hélice dont l'axe est ce rayon, donnant lieu à une forme vrillée de lamelle [6].

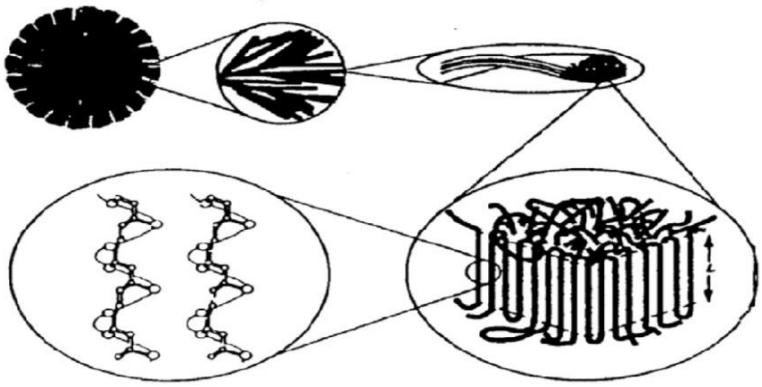


Figure I.5: Schéma de la morphologie cristalline du PP à différentes échelles macromolécule (1 Å) – cristallite (100 Å) – lamelle (500 Å) – fibrille (1 µm) – sphérolite (1mm)).

Les sphérolites d'a et b possèdent des arrangements lamellaires nettement instincts. Dans les sphérolites de phase a, le centre de nucléation est ponctuel, les lamelles s'organisent d'abord selon une structure quadratique puis croissent radialement dans toutes les directions (figure I.6.a).

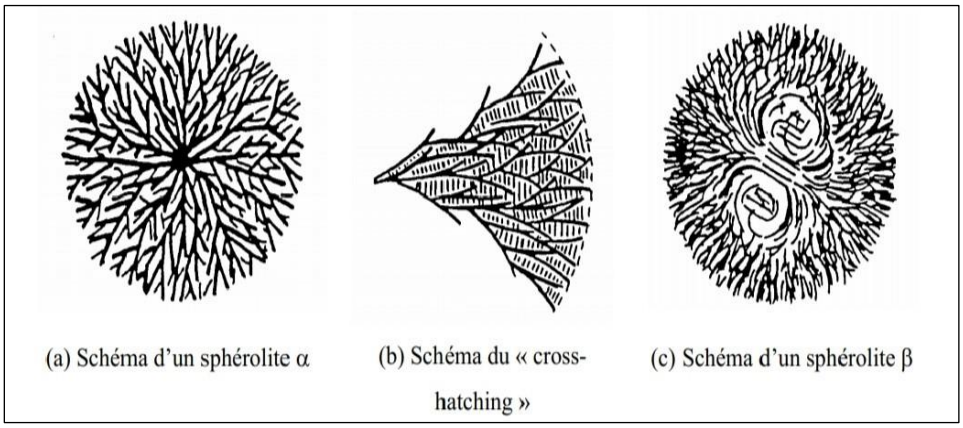


Figure I.6: Croissance des sphérolites [6].

Toutefois, lorsque l'alpha se cristallise à une faible température, les lamelles qui se développent Des lamelles se complètent radialement à partir du germe de nucléation (lamelle radiale). Des lamelles secondaires qui se croisent de manière tangentielle entre les lamelles primaires jusqu'à établir un lien entre elles (lamelles tangentielles). On a pu expliquer ce

phénomène connu sous le nom de « cross-hatching » en Cela peut être dû soit à la croissance par épitaxie des lamelles tangentielles qui forment un angle d'environ 80°-40° avec les lamelles radiales, soit à l'apparition d'une phase γ très limitée qui permet de s'adapter aux axes cristallographiques des deux cristallites [10] (figure I.6b). Dans les sphérolites de phase β, le site de nucléation se présente sous la forme d'un agrégat unidimensionnel. Sur ce cristal, d'autres fines couches viennent se fixer. Le développement de la superstructure est en cours. Puis sous la forme d'un germe divergent. L'interconnexion lamellaire à environ 20°C est garantie par une densité élevée de dislocations vis, ce qui n'est pas le cas pour les sphérolites α [6] (figure I.6c). Par conséquent, aux températures où la phase β se crée généralement (à des températures élevées), la phase α présente des lamelles tangentielles qui augmentent la superstructure, ce qui contribue à la surfusion. Strictement en ce qui concerne β. Cela influencera de manière cruciale les caractéristiques mécaniques, tant en ce qui concerne l'élasticité que la plasticité, et par conséquent, la ténacité.

I-4. Mobilité moléculaire dans les cristallites

La spectrométrie mécanique permet d'étudier les propriétés mécaniques dynamiques. Des Desriaux. Ainsi, la détermination du module dynamique (G') et du coefficient d'amortissement (tan φ), en particulier en fonction de la température à une fréquence donnée (sure isochrone), permet d'accéder à une caractérisation de la mobilité moléculaire au sein de la phase amorphe et de la phase cristalline.

I-4.1. Identification des phénomènes de relaxation

Trois types de relaxation ont été identifiés dans les spectres de l'amortissement tan φ en fonction de la température à une fréquence de 1 Hz :

- La relaxation β (220 K) est une relaxation secondaire se produisant à l'intérieur de la phase amorphe, liée à des mouvements localisés de taille réduite et à courte distance d'atomes ou de groupes d'atomes,

- La relaxation α (T = 275 K), liée à la transition vitreuse, fait intervenir des mouvements coopératifs dans la phase amorphe.

- La relaxation α' (T = 350 K) fait intervenir la diffusion de défauts cristallographiques dans la phase cristalline, plus précisément dans l'épaisseur des cristallites [6]. L'énergie

d'activation, dépendant du traitement thermique, varie de 170 kJ/mol, et les entropies d'activation résultantes valent respectivement 270 $J \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1}$ et 40 $J \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1}$. Ces valeurs montrent que la relaxation α' peut être coopérative, mais dans une moindre mesure que la relaxation α associée à la transition vitreuse (énergie d'activation de l'ordre de 400 kJ/mol et entropie d'activation supérieure à 1 $kJ \cdot mol^{-1} \cdot K^{-1}$). II-3-2 Para mol^{-1} K^{-1}en modifiant la température et l'intensité de α'en tan φ. Une augmentation de l'épaisseur ainsi que du taux de cristallinité conduit à un déplacement du pic α' vers les hautes températures. Ainsi, il a été avancé que la température de relaxation α' est directement reliée à l'épaisseur des lamelles cristallines. Du fait de l'augmentation de cristallinité, la quantité de matière concernée par la relaxation α' devient plus grande et l'intensité de cette dernière augmente alors légèrement. Toutefois, une augmentation de la cristallinité accroît le niveau de module conservatif G' au-dessus de la transition vitreuse, qui va dans le sens d'une réduction de l'amortissement tan φ = G''/G'.

I-5. Cristallisation du PP non chargé

La cristallisation d'un polymère au refroidissement depuis l'état fondu se produit en deux étapes :

La germination et la croissance. La germination dans le PP pur est considérée comme homogène. En réalité, des corps étranges sont toujours présents dans le PP lors de sa mise en œuvre ; ils ont pour effet de modifier considérablement les conditions de cristallisation.

I-5.1. Germination homogène des phases α et β

La théorie de la nucléation dans un semi-cristallin a fait l'objet de nombreuses publications depuis plusieurs décennies [11,12]. L'ensemble des données bibliographiques concernant la formation des deux phases du PP semble pouvoir se résumer par le diagramme schématique Température –temps – cristallisation La forme α a été é–temps–Ar NATTA et COLL qui ont déterminé étudiée rupture ; ses paramètres de maille sont les suivants : a = 6,65 A°, b = 20,96 A°, c = 6,50 A°, β = (a, c) = 99°, La nucléation de la phase α peut se produire à plus haute température que celle de la phase β. Si l'on pratique des cristallisations à températures décroissantes, la phase α est généralement formée en dessous de 140°C. En revanche, la formation de phase β ne sera observée qu'en dessous d'une température critique voisine de 130°C. Par conséquent, si l'on refroidit le PP depuis l'état fondu, la phase le phare froidit abord nucléée, et le refroidissement est

suffisant et nucléé, à moins que l'échantillon cristallise entièrement en α avant même que soit atteint le domaine de température où la phase β peut être nucléée. Donc la formation de la phase β nécessite de traverser le nez de cristallisation de α, ce qui implique de refroidir le plus rapidement possible depuis l'état fondu jusqu'aux températures de nucléation de β : entre 105 et 130°C [6]. En dessous d'une température critique, il se produit une bifurcation de croissance. Lors du refroidissement depuis l'état fondu, lorsque la température de l'échantillon passe en dessous de 105°C, des germes de phase α sont formés à la surface des sphérolites β d'un échantillon partiellement cristallisé ; ces germes croissent alors sous forme de segments de sphérolites α et empêchent donc la formation de phase β.

I-5.2. Croissance des phases α et β

Les germes sont activés à une fréquence qui ne dépend que de la température. Une fois les germes activés, le cristal croît : la vitesse de croissance des sphérolites est alors constante à surfusion donnée. Ainsi, il a été observé que les sphérolites β possèdent une vitesse de croissance supérieure de 20 % à 70 % à celle des sphérolites α, ce qui s'explique pour la plus faible énergie libre de surface latérale de β. Il a été suggéré que, dans le cas de la phase β, l'addition de segments de chaînes à la cristallite déjà existante se produit par accrochage de triples préformés, d'où une vitesse de croissance plus élevée [2]. Ainsi, à faible surfusion (au-dessus de 140°C), αAinsi, a une vitesse de croissance supérieure à β mais cette tendance s'inverse à plus basse température. En effet, la vitesse de croissance de β augmente. Plu effet la surfusion que celle de α.

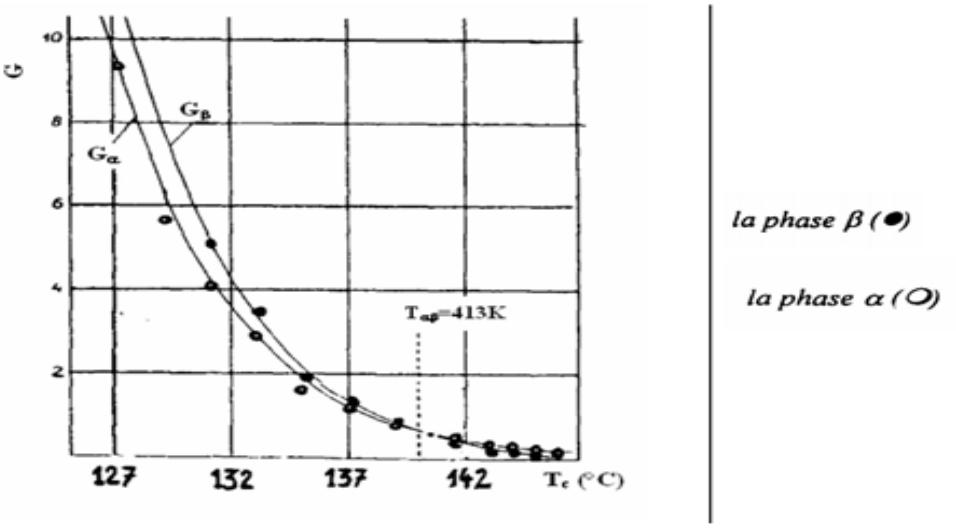


Figure I.7 : Vitesse de croissance cristalline [6].

I-1. Polyéthylène

I-1.1. Synthèse

Le polyéthylène est obtenu par la polymérisation de l'éthylène, qui peut se faire soit seul, formant ainsi un homopolymère, soit en présence d'un Co monomère, donnant alors un copolymère. Plusieurs méthodes existent pour la fabrication du polyéthylène : les polyéthylènes haute densité (PEHD) sont réalisés par des procédés de polymérisation à basse pression, tandis que les polyéthylènes basse densité (PEBD) sont issus d'une polymérisation radicalaire à haute pression [13].

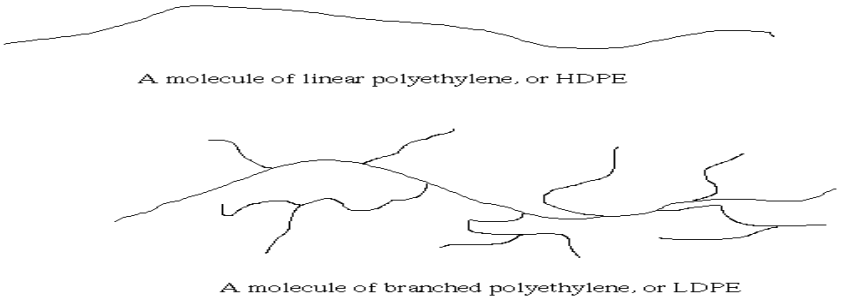


Figure I.8: Evolution du mode de synthèse du polyéthylène [14].

I-1.2. Polyéthylènes haute densité (PEHD)

Les PEHD examinés dans cette thèse proviennent tous d'un processus de polymérisation catalysée par un oxyde de chrome. La technique utilisée est celle de la catalyse de Phillips, qui repose sur un catalyseur à base d'oxyde de chrome hexavalent (Cr_2O_3) sur un support en silice. La réaction se déroule en suspension dans un hydrocarbure liquide. La température du milieu, qui atteint environ 100 °C, détermine la masse molaire du polymère, tandis que la pression doit rester suffisamment élevée (3 MPa) pour que le milieu demeure liquide [15].

I-1.3. Polyéthylènes basse densité (PEBD)

Dans notre étude, les PEBD peuvent être produits selon deux procédés différents : la polymérisation à haute pression ou la polymérisation utilisant des catalyseurs métallo cènes. Cependant, ces techniques ne seront pas approfondies ici, car notre recherche se concentre uniquement sur l'analyse du module élastique des PEBD, et le mode de polymérisation n'a qu'une

importance secondaire [13].

I-2. Définition du polyéthylène

Le polyéthylène (PE) est un matériau constitué d'un polymère thermoplastique, souvent désigné sous le terme de résine thermoplastique, auquel ont été ajoutées de petites quantités de colorants, de stabilisants, d'antioxydants et d'autres adjuvants visant à améliorer ses propriétés et à le protéger durant les étapes de fabrication, de stockage et d'utilisation. Ce polymère est classé comme thermoplastique car il possède la capacité de se ramollir et de fondre lorsqu' soumis à une chaleur suffisante, tout en se durcissant lors du refroidissement. Ce procédé est totalement réversible et peut être effectué plusieurs fois. En revanche, les plastiques thermodurcissables deviennent permanents dès qu'ils sont exposés à la chaleur. Grâce à cette caractéristique de thermoplastique, les tubes et les raccords en polyéthylène peuvent être fabriqués par l'application simultanée de chaleur et de pression. Sur le terrain, les canalisations en PE peuvent être assemblées par des procédés de fusion thermique, où les surfaces des éléments à joindre sont fondues de façon permanente lorsqu'elles sont mises en contact à une température supérieure à leur point de fusion [16].

Le polyéthylène est également classé comme un polymère semi-cristallin. Contrairement aux polymères essentiellement amorphes, comme le polystyrène ou le chlorure de polyvinyle, les polymères semi-cristallins (notamment le nylon et le polypropylène) présentent une structure suffisamment organisée pour permettre à des portions importantes de leurs chaînes moléculaires de s'aligner étroitement avec celles de chaînes adjacentes. Dans ces zones d'alignement se forment des cristallites, maintenues ensemble par des liaisons secondaires. En dehors de ces régions, l'alignement moléculaire s'avère beaucoup plus aléatoire, conduisant à un état moins ordonné qualifié d'amorphe. En somme, les polymères semi-cristallins constituent un mélange de deux phases, cristalline et amorphe, où la phase cristalline est particulièrement significative dans la composition globale du matériau [16].

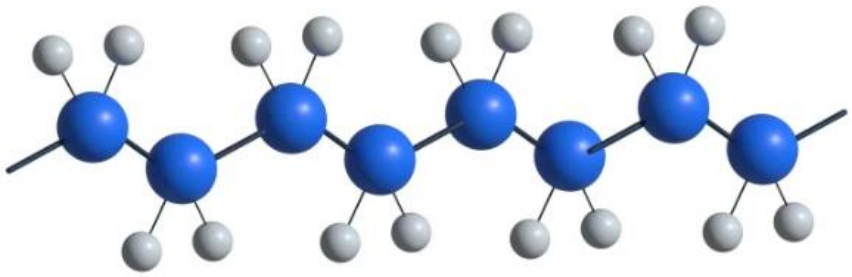


Figure I.9: Schéma représentatif du polyéthylène [17].

I-2.1. La structure chimique du polyéthylène haute densité

Le polyéthylène haute densité se distingue par sa structure linéaire, qui présente un degré de ramification relativement faible par rapport à d'autres types de polyéthylène. Ce polymère est constitué d'unités répétées du monomère d'éthylène, dont la formule chimique est $(C2H4)_n$.

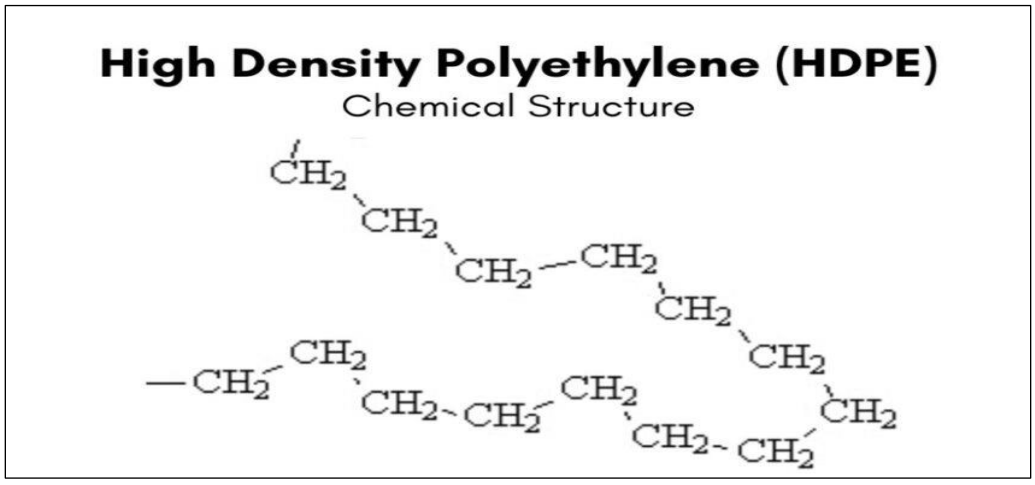


Figure I.10 : Structure chimie de PEHD.

I-3. Les caractéristiques du PEHD

I-3.1. Propriétés physiques et thermiques

Le tableau I.3 illustre les valeurs indicatives des caractéristiques physiques et thermiques :

Tableau I.3: Propriétés physiques et thermiques du PEHD [18].

Propriétés	PEHD
Densité g/cm³	0,94 à 0,97
Masse volumique g/cm³	0.95-0.98
Chaleur massique (J.kg $^{-1}$ * K ^ - 1)	2100
Température de Transition Vitreuse (Tg)	-120°C à -130°C
Conductivité thermique (Wm $^{-1}$ k $^{-1}$)	0.52
Coefficient de dilatation thermique (M.K $^{-1}$)	150-300

I-3.2. Le taux de cristallinité

Le taux de cristallinité est étroitement lié à la structure moléculaire des polymères. Dans le cas du polyéthylène à densité réduite radicalaire (PEBDR), ce taux est modeste en raison de sa structure branchée, qui limite la capacité des molécules à se rapprocher les unes des autres. En revanche, le polyéthylène haute densité (PEHD) homopolymère présente un taux de cristallinité élevé, car sa structure linéaire permet à ses chaînes de se replier facilement pour former des cristallites. De plus, l'incorporation de courtes branches dans ces chaînes linéaires favorise l'encombrement stérique, ce qui a pour effet de réduire la cristallinité. Cette diminution du taux de cristallinité entraîne également une réduction de la densité, ce qui, par conséquent, améliore certaines propriétés mécaniques, telles que la résistance aux chocs [21].

I-3.3. Propriétés électriques

Le PEHD est un matériau isolant électrique très efficace, avec des caractéristiques favorables pour des applications telles que les câbles, composants électriques, et autres équipements nécessitant une isolation de haute qualité et une résistance aux tensions électriques élevées [19].

Tableau I.4 : les caractéristiques électriques du PEHD [19].

Propriétés	Unités	Polypropylène homo et copolymère
Perméabilité relative à 10^6 Hz	-	2,2 - 2,3
Facteur de pertes diélectriques à 10^6 Hz	-	3,10 - 4
Rigidité diélectrique	KV/mm	40
Résistivité transversale	Ω.cm	$> 10^6$

I-3.4. Propriétés mécaniques

Les propriétés mécaniques du PEHD sont influencées par divers facteurs. Parmi ceux-ci, les paramètres structurels comme la cristallinité, la masse volumique et la distribution des masses moléculaires jouent un rôle crucial. De plus, la conception de la pièce ainsi que les conditions de mise en œuvre et d'utilisation, telles que le type et la durée des contraintes, sans oublier la température, ont également un impact notable.

Tableau I.5: Evolution des propriétés mécaniques en fonction des paramètres structuraux [20].

Propriétés		Effet de l'augmentation de :		
		Cristallinité	Masse molaire	L'indice de fluidité
Mécaniques	Rigidité	↑	↑	↑
	Dureté	↑	↑	=
	Résistance élastique	↑	↑	=
	Allongement à la rupture	↑	↑	=
	Allongement au choc	↓	=	=
	Résistance à l'abrasion	↓	↓	=
	Résistance au fluage	=	↓	=
↑Augmentation		↓ Diminution		= Pas de variation

I-4. Domaine d'application du PEHD

Grâce à ses nombreuses qualités et avantages, le polyéthylène haute densité (PEHD) est largement utilisé dans divers secteurs de l'industrie. On le retrouve dans notre quotidien sous de nombreuses formes, que ce soit dans les bouteilles en plastique, les mobiliers urbains ou encore les canalisations. Voici quelques exemples de ses applications :

Films : Sacherie**,** emballages dans l'industrie, films pour la construction**,** produits d'hygiène comme les couches pour bébés, applications agricoles telles que serres et tunnels.

Objets moulés : Dans le secteur des objets moulés, le polyéthylène haute densité est particulièrement prisé pour sa polyvalence. Il est utilisé dans divers domaines industriels,

notamment pour la manutention, les systèmes d'eau et le bouchonnage, mais également pour des applications techniques comme le mobilier urbain.

Extrusion-soufflage : Ce procédé est spécifiquement dédié au PEHD, permettant la fabrication d'une gamme variée de produits, tels que bouteilles, flacons, bidons de lait et récipients pour lessive ou détergents.

Tuyaux : Dans l'application des tuyaux, le polyéthylène haute densité est couramment utilisé pour la réalisation de tuyauteries de gaz ainsi que pour les tuyaux sous pression, notamment ceux destinés à l'eau chaude (comme le revêtement extérieur ALFAPIPE) et au chauffage par le sol (figure I.1).

Ainsi, le PEHD s'affirme comme un matériau incontournable dans de nombreux aspects de notre vie quotidienne, alliant efficacité et adaptabilité [21].



Figure I.11: Quelque objets fabriqués par polyéthylène (PE).

CHAPITRE II

Comportement mécanique des polymères

II-1. Introduction

Le comportement mécanique des polymères se caractérise par une diversité apparente considérable. Effectivement, dans le cadre d'une utilisation identique et du point de vue technologique, nous pouvons trouver des polymères qui sont soit rigidement fragiles, soit ductiles, soit caoutchouteux. Donc, dans la catégorie des polymères, on observe une variété considérable de types de comportements : viscoélastique, viscoplastique, hyperélastique, durcissant et en dommageable. Cette variété est observable, pour un même polymère, si on modifie certaines de ses propriétés ou simplement ses conditions d'exploitation. Il peut être à la fois rigide, fragile, ductile ou élastique, entre autres. Cela ne signifie pas que le comportement d'un polymère est fluctuant, voire imprévisible. Il s'agit des paramètres qui régulent son comportement et des processus élémentaires possibles, qui sont nombreux [22].

II-2. Comportement des matériaux

Les courbes de traction (force F – allongement Δl) générés par l'appareil peuvent être convertis en graphiques (contraintes σ – allongements proportionnels ε) en se basant sur la section transversale initiale S_0 et la longueur de référence L_0 de l'éprouvette avant le test. Il s'agit d'images de la loi de comportement conventionnelle du matériau, étant donné que nous ne faisons pas référence à la section et à l'étirement réel à chaque moment [23]. Dans le reste du texte, nous aborderons constamment le sujet de l'allongement en sous-entendant des allongements relatifs. Dans la pratique, on se limite fréquemment à noter quelques points des courbes expérimentales (point de rupture, pic de la courbe, tangente à l'origine).

Les courbes de traction peuvent être de quatre types (figure II.1) selon la nature du polymère.
considéré ou les paramètres d'essai (température, vitesse).

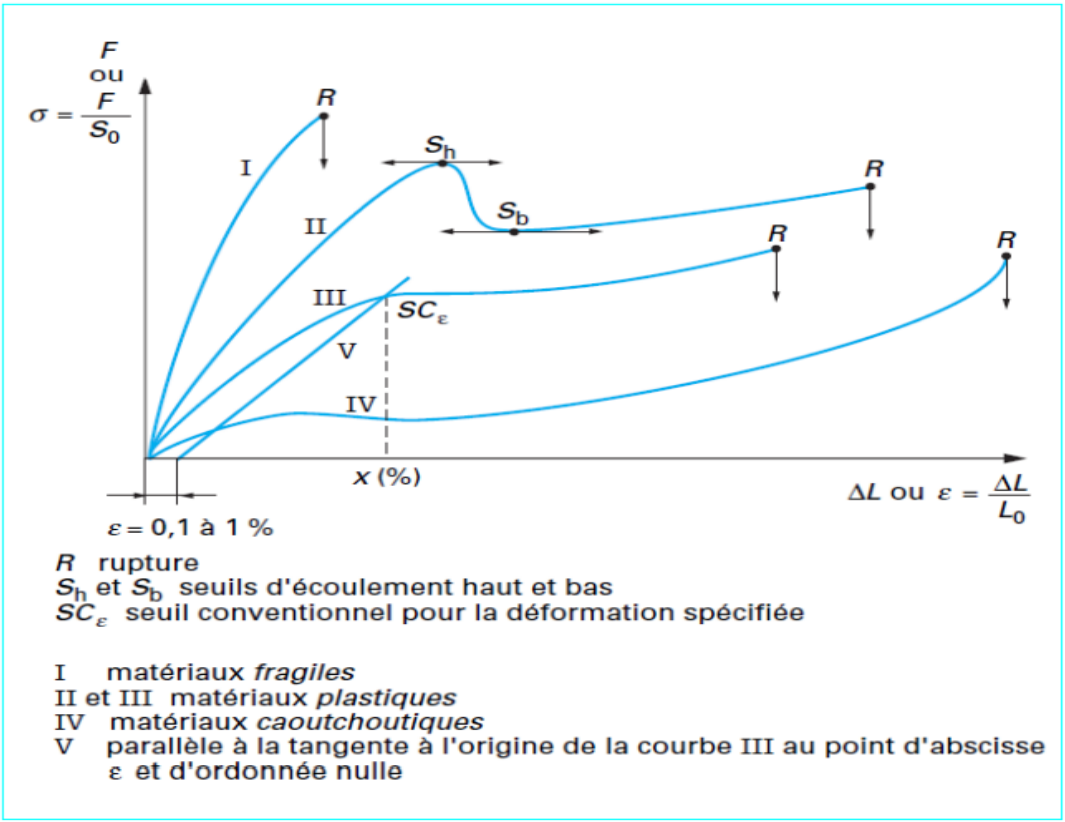


Figure II.1 : courbe traction type des plastiques [23].

✓ **Courbes de Type I (Matériaux Fragiles) :**

Les courbes caractérisant le comportement des matériaux fragiles, typiquement observées avec les thermodurcissables, montrent que les thermoplastiques ne reproduisent ce comportement que dans des conditions particulières, telles que des températures basses ou des vitesses de sollicitation élevées. À partir de ces courbes, on peut calculer des paramètres essentiels comme la contrainte et l'allongement à la rupture, ainsi que le module d'Young [23].

✓ **Courbes de type II (matériaux ductiles avec seuil d'écoulement) :**

De nombreux thermoplastiques affichent un comportement de ce type à température ambiante. Le seuil d'écoulement élevé (Sh) correspond à l'apparition du phénomène de striction. Pendant ce processus, on observe une réduction de section pouvant atteindre un tiers pour les matériaux semi-cristallins, qui commence à se propager au seuil d'écoulement bas (Sb) sous une charge presque constante, jusqu'à la rupture des têtes d'éprouvettes, avec des allongements pouvant

s'élever jusqu'à 1 000 %. Ce phénomène d'étirage entraîne une orientation moléculaire très marquée.

Il convient de noter que le seuil d'écoulement est parfois confondu à tort avec le seuil de fluage ou la limite élastique. En réalité, la limite élastique, ou plus justement la limite de linéarité, correspond au point où la tangente à l'origine ne se superpose plus à la courbe de comportement. Les paramètres généralement fournis incluent la contrainte au seuil d'écoulement élevé ainsi que l'allongement à la rupture. Bien que la contrainte à la rupture puisse sembler sans signification physique en raison de la réduction de section, il est regrettable que l'allongement au seuil d'écoulement élevé soit encore sous-représenté dans la documentation technique, alors qu'il représente l'allongement maximal que le matériau peut supporter sans altération [23]. Ce critère est crucial pour établir des courbes isométriques de durée de vie, utiles dans la conception de structures. De plus, cette caractéristique varie peu en fonction de la vitesse de traction et de la température, se situant généralement entre 4 et 10 % pour la majorité des thermoplastiques. Les propriétés associées au seuil bas, bien que moins fréquemment utilisées, sont également importantes dans certains procédés de mise en œuvre, comme l'étirage.

- ✓ **Courbes de type III (Matériaux ductiles sans seuil d'écoulement) :**

Certains polymères cristallins présentent un comportement plastique sans seuil d'écoulement très marqué, caractéristiques des matériaux résilients. En plus des paramètres de rupture, un seuil conventionnel est défini, soit à l'intersection de la droite parallèle à la tangente à l'origine de la courbe de type III pour une déformation spécifiée (variant de 0,1 à 1 %) selon la norme ASTM D 638, soit à l'intersection de la perpendiculaire à l'axe des abscisses pour une déformation prescrite [23].

(X %) selon la norme NF EN ISO 527.

- ✓ **Courbes de type IV (matériaux élastomères) :**

Ce type de comportement, typique des élastomères et observé avec les polymères amorphes au-dessus de leur température de transition vitreuse, permet de déterminer la contrainte ainsi que l'allongement à la rupture [45]. On calcule souvent également un module sécant à 100 ou 200 % d'allongement (NF T 46-002).

II.3. Structure et morphologie des polymères

1. Polyéthylène haute densité (PEHD)

- Le PEHD est un polymère thermoplastique semi-cristallin [24].
- Il est constitué de longues chaînes linéaires de molécules d'éthylène $(C_2H_4)_n$, avec peu ou pas de ramifications.
- Cette structure linéaire et ordonnée permet un emballage moléculaire compact, donnant au matériau une densité plus élevée et une cristallinité accrue (typiquement 70 à 80 %).
- La morphologie comprend :
    - **Zones cristallines** : lamelles cristallines empilées en sphérolites.
    - **Zones amorphes** : chaînes désordonnées entre les lamelles.

Cela confère au PEHD une grande rigidité, une résistance chimique et de bonnes performances mécaniques.

2. Polypropylène (PP)

- Le PP est aussi un polymère semi-cristallin, mais avec une structure plus variée selon la tacticité (isotactique, syndiotactique ou atactique) [2].
- Le polypropylène isotactique est le plus courant industriellement et possède une cristallinité modérée à élever (environ 50 à 70 %).
- Sa structure contient :
    - Des chaînes régulièrement organisées dans les zones cristallines.
    - Des régions amorphes avec des chaînes désordonnées.
- La tacticité influence fortement ses propriétés mécaniques :
    - **Isotactique** : haute cristallinité → rigide, bonne résistance à la traction [2].
    - **Atactique** : amorphe → souple, utilisé dans les adhésifs ou mastics [2].

Le PP se distingue par sa légèreté, sa bonne résistance à la fatigue et sa facilité de mise en forme.

II-4. Propriétés fondamentales des deux polymères

1. Polyéthylène haute densité (PEHD)

Le polyéthylène haute densité se présente sous une structure semi-cristalline, avec une densité comprise entre 0,94 et 0,96 g/cm³ [24].

– Température de fusion : entre 125 et 135 °C.

– Température de transition vitreuse : située entre -130 et -100 °C.

– Conductivité thermique : varie de 0,33 à 0,53 W/(m·K).

– Capacité calorifique spécifique : se situe entre 1,8 et 2,7 J/(g·K).

– Module d'élasticité (E) : entre 600 et 1400 MPa.

– Le PEHD présente une résistance à la traction élevée, ainsi qu'une excellente résistance aux chocs et à l'abrasion.

2. Polypropylène (PP)

Quant au polypropylène, il adopte également une structure semi-cristalline, avec une densité allant de 0,855 à 0,93 g/cm³ [41].

– Température de fusion : varie entre 130 et 171 °C, en fonction de la tactilité.

– Température de transition vitreuse : environ -18 °C.

– Conductivité thermique : environ 0,12 W/ (m.K).

– Module d'élasticité : se situe entre 1300 et 1800 MPa [6].

– Le polypropylène possède une bonne résistance à la fatigue et aux chocs, tandis que sa faible densité est un atout supplémentaire.

II-5. Propriétés mécaniques des polymères

II-5.1. Comportement thermique

a. **La transition vitreuse (Tv)** : représente une caractéristique d'un polymère amorphe (chaînes dans un état chaotique). À des températures basses, les chaînes se figent et le polymère est dans un état vitreux (solide, dur et fragile). En élevant la température (l'énergie thermique) à un certain niveau, nommée température de

transition vitreuse (Tv), les déplacements des chaînes sont autorisés ; le polymère se ramollit et passe à l'état élastique (chaînes entremêlées) [22].

T < Tv : le polymère présente un état vitreux.

T > Tv : le matériau présente une consistance caoutchouteuse.

La liste des températures de transition vitreuse est présentée dans le tableau ci-dessous.

Tableau II.1 : Températures de transition vitreuse (Tv) de différents polymères [22].

Matériau	Température de transition vitreuse (Tv) [°C]
Polyéthylène (faible densité - PEBD)	≈ -110°C
Polyéthylène (haute densité – PEHD)	≈ -97°C
Poly-tétrafluorur0éthylène (PTFE, Teflon)	≈ -90°C
Polypropylène (PP)	≈ -18°C
Nylon 6.6 (polyamide 6.6)	≈ 57°C
Polyester (ex : PET)	≈ 69°C

b. Fusion (Tf) : est une caractéristique d'un polymère cristallin, où les chaînes sont organisées de manière ordonnée. Dans cet état cristallin, il n'y a pas de mouvement des chaînes, ce qui confère au polymère une rigidité certaine. En élevant la température jusqu'à atteindre la température de fusion (Tf), l'énergie thermique devient suffisamment élevée pour initier le mouvement des chaînes. Ce processus entraîne la destruction de la structure cristalline, et le polymère se transforme alors en un liquide visqueux. (Figure II.2).

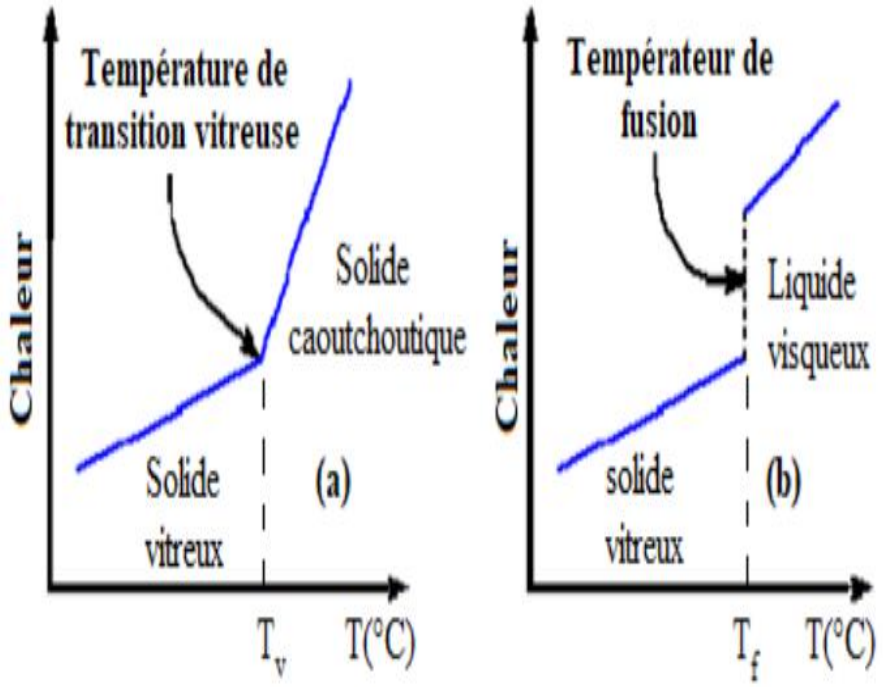


Figure II.2 : Température en relation avec la chaleur pour un polymère (a) amorphe, (b) cristallin [22].

II-5.2. La masse volumique

– La densité d'un polymère cristallin est plus élevée que celle d'un polymère amorphe constitué du même matériau et possédant la même masse molaire, en raison de son empilement plus prononcé. ρ (Polymère cristallin) est supérieur à ρ (polymère amorphe) (il s'agit du même polymère).

– La densité d'un polymère amorphe est plus faible que celle d'un polymère élastomère fabriqué à partir de la même matière, en raison du rétrécissement de ses chaînes induit par la température [22]. ρ (Polymère vitré) < ρ (polymère élastomère) (identique au polymère).

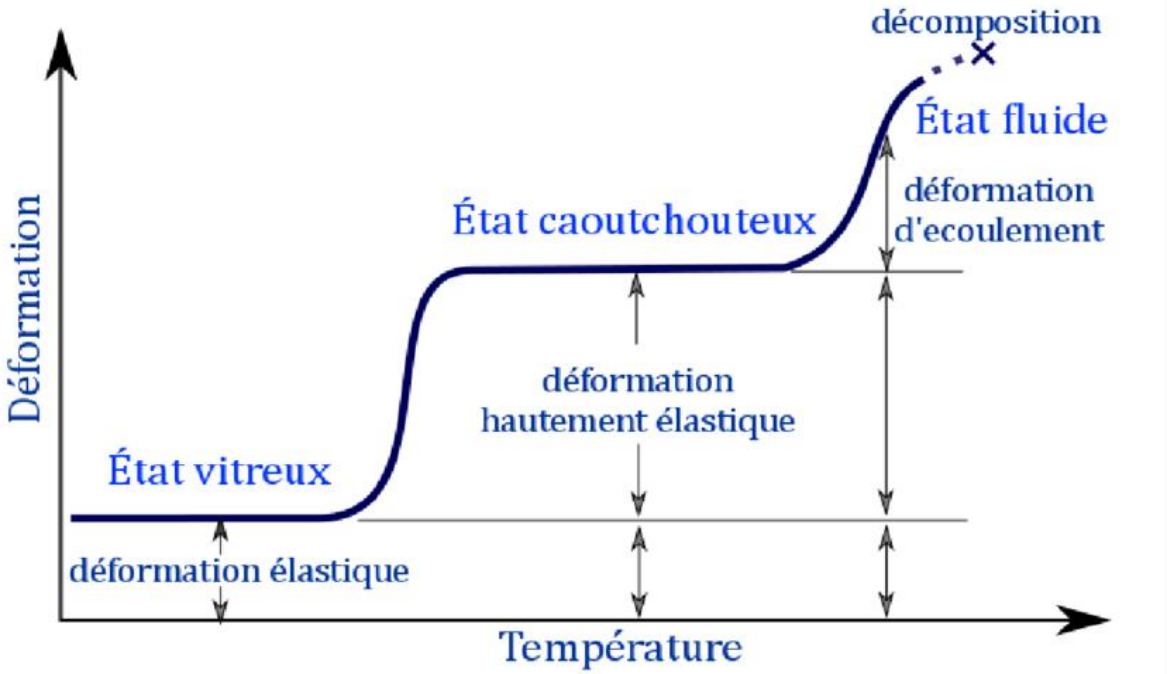


Figure II.3 : Influence de la température sur l'état des polymères [22].

II-5.3. Sensibilité du module à la température et au temps

L'analyse de la variation du module de Young en fonction de la température permet de mettre en évidence ces transitions de phase si caractéristiques [38]. Les courbes $\sigma = f(\varepsilon)$ varient bien sûr selon la température à laquelle l'expérience de traction est réalisée (figure II.4).

Il convient ensuite de mesurer les pentes des segments linéaires aux températures spécifiées, afin de les reporter sur un graphique représentant le module de Young (E) en fonction de la température. Ainsi, nous obtenons les graphiques suivants selon la nature des polymères [22] :

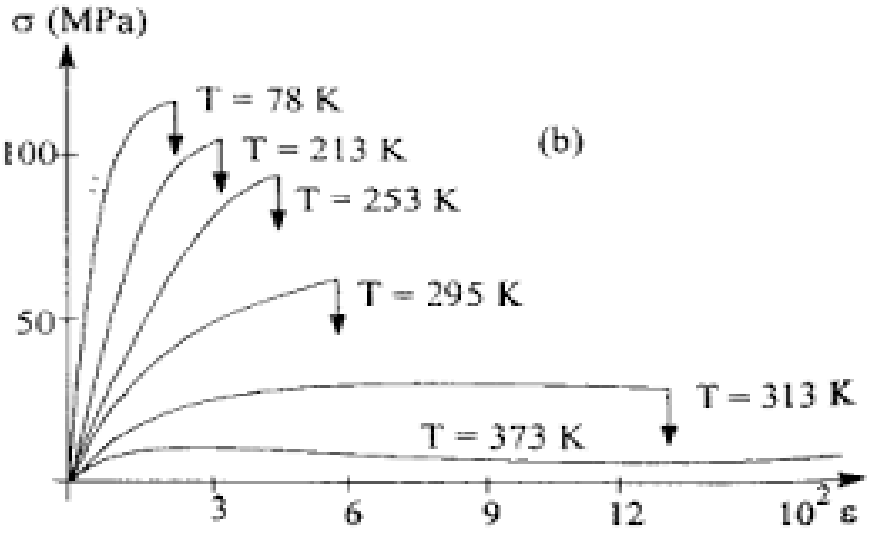


Figure II.4 : Graphiques σ = f(c) en relation avec la température [22].

La dépendance du module de Young des polymères à la température est clairement illustrée par la figure II.4.

La variation du module d'Young durant la transition vitreuse est d'autant plus minime que le polymère présente une plus grande cristallinité. Pour les polymères amorphes, le module de Young de la région vitreuse est plus élevé que celui de la zone caoutchouteuse. La valeur approximative de E est la même pour tous les états vitreux, indépendamment du type de polymère [22].

II-6. Paramètres influençant la température de transition vitreuse (Tv)

a. Masse molaire : La température de transition vitreuse (Tv) tend à augmenter avec la masse molaire moyenne en nombre des polymères.

b. Rigidité des chaînes : La rigidité des chaînes polymériques a également un impact significatif sur la valeur de Tv. En effet, des chaînes plus rigides entraînent des températures de transition vitreuse plus élevées. Ce phénomène est lié à une augmentation de l'énergie d'activation. Par exemple, les chaînes contenant des doubles liaisons C=C au sein de leur structure principale, ainsi que celles qui présentent une forte aromaticité, telles que les molécules de benzène formant des structures cycliques, illustrent ce concept.

c. Volume libre des polymères : Le volume libre (VL) d'un polymère correspond à l'espace non occupé par les molécules elles-mêmes. Il est défini par la relation suivante : **VL = V - Vs**, où V est

le volume spécifique du polymère (en cm^3/g) et Vs est le volume spécifique des molécules compactées (en cm^3/g). Plus le volume libre est important, plus la mobilité des molécules augmente, ce qui entraîne une diminution de la température de transition vitreuse.

d. Forces d'attraction entre les molécules : L'intensité des liaisons intermoléculaires joue également un rôle crucial. Plus ces liaisons sont fortes, plus l'énergie thermique nécessaire pour les rompre est élevée, ce qui se traduit par une Tv plus élevée.

e. Mobilité interne des chaînes : Enfin, la mobilité interne des chaînes, soit leur capacité à tourner autour des liaisons, impacte également la Tv. En effet, une plus grande liberté de mouvement des chaînes se traduit généralement par une température de transition vitreuse plus basse [22].

II.6.1. Polyéthylène à haute densité

1. Rigidité

Le polyéthylène haute densité maintient une rigidité significative même à des températures élevées (80 °C). Sa rigidité à 23 °C (coefficient d'élasticité en traction = 250 MPa) [24].

2. Comportement au choc

La résistance au choc d'un matériau est inversement liée à sa rigidité. Pour une pièce en polyéthylène haute densité, cette résistance s'améliore lorsque [25] :

- La masse molaire est plus élevée, bien que cela complique le processus de transformation.
- La cristallinité est plus faible, ce qui contribue également à une réduction de la rigidité.
- La température ambiante augmente, même si la rigidité diminue considérablement avec la température.
- La distribution des masses molaires est plus étroite, notamment pour les pièces injectées, réduisant ainsi les tensions internes.

L'excellente résistance au choc à basse température du polyéthylène haute densité, est attribuée à sa température de transition vitreuse, qui se situe autour de -110 °C.

3. Comportement au fluage

Le fluage désigne les déformations (allongement, fléchissement, écrasement) d'une pièce soumise à une charge constante au fil du temps. Il constitue une manifestation de la viscoélasticité des plastiques. Cette propriété doit être prise en compte lors du dimensionnement de pièces soumises à des contraintes prolongées [25].

Le comportement au fluage peut être évalué au cours d'essais mécaniques simples de traction mon axiale ou de flexion ; il est d'autant meilleur que la masse molaire est importante.

4. Dureté

Le polyéthylène haute densité présente une dureté relativement faible, au point qu'il peut être facilement rayé par l'ongle. Cette dureté varie peu d'une résine à l'autre et tend à augmenter avec le niveau de cristallinité [25].

5. Resistance à l'usure

La surface paraffinique du polyéthylène haute densité lui confère un coefficient de friction réduit. L'augmentation de la masse molaire et de la cristallinité contribue à une plus grande résistance à l'abrasion ; les PE-HD de masse molaire extrêmement élevée se distinguent particulièrement dans ce domaine [25].

II-6.2. Polypropylène

1. Élasticité

Le polypropylène (PP) est un matériau complexe par sa nature semi-cristalline. Comme tout système polyphasé, son comportement mécanique dépend d'une part du comportement de chacune des phases et d'autre part, de leur arrangement, de leur couplage.

Mais le comportement mécanique des semi-cristallins ne résulte pas seulement de leur aspect composite (souvent traité comme une matrice amorphe renforcée par des cristallites de module élevé), mais aussi de la modification de la phase amorphe qui apparaît plus ou moins réticulée par les lamelles cristallines [5].

Il est admis que le diamètre sphérolitique influe peu sur le module d'élasticité, sauf dans le cas de très gros sphéroïdes, des chaînes défectueuses se ségrégent aux frontières inter sphérolitiques, ce qui a pour effet d'abaisser le module.

2. Rigidité

Les polypropylènes homopolymères présentent une rigidité élevée à la température ambiante.

La rigidité du polypropylène homopolymère à 100 °C est comparable à celle d'un polyéthylène basse densité à température ambiante. Par conséquent, les objets en le polypropylène peuvent être stérilisé à la vapeur de manière répétée [6].

3. Résistance au choc

Le comportement au choc du polypropylène dépend de sa composition, de sa masse moléculaire, de l'orientation moléculaire et du degré de cristallinité. La résistance au choc d'un polypropylène augmente avec sa masse moléculaire et varie dans le même sens que la température. La tendance à la fragilité apparaît d'autant plus vite que la masse moléculaire est faible. Dans le cas d'applications à basse température, il y a lieu d'utiliser des copolymères. Séquencés qui conservent de bonnes propriétés à des températures inférieures à 0 °C.

4. Caractéristiques en traction et en flexion répétées

La cristallinité élevée du polypropylène lui confère de bonnes propriétés en traction. Le comportement du polypropylène est fortement influencé par la vitesse d'étirage, de façon suivante :

- Si elle est faible, après la déformation élastique, l'étirement a lieu jusqu'à la rupture. Un allongement de 800 à 1200 %. Pendant cette deuxième étape, la résistance augmente du fait de l'orientation parallèle des chaînes.
- Si elle est élevée ou moyennement élevée, la rupture a lieu dans la zone de déformation élastique ou après la déformation élastique dans une zone de striction. Le polypropylène a d'excellentes propriétés en flexion répétée, d'où son utilisation pour la réalisation de charnières intégrées à la pièce injectée [6].

5. Dureté – abrasion

- La dureté du polypropylène homopolymère est supérieure à celle du polyéthylène.

- Haute densité.

- La résistance à l'abrasion est bonne, voisine de celle des polyamides.

- Les ces articles ont une surface brillante et une résistance à la rayure excellente [2].

II.7. Facteurs influençant les propriétés de traction

Les propriétés de traction d'un matériau sont soumises à l'influence de divers facteurs essentiels, parmi lesquels :

– **Composition chimique** : la nature des atomes et des molécules qui constituent le matériau joue un rôle crucial dans sa résistance et sa ductilité.

– **Structure cristalline** : L'agencement des atomes au sein de la structure cristalline a un impact direct sur la rigidité et la résistance à la rupture du matériau.

– **Traitements thermiques et mécaniques** : les traitements thermiques, tels que le recuit et le trempage, peuvent modifier la structure cristalline, impactant ainsi les propriétés de traction. De même, les traitements mécaniques, comme le laminage et le forgeage, altèrent également la structure du matériau, influençant ses caractéristiques.

– **Présence de défauts** : les imperfections, telles que les fissures et les inclusions, peuvent affaiblir le matériau, diminuant sa résistance à la traction.

Ces éléments combinés déterminent en large partie la performance d'un matériau sous contrainte [26].

CHAPITRE III

Comportement rhéologique des polymères

III-1. Introduction

La manière dont les polymères réagissent lorsqu'ils sont soumis à une contrainte ou à une déformation est décrite par leur comportement rhéologique. Contrairement aux fluides simples, les polymères présentent une réponse complexe qui dépend de la température, du temps et de leur structure. Selon les circonstances, ils peuvent se comporter comme des solides ou des liquides. Comprendre leur rhéologie est crucial pour contrôler leur transformation industrielle (comme l'extrusion ou le moulage) et maximiser leur performance utilisable.

III-2. Définitions

III-2.1. La rhéologie

La rhéologie est une branche de la mécanique dédiée à l'étude des relations entre la viscosité, la plasticité et l'élasticité de la matière, en plus de ses comportements face aux pressions exercées. Cette discipline scientifique se concentre sur les déformations ainsi que sur l'écoulement des matériaux, cherchant à analyser leurs comportements mécaniques et à établir des lois qui les régissent. La rhéologie intègre plusieurs disciplines fondamentales, telles que la résistance des matériaux, la mécanique des fluides et la plasticité, entre autres. Les matériaux peuvent être classés selon leur comportement : On trouve d'une part des corps très déformables ou fluides, qui subissent une déformation notable sous l'effet d'une pression hydrostatique et qui s'écoulent indéfiniment même sous une contrainte de cisaillement faible [27].

D'autre part, il existe des corps peu déformables ou solides, qui affichent une déformation finie peu importe la nature de la contrainte, et cela jusqu'à un certain seuil.

Enfin, il y a les matériaux les plus courants, qui se situent entre ces deux extrêmes, tels que ceux au comportement élastique, plastique, visqueux ou viscoplastique [27].

On peut classer la rhéologie en trois types :

– La rhéologie expérimentale : elle établit de manière expérimentale le lien entre les contraintes et la vitesse de déformation.
– La rhéologie structurale : elle décrit le comportement du matériau en fonction de sa structure.
– La rhéologie théorique : elle offre un nombre restreint de modèles mathématiques décrivant les comportements indépendamment de sa structure microscopique.

III-3. Propriétés rhéologiques

Tableau III.1 : Propriétés rhéologiques comparées du PEHD et du PP [15,6].

Propriété	PEHD (Polyéthylène haute densité)	PP (Polypropylène)
Type de fluide	Pseudo-plastique (non-newtonien)	Pseudo-plastique (non-newtonien)
Viscosité à l'état fondu	Moyenne à élevée	Moyenne
Sensibilité au cisaillement	Forte : viscosité diminue fortement avec le cisaillement	Forte aussi, mais un peu plus stable que le PEHD
Indice de fluidité (MFI)	Variable (0.05 – 25 g/10 min selon grade)	Variable (1 – 50 g/10 min selon usage)
Température de fusion	~130–135 °C	~160–170 °C
Température de traitement	~180–250 °C	~200–280 °C
Comportement viscoélastique	Très marqué, retour élastique après mise en forme	Présent aussi, mais un peu moins prononcé
Stabilité thermique	Assez bonne, mais limité en haute température	Meilleure résistance thermique que le PEHD
Effet de la température	Forte baisse de viscosité quand on chauffe	Même chose, mais plus linéaire

Alors le PEHD à l'état fondu se comporte de manière viscoélastique non linéaire, ce qui implique que sa viscosité diminue avec l'augmentation du cisaillement. Lors du processus d'extrusion, le

polyéthylène est soumis à un gradient de vitesse de cisaillement, allant du cylindre de l'extrudeuse jusqu'à la filière. Il est donc essentiel de connaître la courbe de viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement sur l'ensemble de la plage de cisaillement. La mesure de l'indice de fluidité à chaud (IF) permet d'estimer la viscosité à une vitesse de cisaillement spécifique [29].

III-4. Grandeurs analysées dans le domaine de la rhéologie

III-4.1. Limitation de cisaillement

Un flux est considéré comme laminaire lorsqu'il est constant (qu'il ne comporte pas trop de fluctuations spatiales ou temporelles) ; on l'appelle également stationnaire. La viscosité, en général, assure la stabilité et la régularité des flux. Un fluide ayant une viscosité élevée s'écoulera de manière laminaire [27].

On caractérise un écoulement par son nombre de Reynolds, qui donne une indication sur la nature de l'écoulement : lorsque ce chiffre est faible, l'écoulement se présente comme laminaire ; lorsqu'il dépasse une certaine limite, il devient généralement instable et turbulent.

On envisage l'expérience suivante où le fluide peut subir un mouvement de cisaillement.

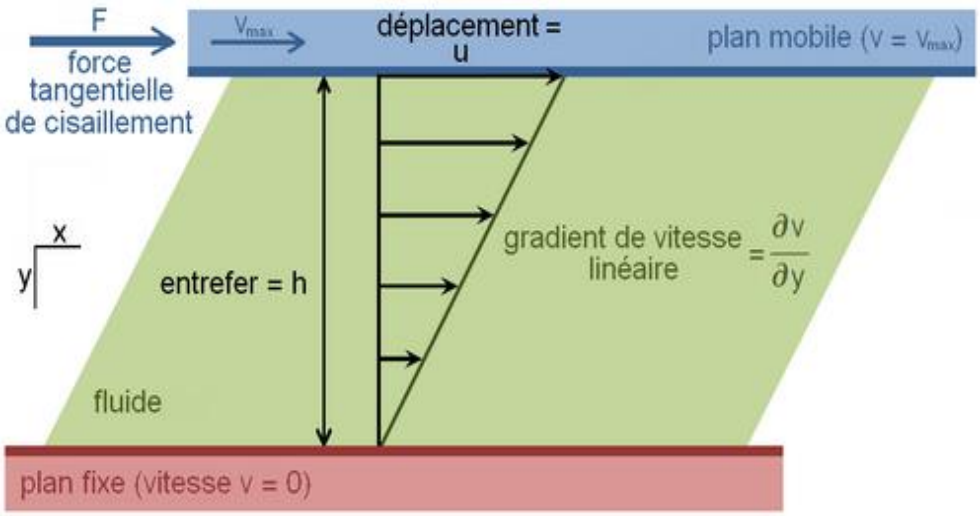


Figure III.1 : Expérience de mouvement de cisaillement sur un fluide [30].

On exerce une traction sur une feuille d'aluminium située au-dessus d'un liquide afin de lui conférer une vitesse Vmax.

Il est démontré que Vmax s'accroît avec F et h, tandis qu'elle se réduit avec S [30].

F : la force ; **h** : la hauteur S La partie

La force que l'on applique par unité de surface du fluide est ce qu'on appelle la contrainte de

cisaillement.

τ = Mesuré en Pascals (Pa) ou Newton/m², équivalent aussi à dynes/cm dans le système CGS.

III-4.2. Taux de cristallinité

Les polymères ne sont jamais entièrement cristallins. Ils doivent plutôt être envisagés comme des combinaisons de phases cristallines et de phases amorphes, ce qui explique la dénomination traditionnelle attribuée aux polymères semi-cristallins.

la fraction de la masse totale constituée de matière cristalline.

$$\mathbf{Xc}=\frac{M_C}{M}\ \mathbf{et}\quad \mathbf{vc}=\frac{V_C}{C}\mathbf{.....(1)}$$

Où : Xc : fraction massique cristalline (ou taux de cristallinité en masse

Mc : masse de la phase cristalline

M : masse totale de l'échantillon

III-4.3. Transition vitreuse

La transition vitreuse se réfère à la conversion progressive d'un liquide en substance élastique puis en matière dure lors du refroidissement. Le solide rigide obtenu maintient une structure moléculaire désorganisée spécifique à l'état liquide. Le changement d'état du polymère de sa forme caoutchouteuse à sa forme solide, connu sous le nom de température de transition vitreuse, est caractérisé par une réduction des mouvements de grands segments des chaînes moléculaires lorsque la température diminue.

Quand on chauffe un polymère rigide dont la température est en dessous de Tg, les mêmes phénomènes se déroulent exactement dans l'ordre inverse [30].

III.4.4. Température de transition vitreuse.

Pour la majorité des polymères, on observe une température connue sous le nom de température de transition vitreuse, Tg, qui détermine une limite entre deux états essentiels [31] :

• l'état caoutchouteux : souple, fluide visqueux (températures élevées)

l'état vitré : dur et fragile (températures basses)

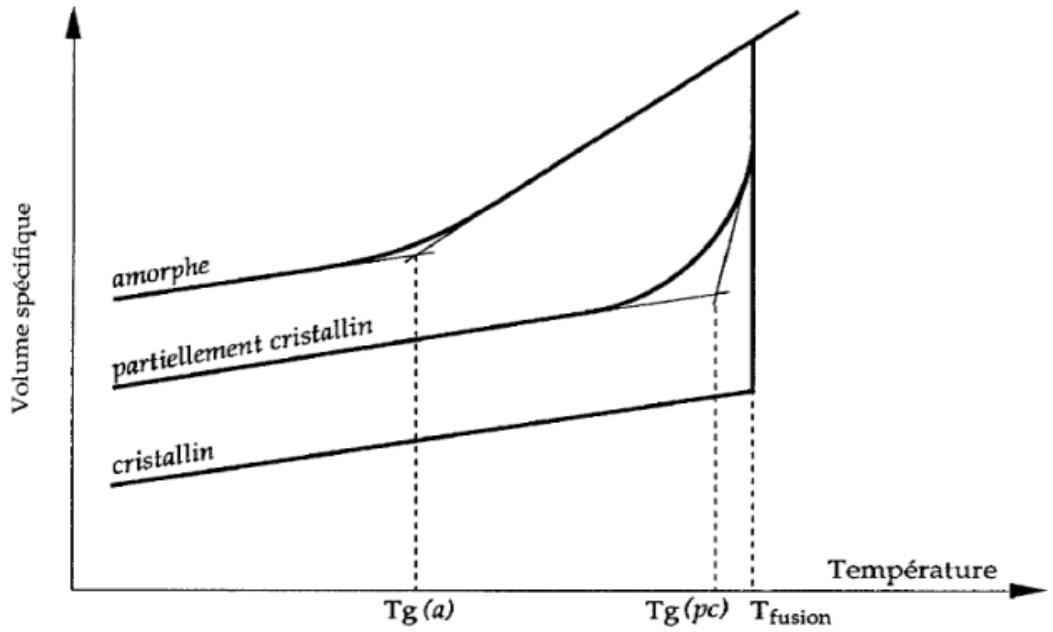


Figure III.2 : Variation du volume spécifique en fonction de la température pour des polymères amorphes, partiellement cristallin et cristallin [31].

III-5. Les déformations et les contraintes

En rhéologie et en science des matériaux, les concepts de déformation et de contrainte des polymères sont primordiaux. Ils expliquent la manière dont les polymères réagissent aux forces et aux contraintes mécaniques [30]. Voici une description plus approfondie de ces termes :

III-5.1. Déformations

La déformation d'un matériau, y compris des polymères, désigne la modification de sa forme ou de ses dimensions lorsqu'il est soumis à une force ou à une contrainte. On distingue plusieurs sortes de déformations :

- **Déformation élastique**

Lorsqu'un matériau est soumis à une force, il se déforme de manière temporaire et retrouve sa forme initiale dès que la force n'est plus appliquée. Cette déformation est réversible et respecte la loi de Hooke, selon laquelle la déformation est proportionnelle à la force appliquée [30].

- **Déformation plastique**

Au-delà d'un seuil spécifique, connu sous le nom de limite d'élasticité, le matériau peut connaître une déformation durable même une fois la force appliquée libérée. Cela peut englober des déformations plastiques, des déformations irréversibles et éventuellement des ruptures, comme illustré à la figure III.3.

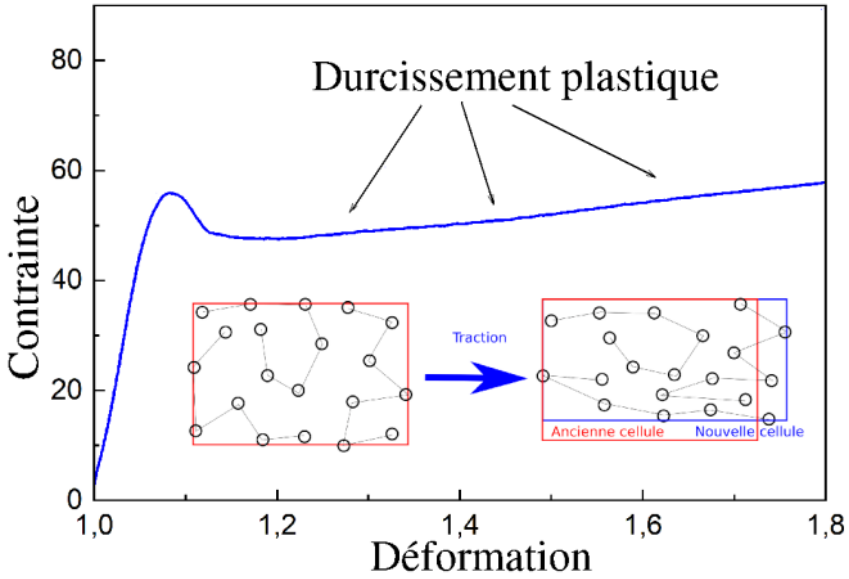


Figure III.3 : Courbe de déformation plastique des polymères [30].

III-5.2. Les courbes de contrainte-déformation

Des courbes de contrainte-déformation peuvent représenter le lien entre la contrainte et la déformation d'un matériau. Ces graphiques illustrent la relation entre la contrainte appliquée et la déformation que le matériau endure.

La configuration de la courbe est influencée par les caractéristiques du matériau [30]. Pour les polymères, les courbes peuvent montrer des zones de comportement visqueux et élastique. Leur comportement viscoélastique indique qu'ils peuvent démontrer à la fois des propriétés élastiques, lorsqu'ils retrouvent leur forme originale, et visqueuses, lorsqu'ils manifestent une déformation durable (figure III.4).

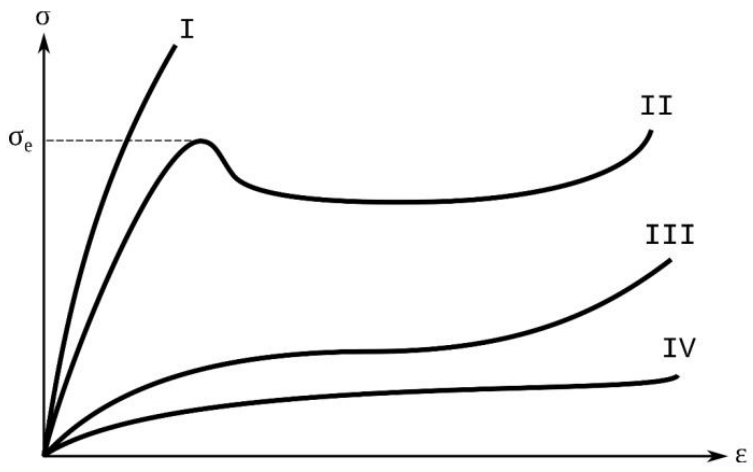


Figure III.4 : Courbes contrainte-déformation, (I) : Fragile, (II), Viscoélastique avec seuil d'écoulement, (III) : Viscoélastique avec seuil d'écoulement, (IV) : Viscoélastique sans seuil viscoplastique [30].

III-6. Viscosité et élasticité des polymères

La viscosité et l'élasticité constituent deux caractéristiques mécaniques essentielles des polymères qui affectent leur réaction face aux forces et aux déconstructions. Il est crucial de se familiariser avec ces caractéristiques pour bien cerner le comportement rhéologique des polymères.

a) Viscosité

La viscosité d'un matériau indique sa résistance à l'écoulement. Plus précisément, cela correspond à une évaluation de la friction interne ou de la résistance au mouvement des molécules d'un matériel lorsqu'il subit une pression de cisaillement [30]. Les polymères peuvent présenter une viscosité élevée, signifiant qu'ils ont une forte résistance à l'écoulement, ou une viscosité faible, ce qui les rend plus liquides.

b) Élasticité

L'élasticité d'un matériau désigne sa capacité à retrouver sa forme originale après avoir été modifié par un effort. Les polymères peuvent démontrer un comportement élastique, où ils retournent à leur forme initiale dès que la force appliquée est enlevée, ou un comportement plastique, caractérisé par une déformation durable.

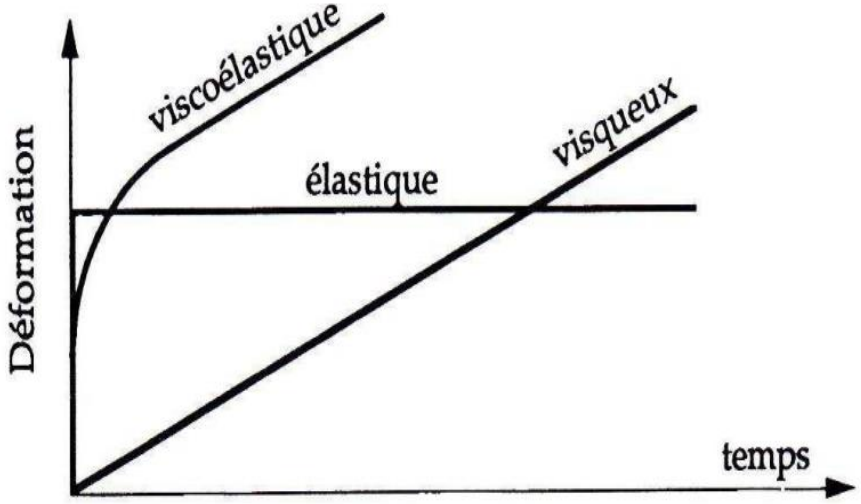


Figure III.5: Comportement viscoélastique [30].

III-6.1. Comportement viscoélastique

Un grand nombre de polymères affichent un comportement viscoélastique, ce qui indique qu'ils possèdent à la fois des caractéristiques élastiques et visqueuses [30]. Cela implique qu'ils peuvent subir des déformations temporaires sous l'influence d'une force (similaire à un comportement élastique) et exhiber des déformations durables avec le temps (relevant d'un comportement visqueux).

III-6.2. Module d'élasticité et module de viscosité

Les caractéristiques élastiques et visqueuses des polymères sont souvent évaluées par deux paramètres clés : le module d'élasticité (également appelé module de Young) et le module de viscosité (ou viscosité dynamique).

• Module d'élasticité (E)

Ceci représente l'indice de rigidité du matériau et sa faculté à résister à la déformation élastique. Un module d'élasticité élevé signale que le matériau est rigide et présente une faible déformation sous l'effet d'une contrainte [30].

- **Module de viscosité (η)**

Ceci est une évaluation de la résistance au mouvement interne du matériau en réponse à une contrainte de cisaillement. Un module de viscosité élevé indique une résistance conséquente à l'écoulement.

III-7. Modèles rhéologiques

III-7.1. Modèles de comportement viscoélastique

Les modèles rhéologiques constituent des formules mathématiques qui cherchent à représenter le comportement mécanique complexe des substances, en particulier leur comportement viscoélastique. Ils servent à anticiper et à simuler la réaction d'un matériau face à des contraintes et des déformations spécifiques [30]. Voici plusieurs modèles rhéologiques fréquemment rencontrés, incluant le modèle de Maxwell, le modèle de Kelvin-Voigt et le modèle de Burgers :

1. Modèle de Maxwell

Le modèle de Maxwell est l'un des plus basiques pour représenter le comportement viscoélastique. Il se compose d'un ressort (composant élastique) et d'un amortisseur (composant visqueux) connectés en série. Ce modèle est utilisé pour illustrer comment les matériaux réagissent de manière élastique à des fréquences faibles et visqueuse à des fréquences élevées

$$\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}(\boldsymbol{t}) = \frac{\mathbf{1}}{\boldsymbol{E}}\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}(\boldsymbol{t}) + \frac{\boldsymbol{\sigma}(\boldsymbol{t})}{\eta} \quad \text{.....(2)}$$

2. Modèle de Kelvin-Voigt (ou modèle de viscoélasticité linéaire)

Ce modèle intègre en parallèle un ressort (composant élastique) et un amortisseur (composant visqueux), ce qui signifie que les deux composants fonctionnent simultanément. Le modèle de Kelvin-Voigt est applicable pour décrire le comportement viscoélastique d'un matériau sur une large gamme de fréquences.

$$\boldsymbol{\sigma}(\boldsymbol{t}) = \boldsymbol{E}\boldsymbol{\varepsilon}(\boldsymbol{t}) + \dot{\boldsymbol{\varepsilon}}(\boldsymbol{t}) \quad \text{.....(3)}$$

3. Modèle de Burgers

Le modèle de Burgers consiste en une association en série d'un élément de Maxwell (ressort et amortisseur en série) et d'un élément de Kelvin-Voigt (ressort et amortisseur en parallèle). Ce modèle est plus efficace pour saisir le comportement complexe viscoélastique des matériaux [30].

$$\dot{\varepsilon}(t) = \frac{\sigma(t)}{\eta_1} + \frac{1}{E_1}\dot{\sigma}(t) + \frac{1}{\eta_2}\left[\sigma(t) - E_2\,\varepsilon(t)\right] \quad \text{.....(4)}$$

4. Modèle de Zener

Le modèle de Zener se compose d'un ressort et d'un amortisseur, semblable au modèle de Maxwell. Néanmoins, dans ce modèle, l'amortisseur est placé avant le ressort, ce qui offre une meilleure représentativité de la relaxation des matériaux.

$$\sigma(t) + \tau_\sigma\,\dot{\sigma}(t) = E_\infty\,\varepsilon(t) + \tau_\varepsilon\,\dot{\varepsilon}(t) \quad \text{.....(5)}$$

5. Modèle de Maxwell généralisé (ou modèle de Maxwell-Wiechert)

Ce dernier modèle regroupe plusieurs éléments de Maxwell en parallèle afin de prendre en compte des relaxations à différentes échelles temporelles. Il permet ainsi de dépeindre de manière plus précise les comportements viscoélastiques complexes [30].

Bien que ces modèles soient des représentations mathématiques simplifiées de la réalité et ne conviennent pas nécessairement à tous les matériaux ou conditions, ils offrent un moyen de comprendre et de prédire le comportement viscoélastique d'un grand nombre de matériaux. Dans des contextes réels, il peut être nécessaire d'utiliser des modèles plus élaborés et adaptés pour saisir la variété du comportement rhéologique des polymères et d'autres substances.

$$\dot{\varepsilon}(t) = \frac{1}{E_i}\,\dot{\sigma}_i(t) + \frac{\sigma_i(t)}{\eta_i} \quad \text{.....(6)}$$

III-8. Réaction à une charge statique

III-8.1. Fluage et relaxation

Les expériences de fluage impliquent l'application d'une contrainte constante σ_0 à un échantillon sur une durée déterminée, ce qui entraîne une déformation $\varepsilon(t)$ qui varie dans le temps (figure III.6).

Dans le cadre des tests de relaxation, un échantillon est exposé à une déformation stable ε_0, et on surveille la contrainte $\sigma(t)$ nécessaire à appliquer au fil du temps [27].

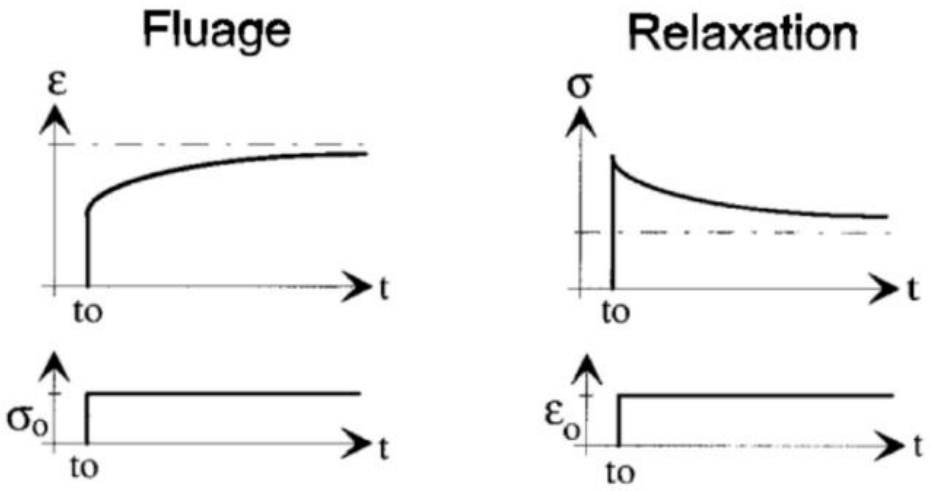


Figure III.6 : Réponse en fluage et relaxation [27].

CHAPITRE IV

Étude Expérimentale

IV-1. Introduction

Les essais mécaniques consistent en des analyses destinées à comprendre le comportement des matériaux (mécanique des milieux continus). La loi de comportement établit une relation entre les tensions (pression égale à force/surface) et les déformations (allongement unitaire sans dimension). Il est important de ne pas confondre une déformation avec un déplacement ou une expansion.

L'essai de traction mesure la capacité d'un matériau à supporter un étirement, en fournissant des données telles que la limite d'élasticité, la résistance maximale et l'allongement au moment de la rupture.

Le test de fluage évalue la déformation progressive d'un matériau soumis à une charge constante et à des températures é levées sur une période prolongée.

L'essai de relaxation consiste à maintenir une déformation constante et à observer la diminution progressive de la tension au fil du temps.

Ces essais sont essentiels pour assurer la fiabilité des matériaux dans différentes conditions d'emploi, spécialement dans des secteurs exigeants comme l'aéronautique, l'énergie ou la construction.

IV-2. Choix du matériau

Notre choix porte sur deux polymères, en l'occurrence le PEHD 80 et le PP.

- La résistance en traction du polyéthylène Haute densité qui dépend essentiellement de sa cristallinité. Le polyéthylène haute densité possède de bonnes propriétés lorsqu'il est soumis à des efforts de traction. La résistance en traction du polyéthylène haute densité est sensible à la température.
- Résistance à la traction : Le polypropylène a une bonne résistance à la traction, ce qui le rend approprié pour les applications où une résistance mécanique est nécessaire.

IV-3. Méthode d'essais mécaniques

IV-3.1. Essai de traction

L'essai de traction, une méthode expérimentale fréquemment employée, est utilisé pour déterminer les propriétés mécaniques des matériaux. Un ensemble de relations entre les contraintes, les déformations et leur progression dans le temps décrit ces comportements. Dans cet essai, on applique une tension sur un échantillon normalisé jusqu'à ce qu'il se rompe. En observant la force F exercée sur l'éprouvette par l'appareil de traction et son extension graduelle, on constate que l'effort produit s'intensifie avec l'allongement jusqu'à atteindre un pic, puis commence à diminuer [32].

IV-3.2. Principe de l’essai

Il s'agit de soumettre un échantillon, maintenu par des mors à ses deux extrémités. Un de ces mors mobiles est connecté à un système de mesure de force par une articulation sphérique pour quantifier les efforts, de manière à aligner l'axe des forces appliquées avec celui de l'éprouvette. Il est attaché à la traverse qui sert de mécanisme d'entraînement à une vitesse de déplacement contrôlée. L'autre mors, qui est fixe, est attaché au cadre de la machine de traction avec une force uni-axiale. Il faut bien évidemment, avant de lancer l’essai, faire amarrer l’éprouvette à la traverse supérieure pour annuler tous les efforts de serrage, car la cellule de charge capte la moindre tension, et s’assurer du retour à zéro de l’échelle du déplacement [23].

IV-3.3. Géométrie et fabrication des échantillons

Les tubes de canalisation d'eau ont servi à extraire des éprouvettes cylindriques axisymétriques qui ont ensuite été façonnées sur un tour conventionnel selon un processus opératoire strictement défini. La géométrie représente une forme cylindrique sur laquelle est réalisée une entaille de divers rayons en fonction du type d'échantillon, comme l'illustre la figure IV.1 [23].

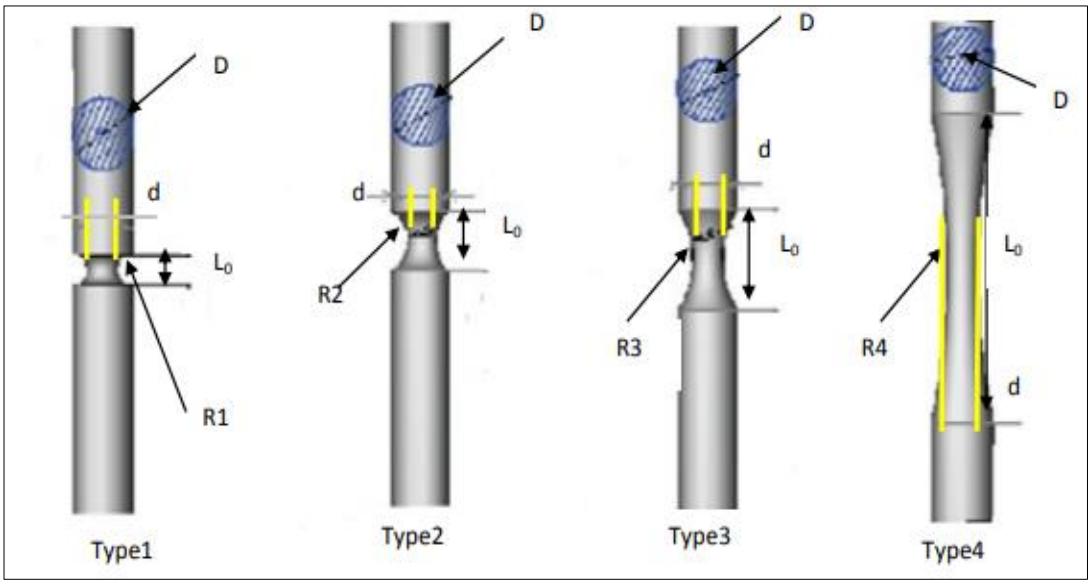


Figure IV.1: géométrie des différentes éprouvettes [23].

IV-3.4. Courbe d'essai de traction

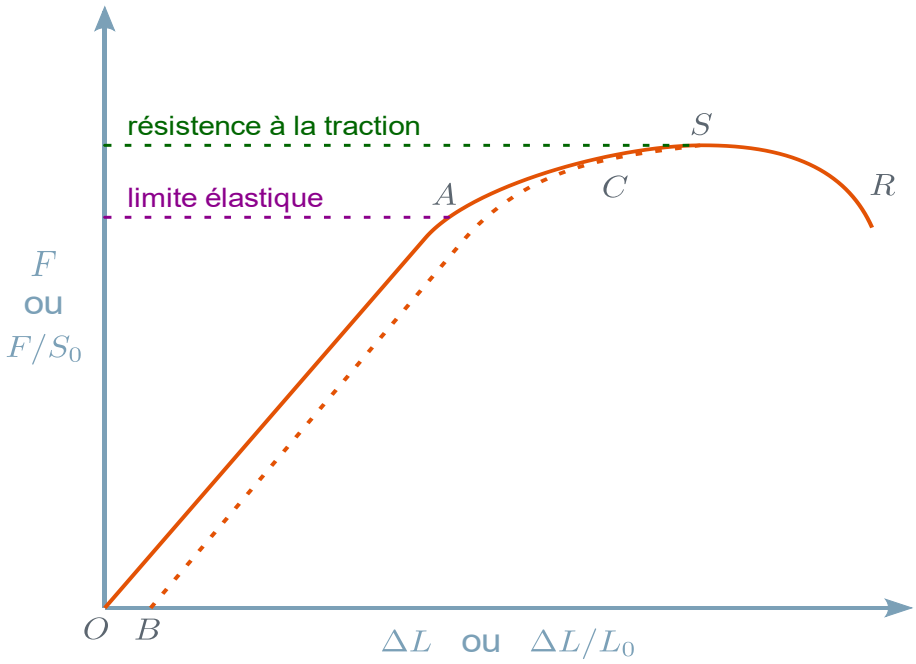


Figure IV.2 : Courbe de traction [46].

OA : Allongement élastique linéaire, réversible.

A : Déformation plastique permanente + déformation élastique.

R : Rupture.

R_e = F $_e$ / S_0 : limite apparente d'élasticité(MPa).

AS : Allongement élastique + allongement plastique réparti.

SR : Apparition et progression d'une striction (réduction de section localisée) dans les matériaux ductiles [2].

IV-3.5. Dimensions des éprouvettes et conditions et la machine d'essais

Les éprouvettes

On emploie des échantillons standardisés de configuration cylindrique ou prismatique pour les tests de traction (figure IV.4) et (figure IV.5). La zone centrale de l'éprouvette est minutieusement fabriquée, c'est l'endroit qui va être déformé sous l'effet de la force appliquée [6].Les bouts de l'éprouvette sont plus larges et sont utilisés pour l'attachement au banc d'essai. L'évolution graduelle des dimensions du centre vers les bords de l'éprouvette est mise en œuvre afin d'éviter une concentration excessive des contraintes.

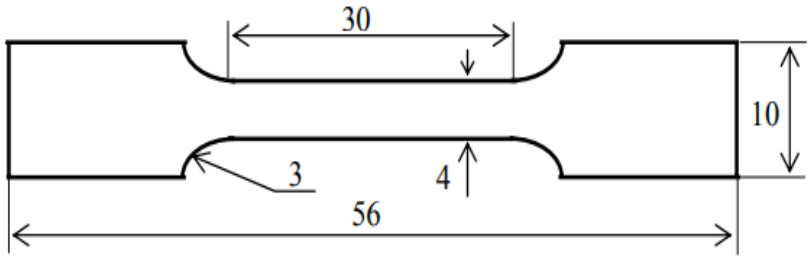


Figure IV.3 : Éprouvette de type Haltère utilisée pour l'essai sur le PP [6].

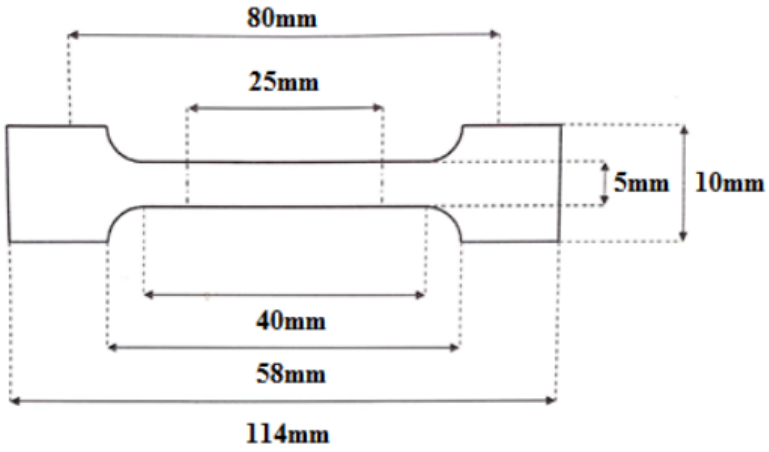


Figure IV.4 : Éprouvette de type Haltère utilisée pour l'essai de traction sur le PEHD [33].

a) Les conditions de test

- Condition de température : du fait que l'appareil n'est pas muni d'un environnement thermique, tous les tests se font à la température ambiante qui est proche de 25 °C.
- Condition concernant les vitesses de déformation : les tests statiques sont habituellement réalisés à des vitesses inférieures à 500 mm/min [23]. C'est pourquoi nous avons sélectionné une plage de vitesses, chaque vitesse étant spécifique à un type d'éprouvette afin de ne pas dépasser cette limite. Dans cette étude, tous les tests sont effectués à un rythme de déformation constant de 10^{-3} s^{-1}.

b) Machine de traction

L'essai est effectué à l'aide d'une machine hydraulique universelle (voir figure IV.5). L'éprouvette utilisée peut être de forme cylindrique ou prismatique. Une extrémité de l'éprouvette est fixée à un dispositif spécial, solidement attaché au cadre de la machine (partie fixe), tandis que l'autre extrémité est reliée à un élément monté sur la traverse mobile. Le mouvement de cette traverse est contrôlé par un vérin hydraulique, qui fonctionne grâce à la pression d'huile fournie par un groupe motopompe. Un indicateur de force permet de mesurer la valeur de la charge appliquée. De plus, un dispositif intégré à la machine permet de tracer la courbe d'évolution de la charge en fonction du déplacement de la traverse [34].

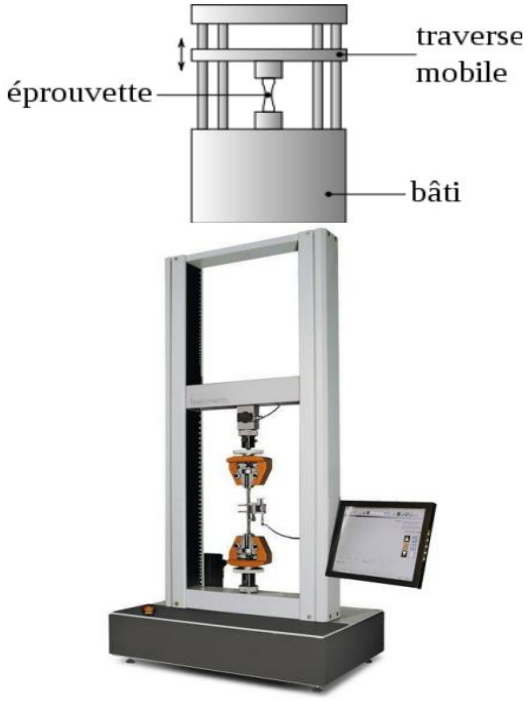


Figure IV.5 : Machine de traction (hydraulique universelle) [34].



Figure IV.6: Machine de traction [35].

IV-4. Comportement contrainte-déformation

Un large éventail de paramètres utilisé pour définir les métaux, comme le module d'élasticité, la capacité de traction, la résistance aux chocs et la limite de fatigue, s'applique aussi à la description des propriétés mécaniques des polymères. Un test de traction élémentaire met en évidence certains paramètres mécaniques de plusieurs polymères. Les propriétés mécaniques des polymères fluctuent considérablement selon la vitesse [].

À partir de la courbe contrainte-déformation, nous pouvons déduire les caractéristiques mécaniques suivantes :

- **Le module d'élasticité E (MPa)** : Il s'agit du module tangent, que l'on détermine à partir de la tangente à l'origine de la courbe contrainte-déformation, soit la pente de cette tangente

($\epsilon = \frac{\Delta\sigma}{\Delta\varepsilon}$).

- **La contrainte au seuil d'écoulement (σy)** : Cette contrainte est calculée en divisant la force appliquée au début de la striction par la section initiale. Elle est souvent considérée comme la limite d'élasticité.

- **La contrainte au plateau de plasticité (σp)** : Cette contrainte correspond au rapport de la force appliquée une fois la zone de plasticité localisée atteinte.

- **La contrainte à la résistance à la rupture (σr)** : Elle est déterminée en prenant le quotient de la force appliquée au moment de la rupture et de la section initiale.

- **La déformation à la rupture (εr)** : Cette valeur est obtenue en calculant le rapport de la force appliquée au moment de la rupture par la section initiale [32].

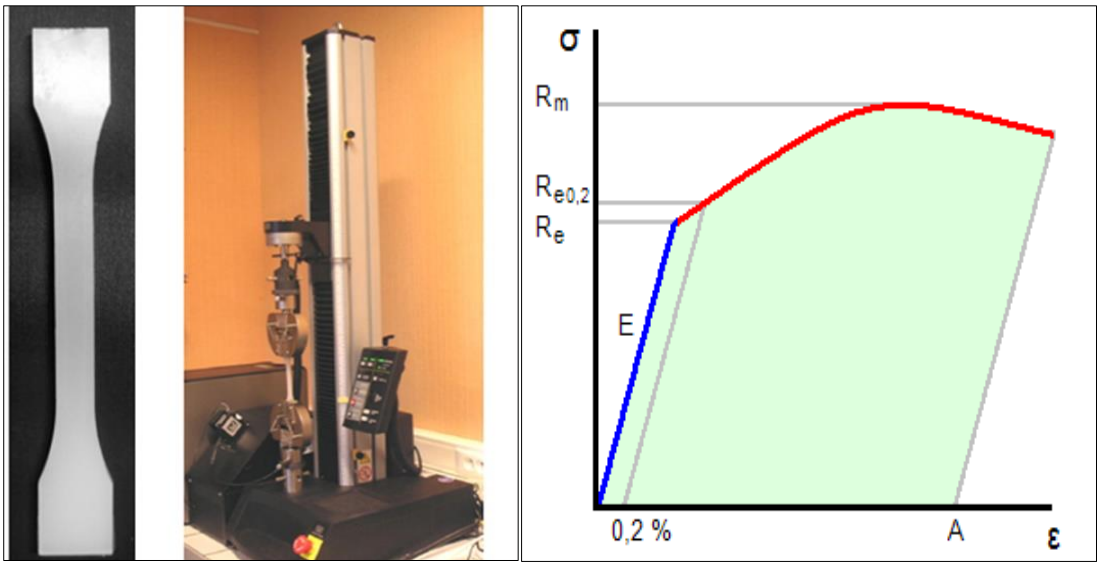


Figure IV7: Éprouvette, machine de traction, courbe contrainte-déformation [36].

IV-5. Étapes de l'essai

Les étapes nécessaires pour la méthode de traction sont les suivantes [2] :

a) Nous devons d'abord présenter les informations pertinentes concernant l'éprouvette à tester, telles que la surface S0, la longueur initiale L0 et sa forme.

b) Positionnez l'éprouvette dans l'appareil d'essai après avoir déterminé sa longueur L0.

c) Présenter les conditions de l'expérience (la vitesse de déformation ou la température).

IV-6. Analyse détaillée des résultats mécaniques

a) POLYPROPYLENE

IV-6.1. Essais de traction à vitesse faible (essais statiques)

La déformation entre deux points fixes a été enregistrée grâce à un extensomètre placé au milieu, à une vitesse de déplacement (vitesse de chargement) de 5 mm/min [37].

Par la suite, l'extensomètre a été retiré et l'échantillon a été soumis à une charge jusqu'à sa rupture.

IV-6.2. Résultats expérimentaux

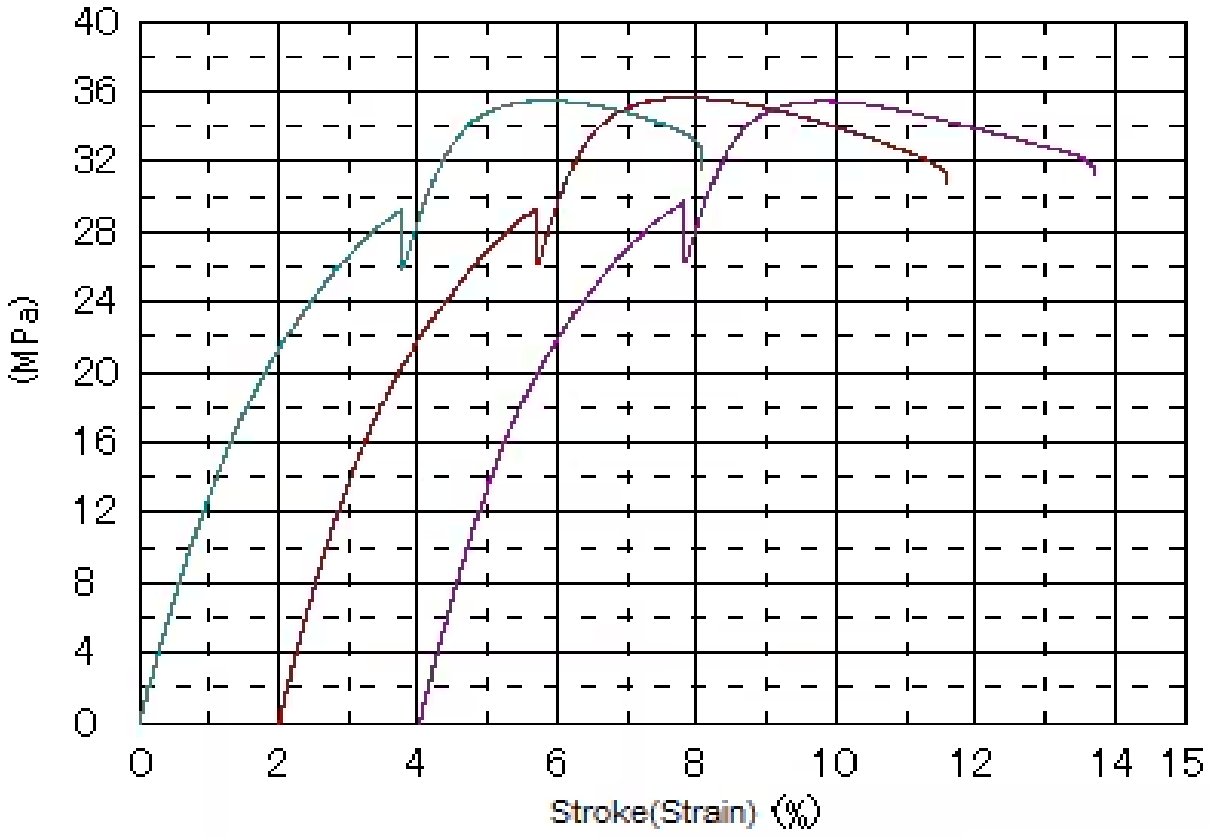


Figure IV.8 : Résultats de l'essai de traction statique de PP [37].

Les résultats de cette expérience sont illustrés dans la figure IV.9, qui présente la corrélation entre la contrainte et la déformation. (Les données pour trois échantillons sont montrées avec un décalage de l'origine.)

Ici, la chute temporaire de la contrainte, à un peu moins de 3 % de déformation, est attribuable à l'arrêt momentané du chargement et à la suppression de l'extensomètre.

Cependant, il est clair que des résultats cohérents ont été obtenus avec une bonne répétabilité [60].

- ✓ La résistance à la traction (moyenne) : les valeurs maximales de contrainte (en MPa)

σ_1 = 36 MPa

σ_2= 35 MPa

σ_3= 36,1 MPa

$$\boldsymbol{\sigma_m = \frac{(\sigma_1+\sigma_2+\sigma_3)}{3}} \text{.....(7)}$$

- ✓ Module de Young (E) : pente de la partie linéaire entre 0% et environ 0,5 à 1% de déformation (0,01 en fraction) la contrainte est en d'environ 12,65 MPa.

$$\boldsymbol{\epsilon = \frac{\Delta\sigma}{\Delta\varepsilon}} \text{.....(8)}$$

- ✓ Energie absorbée avant rupture (U) : les échantillons rompent entre 6% et 10% (point de la rupture) donc la valeur moyenne raisonnable de 0,027 (2,7%).

$$\boldsymbol{U = \frac{(\sigma_m \times \sigma_r)}{2}} \text{.....(9)}$$

Tableau IV.1 : Propriétés mécaniques moyennes des éprouvettes obtenues par essai de traction [37].

Paramètre	Valeur Moyenne	Unité
Résistance à la traction	35,7	MPa
Module d'élasticité (initial)	1 2,65	MPa
Énergie absorbée à la rupture	0,49	J

b) <u>Polyéthylène à haute densité 80</u>

IV-6.3. Essai de traction du PEHD

Un des traits les plus notables des thermoplastiques semi-cristallins (comme le PEHD) est leur capacité à se déformer considérablement avant de se briser à température ambiante. Cela s'explique en partie par le fait que leur température de transition vitreuse (−125 °C pour le PEHD) se situe bien en dessous de la température ambiante.

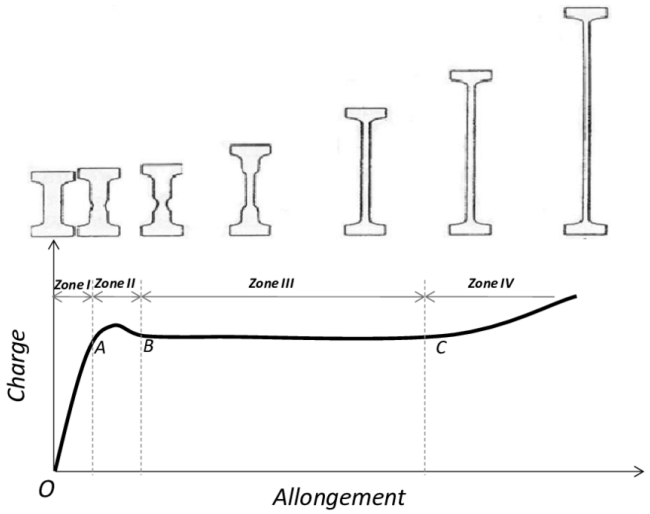


Figure IV.9 : Différentes zones de traction unie axiale d'un PEHD [38].

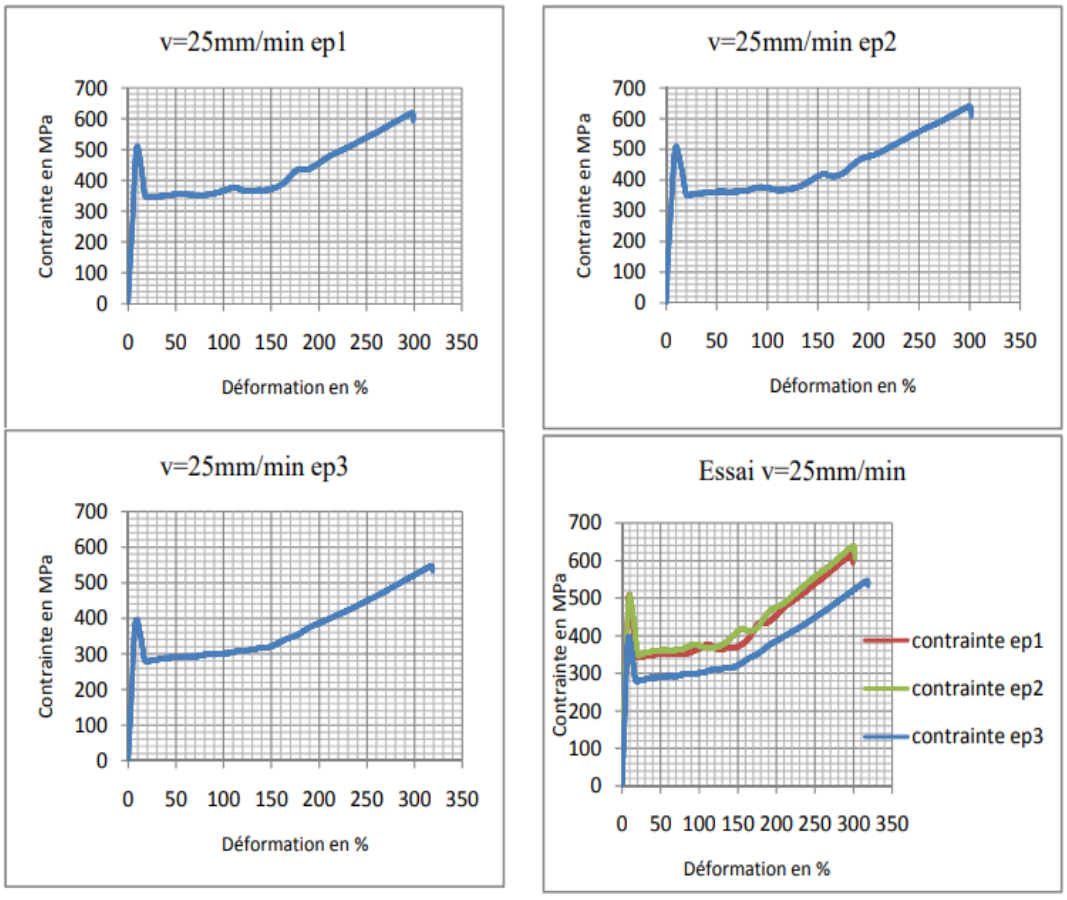


Figure IV.10 : Courbes comportement mécanique expérimentale en traction du PEHD 80 (pour V=25mm/min) [39].

Tableau IV.2 : propriétés mécaniques expérimentales du PEHD80 (v = 25 mm/min) [39].

Éprouvette	ϵ (N/mm²)	σ_e (N/mm²)	σ_m (N/mm²)	ε_e(%)	ε_r (%)	$\frac{\sigma_e}{\sigma_m}$ (%)
Ep01	61,69	520	620	11	295	83,87
Ep02	56,33	520	640	12	300	81,25
Ep03	50,36	400	545	10	320	73,39
Moyenne	56,12	480	601,66	11	305	79,5

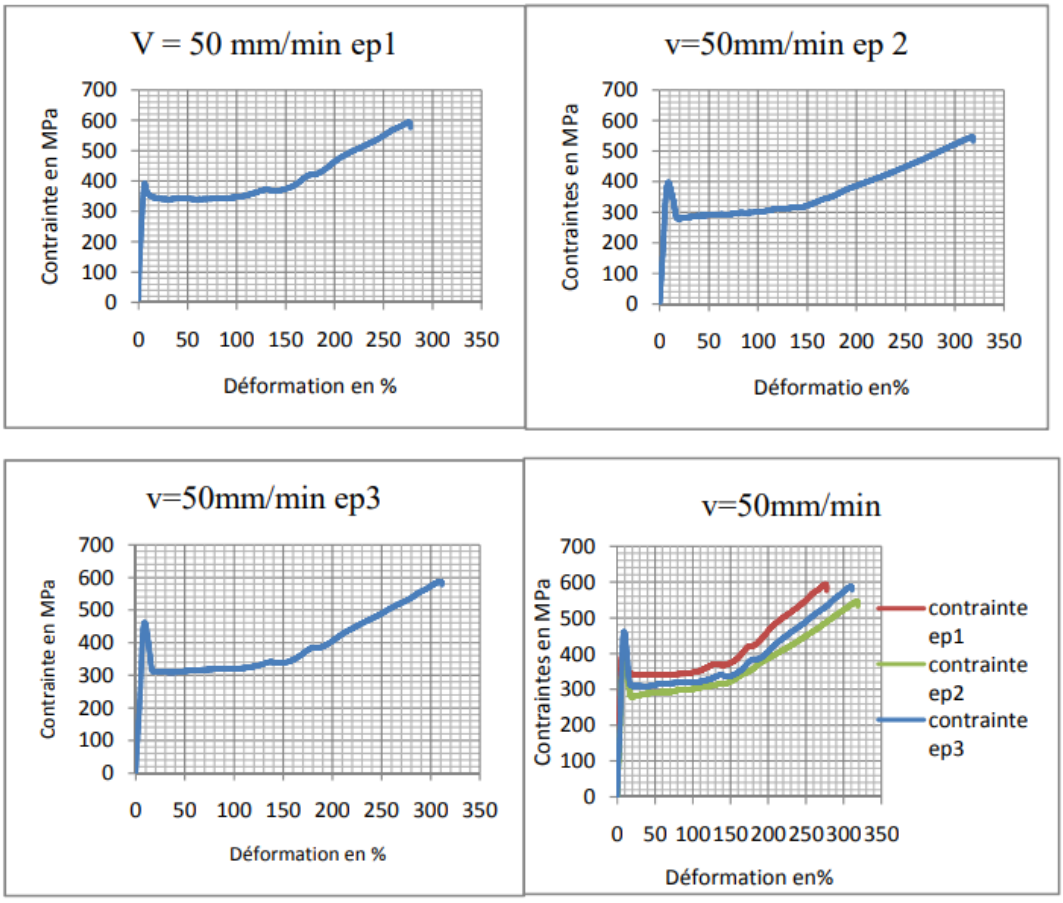


Figure IV.11 : Courbes comportement mécanique expérimentale en traction du PEHD 80 (pour V=50mm/min) [39].

Tableau IV.3 : Données expérimentales concernant les propriétés mécaniques du PEHD80 [39].

Éprouvette	ϵ (N/mm²)	σ_e (N/mm²)	σ_m (N/mm²)	ε_e(%)	ε_r (%)	$\frac{\sigma_e}{\sigma_m}$ (%)
Ep01	61,89	400	600	9,8	280	66,66
Ep02	54,26	400	540	11	320	74,07
Ep03	56,32	460	595	10	310	77,31
Moyenne	57,49	420	578,33	10,26	3303,33	72,68

IV-6.4. Analyse des résultats

Le comportement mécanique du PEHD 80 soumis à une traction statique est illustré par la courbe contrainte-déformation à vitesse constante, qui ressemble à celle des polymères semi-cristallins. Cette courbe se divise en trois sections distinctes : La première section (I) montre une augmentation de la contrainte avec une déformation linéaire au début, suivie d'une déviation de cette linéarité jusqu'à atteindre le point d'écoulement, qui représente le seuil de plasticité défini par la contrainte d'écoulement (point 1). Ce fléchissement est causé par une réorganisation structurelle initiale en rapport avec des variations conformationnelles. Ensuite, on observe une chute rapide de la contrainte entre les points (1-2), moment où l'on commence à constater une striction [39].

La section (II) est marquée par une déformation plastique, qui survient à une contrainte relativement constante. Ce plateau est essentiellement attribué à une réorientation expansive des chaînes macromoléculaires amorphes et des lamelles cristallines, ainsi qu'au glissement des molécules le long de bandes de cisaillement. Juste avant la rupture, la courbe contrainte-déformation se prolonge jusqu'au point 4 (section III).

Le durcissement progressif du PEHD est lié à la formation d'une texture orientée des lamelles cristallines, résultant de leur déformation plastique sous l'effet du cisaillement à l'intérieur des cristaux [39]. Cela peut aussi s'expliquer par le fait qu'une fois les chaînes complètement étirées, la seule déformation envisageable consiste en l'allongement des liaisons atomiques et la

déformation des angles de valence, ce qui demande beaucoup d'énergie. La rupture se produit lorsque les chaînes macromoléculaires atteignent leurs limites de rupture

IV-7. Essai de relaxation du PEHD

Dans l'épreuve de relaxation, une déformation est appliquée instantanément à un échantillon et est maintenue constante durant une certaine période. Ensuite, on mesure la contrainte produite. Il a été observé que cette contrainte diminue progressivement avec le temps.

Les propriétés de relaxation d'un matériau peuvent être utilisées pour déterminer, après le serrage d'un boulon, la contrainte résiduelle de fixation après un certain temps à une température de fonctionnement [41].

Pour garantir et maintenir un niveau de résistance minimum des pièces assemblées par boulonnage dans des conditions de chaleur, il est essentiel de procéder à un resserrage régulier, car la contrainte initiale du serrage a tendance à diminuer avec le temps.

Les tests de relaxation permettent d'estimer le temps nécessaire pour atteindre un certain niveau de contrainte, après lequel un resserrage doit être effectué, ou d'établir la fréquence à laquelle ce resserrage doit avoir lieu [41].

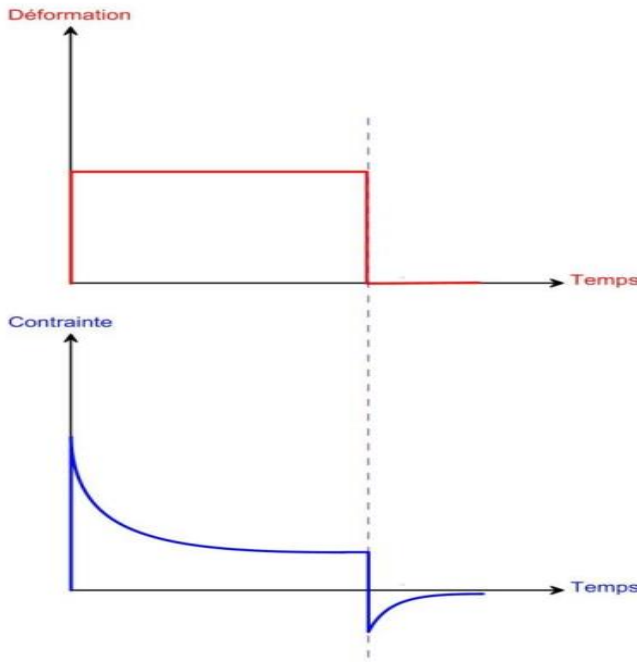


Figure IV.12: Illustration du principe d'une expérience de relaxation de contrainte [41].

IV-7.1. Condition de l'essai

Initialement, l'expérience a impliqué le fait de soumettre le tube à la déformation initiale ε imposée à température ambiante (25 °C) via un effort d'élongation à une vitesse de déformation de 10^{-3} s^{-1} (phase de chargement). Après que l'éprouvette a été déformée, on initie le véritable essai de relaxation en supprimant la charge [23]. Un changement de contrainte d'un millier de minutes est enregistré par une unité informatique. Pour examiner l'impact de la déformation appliquée sur le comportement du PEHD en relaxation, diverses déformations sont imposées pour chaque sorte d'éprouvette. Le tableau IV.4 compile toutes les données relatives aux tests.

Tableau IV.4 : condition sur la déformation imposée pour chaque essai de relaxation [23].

Éprouvette	Déformation ε
Type 1	0.08 0.16 0.30
Type 2	0.15 0.29 0.56
Type 3	0.27 0.53 1.04

IV-8. Essai de fluage

Le fluage est un processus de déformations qui se produit au fil du temps et peut entraîner des dommages au matériau lorsqu'il est soumis à une charge minimale [47]. Ce phénomène est considérablement influencé par la température. On peut envisager divers modèles rhéologiques afin de mieux représenter le comportement de fluage des matériaux. L'étude expérimentale de ce phénomène utilise généralement divers procédés d'accélération, reposant sur le concept de superposition temps-température ou temps-contrainte. Seules ces méthodes permettent d'évaluer la longévité d'un matériau et de prévoir son dégradèrent au fil du temps.

La déformation d'un matériau provoquée par le maintien constant de la température et de la contrainte est désignée sous le terme de fluage. C'est une déformation permanente qui évolue au fil du temps, c'est-à-dire de caractère viscoplastique. Bien que ce type de déformation soit possible à toute température supérieure au zéro absolu, il n'a pas d'impact significatif sauf à des températures

plutôt élevées.

En général, ce type de phénomène est considéré à partir de températures approximatives de 0,2 Tf, où Tf représente la température de fusion du matériau [40].

IV-8.1. Principe

Une épreuve de fluage consiste à imposer une charge à une extrémité d'un échantillon, tandis que l'autre extrémité est fixée à un support rigide. On observe au fil du temps le mouvement de l'extrémité libre de l'échantillon. Une courbe typique de fluage, représentant la déformation en fonction du temps, est illustrée en (figure IV.14). On identifie trois phases : primaire, secondaire et tertiaire, établies par Andrade en 1910 [42].

- Au cours de la phase primaire ou transitoire (zone I), on observe une diminution de la vitesse de fluage, ce qui signifie que la pente de la courbe s'amenuise avec le temps [54]. La résistance du matériau augmente ou subit un durcissement par écrouissage, entraînant la formation de sous-structures de dislocations stables.
- Pendant la phase secondaire ou stationnaire (zone II), la vitesse de déformation atteint un minimum et reste constante. Cette période de fluage est généralement plus prolongée que les deux précédentes. La continuité de la vitesse de fluage s'explique par l'équilibre qui se crée entre le durcissement par écrouissage et la récupération favorisée par la température et la contrainte.
- Dans la phase tertiaire (zone III), la vitesse de fluage augmente progressivement jusqu'à la rupture. Cela résulte de changements structurels ou métallurgiques, tels que la dissociation de joints de grains et la création de fissures, de vides ou de cavités internes. De plus, une réduction de section peut se produire dans la zone déformée lors de l'application d'une force de traction. Cela entraîne une réduction de la surface du matériau et une accélération de la vitesse de déformation [40].

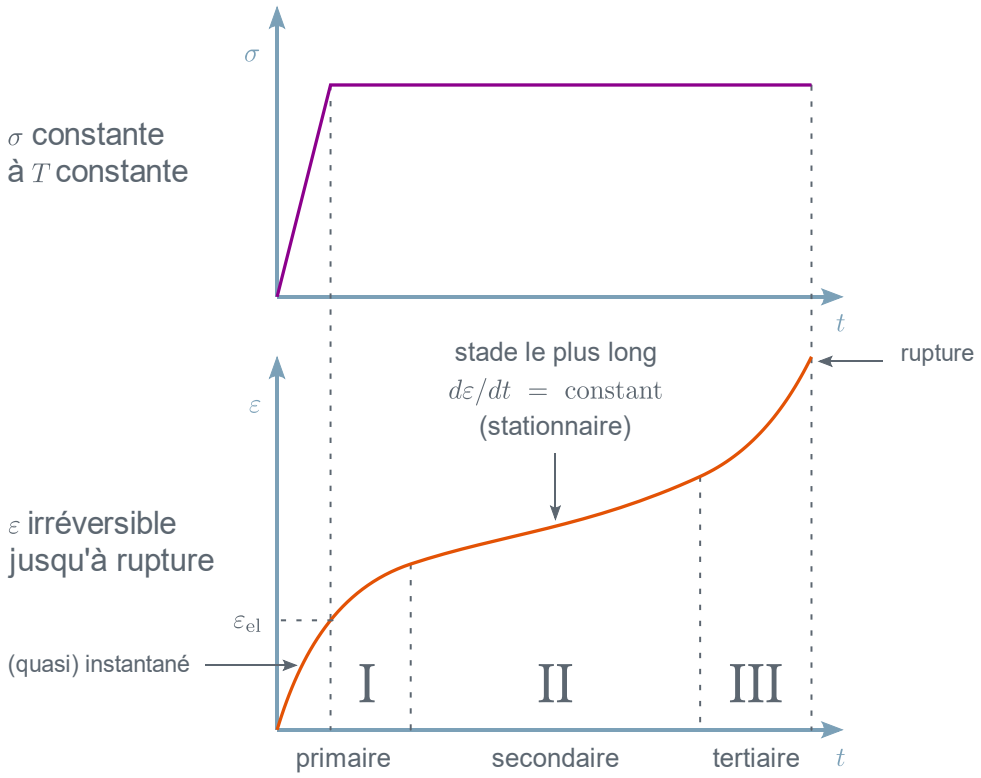


Figure IV.13 : Essai de fluage [42].

IV-8.2. Machine de fluage

Habituellement, les tests de fluage sont effectués sur des appareils à charge constante s'appuyant sur la force gravitationnelle : un poids est attaché à l'échantillon ou, fréquemment, pour les tests de longue durée, un dispositif d'amplification de la charge par le biais d'un levier est employé. (La figure IV.14) illustre les diagrammes de fonctionnement de deux machines à écoulement [23].

La première machine, désignée comme type A, est conçue avec un contrepoids pour garantir l'horizontalité du bras de levier avant la mise en charge (figure IV.14a) ; la seconde, connue sous le nom de type B (figure IV.14b), peut être équipée d'un système hydraulique permettant une charge progressive.

Dans les deux diagrammes, le système de mesure de déformation n'est pas inclus.

- Le chargement peut être effectué : grâce à l'application d'une charge déverrouillée par un système hydraulique ; par l'insertion progressive de masses, ce qui rend le chargement par intermittence.
- Le chargement est continu grâce à un déversement maîtrisé de petites billes métalliques, généralement en plomb.

  Au cours d'un test, il est préférable que le bras de levier soit, dans la mesure du possible, à l'horizontale.

Éprouvettes L'essai de traction est exécuté soit sur des barres de section constante, soit sur des éprouvettes cylindriques, ou prismatiques prolongées de part et d'autre par des têtes d'attache de forme appropriée pour la fixation. Afin de garantir des résultats obtenus sous contrainte uni axiale, toutes les déterminations faites au cours de l'essai ne portent que sur une partie de la longueur de l'éprouvette [23].

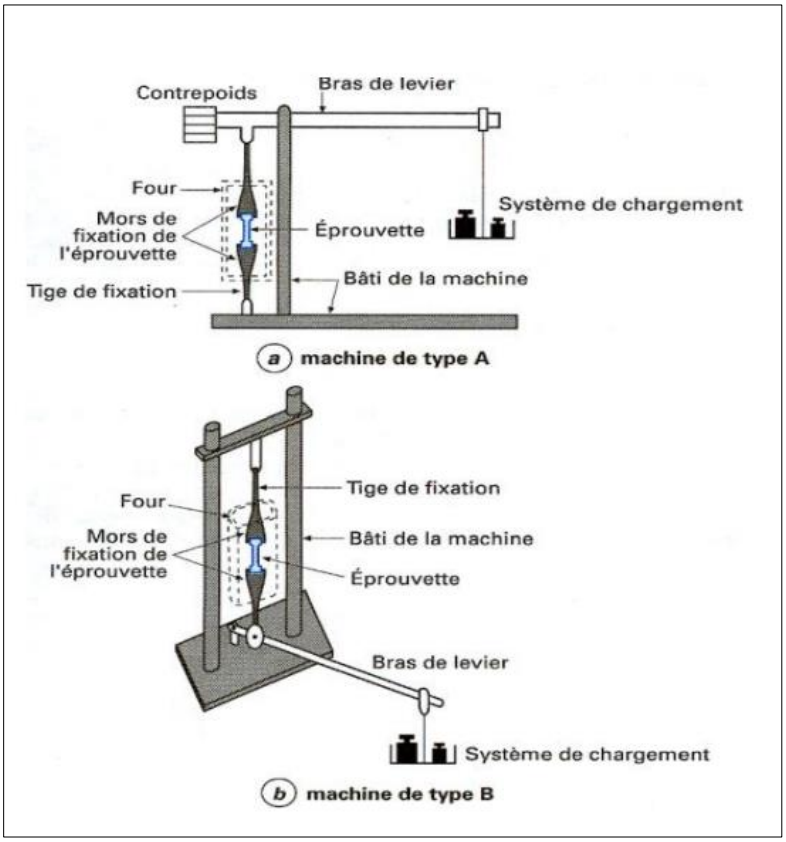


Figure IV.14 : Illustration des deux machines de fluage [23].

IV-8.3. Description de l'appareil de fluage

Généralement, les tests de fluage sont effectués sur des appareils à charge fixe utilisant la gravité : un poids est attaché à l'échantillon ou, dans de nombreux cas pour des essais prolongés, un mécanisme de levier amplificateur est employé. Notre appareil de fluage se compose d'un châssis et d'un bras de levier connecté à une chaîne qui est fixée à un mors mobile où l'échantillon est maintenu dans un mors fixe, ainsi qu'un four électrique avec contrôle de température (figure IV.15). L'appareil de fluage que nous avons conçu à une capacité de 268,51 N avec un levier à charge constante. La force est appliquée par un ensemble de poids calibrés grâce à un levier qui permet de multiplier l'effort par un facteur de 10. 83. L'extension de l'échantillon est identifiée par un système d'acquisition relié à un ordinateur.



Figure IV.15 : machine de fluage [43].

IV-8.4. Conditions expérimentales

Le but des tests de fluage effectués sur des échantillons entaillés est d'évaluer la réactivité du matériau en fonction de la durée de la charge appliquée. Ces essais permettront également de mettre en évidence l'impact de la tri axialité des contraintes sur les divers paramètres qui caractérisent le comportement de ce matériau.[23].

Tous les types d'échantillons sont soumis à des tests de fluage à une vitesse de déformation constante de 10^{-3} s^{-1}, et ce, à la même température (25 °C). Des charges de 5 kN, 10 kN et 12 kN sont appliquées à chaque type d'éprouvette. Nous suivons l'évolution de la déformation au fil du temps.

IV.9. Résultat fluage /relaxation

IV-9.1. Essai de relaxation

Dans la figure IV.16, nous avons représenté une courbe de détente obtenue à partir d'une expérience sur un échantillon en PEHD soumis à une déformation constante de $\boldsymbol{\varepsilon = 0{,}08}$ tout au long de l'épreuve. Les courbes associées aux autres tests effectués avec différentes déformations imposées présentent un aspect similaire à celui montré ici, et nous les présenterons dans les figures qui incluent les courbes de comparaison [23]. L'objectif principal d'un essai de détente est de déterminer le module de détente, la durée et la contrainte nécessaires pour atteindre un niveau de sécurité souhaité, ainsi que d'évaluer le degré de contrainte acceptable.

Lors de cette expérimentation, la phase de chargement se traduit par une déformation élastique $\boldsymbol{\varepsilon_0}$ de l'échantillon et une contrainte maximale [23]. La phase de détente correspond à une réduction de la contrainte observée pendant la durée de l'essai. La courbe de détente a permis d'identifier trois phases :

La première phase se caractérise par une chute rapide et notable de la contrainte en un temps très court, ce qui est dû à la relaxation des tensions sur les chaînes moléculaires et à la réorganisation de la structure du matériau. Cela est suivi par une phase où la contrainte diminue progressivement au fil du temps, résultant du retour élastique et des propriétés élastiques du matériau. Enfin, on observe un état de contrainte stabilisé pour le reste de la durée de l'essai

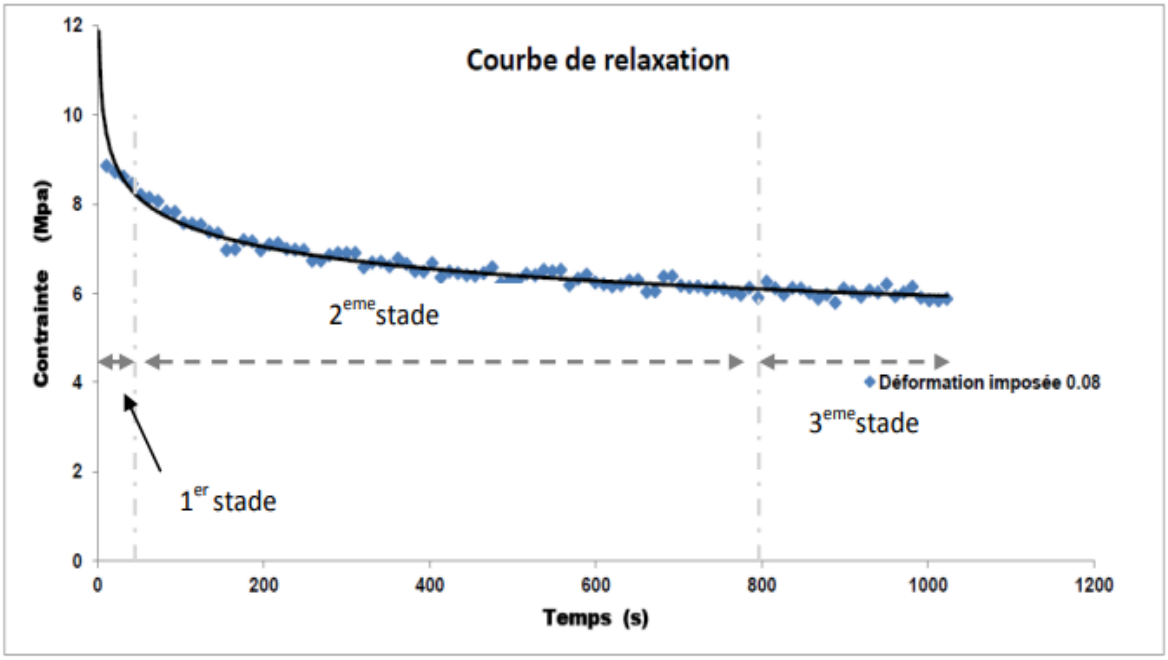


Figure IV.16 : courbe de relaxation d'éprouvette en PEHD [23].

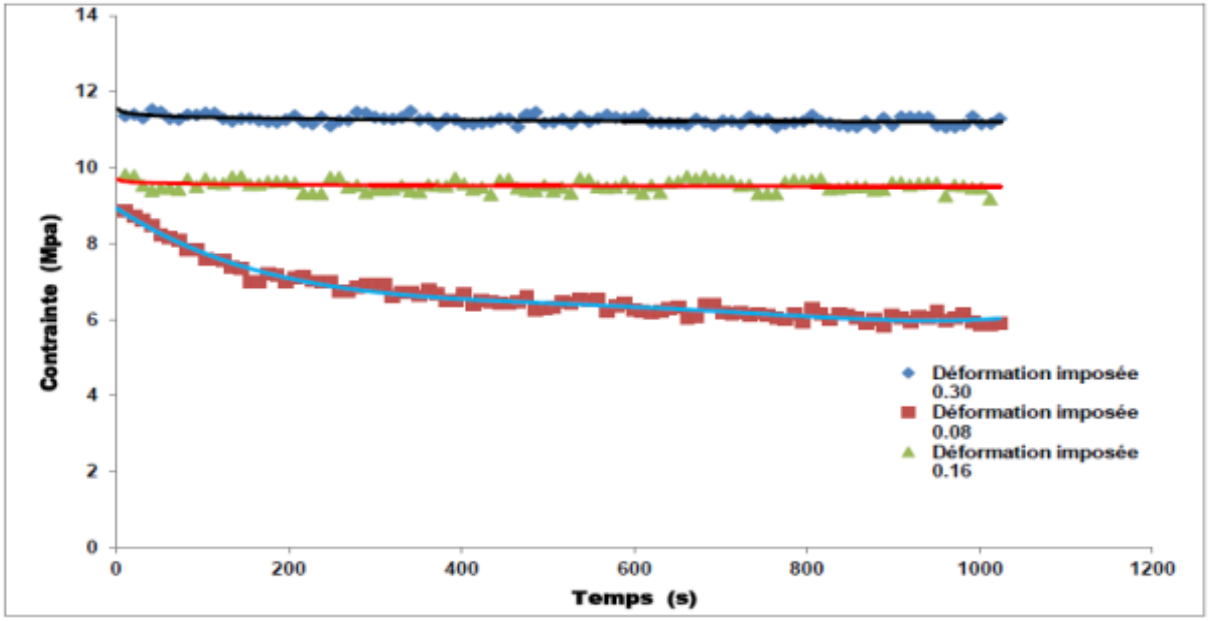


Figure IV.17: résultat de relaxation comparatif à différentes déformations imposées

Éprouvette à rayon d'entaille 2mm [23].

Nous présentons dans la figure IV.17 les courbes de relaxation de l'échantillon ayant un rayon d'entaille de 4 mm, soumis à différentes déformations et à une vitesse de déformation de 10^{-3} s^{-1}. Nous observons qu'avec une déformation initiale plus élevée, la contrainte augmente, tout en notant que la durée de relaxation demeure pratiquement identique dans les trois scénarios. Par ailleurs, il est évident que la diminution de la contrainte et le phénomène de relaxation lui-même sont plus prononcés lorsque la contrainte est faible [23]. Cela peut s'expliquer par le fait que seule la phase amorphe se déforme. À mesure que la contrainte croît, la phase cristalline commence à s'engager, ce qui complique le retour à un état d'équilibre et génère des contraintes résiduelles. Ainsi, on peut affirmer qu'une augmentation de la contrainte entraîne des mécanismes de déformation complexes, et que le retour à l'équilibre nécessite un temps plus long.

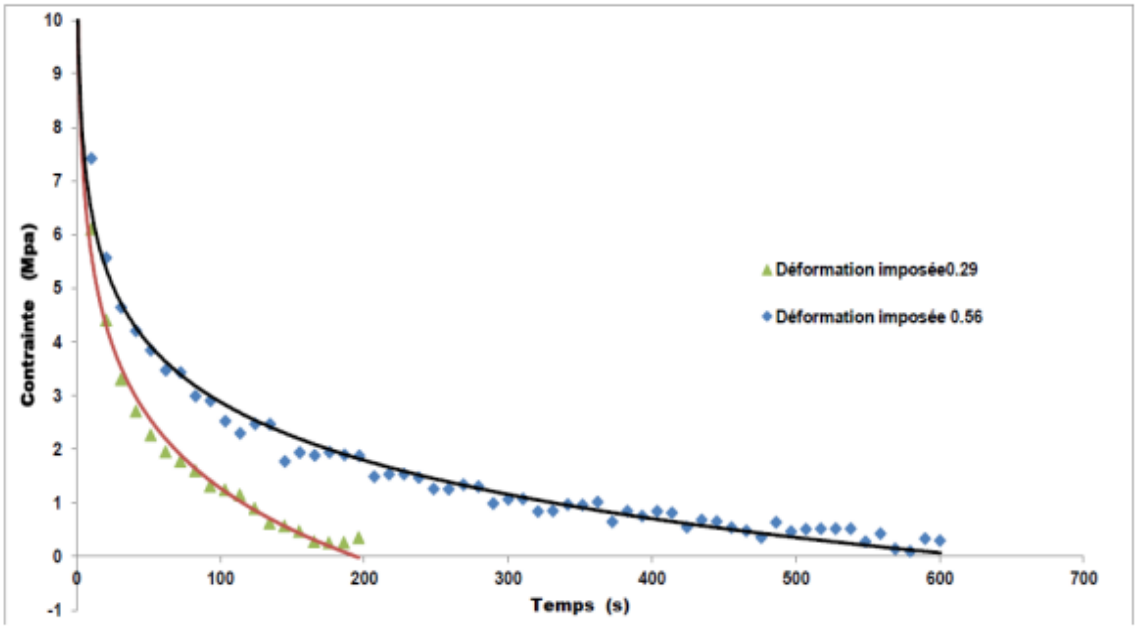


Figure IV.18: résultat de relaxation comparatif à différentes déformations imposées éprouvette à rayon d'entaille 4mm [23].

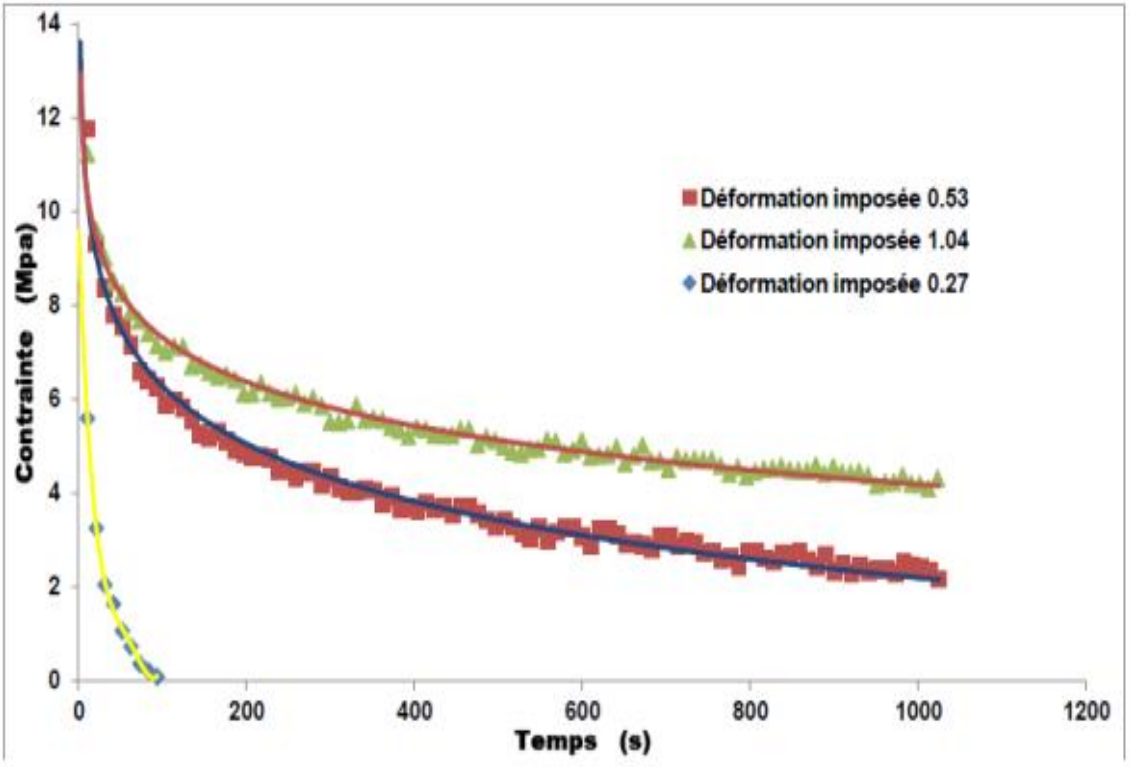


Figure IV.19 : résultat de relaxation comparatif à différentes déformations imposées éprouvette à rayon d'entaille 10mm [23].

Au cours des tests de relaxation, nous avons aussi pu démontrer le phénomène de recouvrance face à diverses déformations appliquées à chaque catégorie d'éprouvette [23].

Effectivement, on a observé une diminution de la contrainte mesurée au début du test pour divers temps, et cela est directement associé au niveau de tri axialité et au nombre de chaînes impliquées dans le phénomène.

IV-9.2. Explication d'une courbe de fluage

La figure IV.20 illustre la forme générale de la courbe de fluage obtenue lors des tests à des charges de 5 kN et 10 kN. Il est crucial de souligner que ces essais ont été arrêtés avant la rupture, une fois le stade de fluage secondaire stabilisé atteint, ce qui a permis d'observer la vitesse de déformation minimum. Les contraintes appliquées durant les essais restent toutes inférieures à σ_e L'étape de chargement se traduit alors par une déformation élastique ε0 de l'échantillon, due à

des mécanismes de dislocations [58], principalement à la formation et à la propagation des dislocations. En règle générale, ces dislocations ne forment pas de structures particulières.

La courbe de fluage obtenue pour les charges de 5 kN et 10 kN a permis de distinguer deux phases de fluage durant 1000 minutes d'essai : le fluage primaire et le fluage secondaire [45]. En revanche, pour les essais avec une charge de 12 kN, nous avons observé l'émergence d'une troisième phase, appelée fluage tertiaire, qui résulte de l'apparition précoce du phénomène de striction, comme illustré dans la figure IV.20.

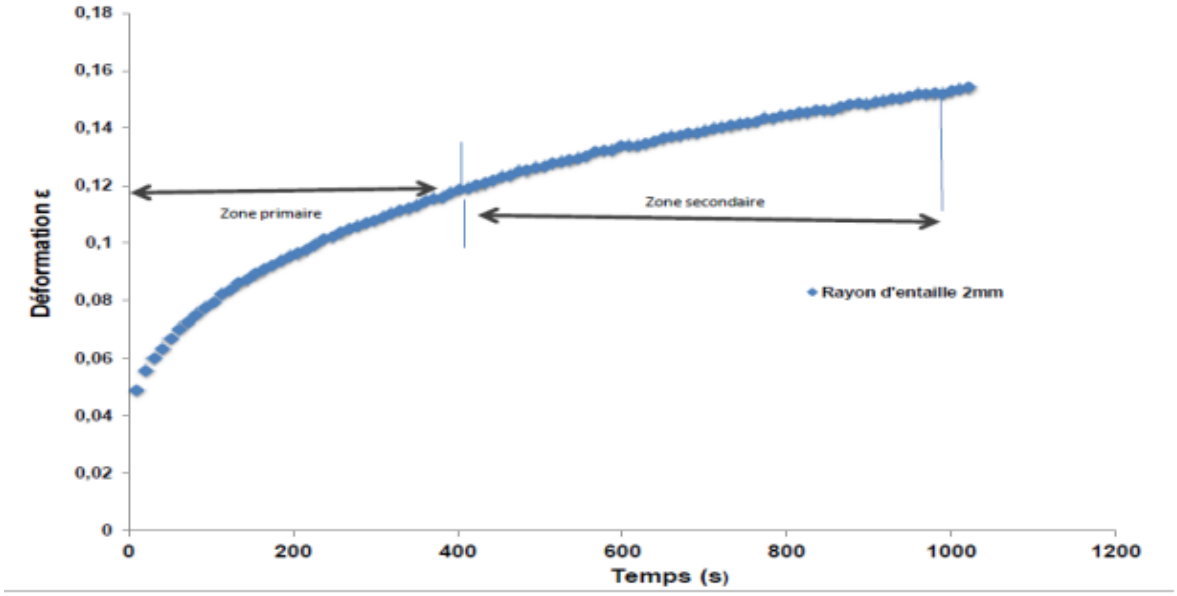


Figure IV.20 : courbe de fluage présentant les deux stades du fluage sous contrainte constante sur une éprouvette à entaille de 2mm en PEHD [23].

1. Le fluage primaire :

La première section de la courbe s'étend de t appartenant à [0, 400] secondes, caractérisée par l'apparition d'une déformation élastique et une diminution de la vitesse de déformation au fil du temps [45]. Ce phénomène peut être expliqué par le fait que les liaisons du réseau macromoléculaire ne sont pas orientées, ce qui entraîne l'absence de limitations de mouvement. Lorsque ces liaisons commencent à s'orienter, des interférences se produisent entre elles, ce qui engendre une résistance au fluage et provoque ainsi une réduction de la vitesse de déformation. Ce

premier stade du fluage est désigné sous le terme de fluage initial, ou fluage transitoire. À faible contrainte à température ambiante, le fluage initial est le principal mode de fluage observé.

L'équation du fluage initial prend en compte le temps. Il est important de retenir surtout la loi du fluage parabolique [44].

$$\boldsymbol{\varepsilon = \varepsilon_0 + \beta t^m} \ldots\ldots\ldots\ldots (10)$$

Où : 0< m <1 ; $\boldsymbol{\beta}$: constante du matériau

2. <u>Le fluage secondaire :</u>

La deuxième phase du fluage est désignée comme fluage secondaire ou fluage constant, elle se déroule dans l'intervalle de t ϵ [400,1000] s. Cette phase est marquée par une vitesse de déformation qui reste constante. Ce taux de déformation est connu sous le nom de vitesse de déformation minimale et constitue le paramètre de conception le plus significatif que l'on peut observer sur la courbe de fluage [45]. La densité des dislocations demeure inchangée pendant cette phase. Une sous-structure se crée et se détruit de manière continue : un équilibre s'établit entre les mécanismes de génération et d'annihilation des dislocations. En revanche, l'alignement des sous-grains se dégrade au fil du temps [59]. Le fluage constant est souvent représenté par une loi de puissance :

$$\boldsymbol{\dot{\varepsilon} = \beta \sigma^n exp^{\frac{-\Delta H}{KT}}} \ldots\ldots\ldots \textbf{(11)}$$

Où : $\boldsymbol{\beta}$ et n sont des constantes matérielles et **ΔH** désigne l'énergie d'activation du mécanisme qui régule la vitesse de déformation.

Les polymères sont essentiels dans les matériaux contemporains en raison de leur organisation en macromolécules et de leurs diverses caractéristiques. Formés de longues chaînes de monomères, ils se caractérisent par leur faible densité, leur capacité à être transformés, leur diversité morphologique (amorphe, semi-cristallin) et leur comportement viscoélastique. Leur réponse mécanique et leur facilité de moulage les rendent indispensables dans des domaines aussi variés que l'emballage, l'automobile, l'aéronautique ou la santé. Cependant, comprendre leur comportement, surtout sous des contraintes mécaniques ou thermiques, reste un défi scientifique et technique majeur. Dans cette perspective, notre étude s'est focalisée sur deux polymères thermoplastiques semi-cristallins très courants : le polypropylène (PP) et le polyéthylène haute densité (PEHD).

Ces deux matériaux, bien que dotés de structures moléculaires relativement simples, affichent des performances distinctes, influencées par leur cristallinité, leur masse molaire, leur distribution moléculaire, leur température de transition vitreuse et les conditions de mise en œuvre. Le polypropylène, en particulier sous sa forme isotactique, se distingue par une rigidité notable, une bonne résistance à la traction et une capacité à être stérilisé, mais sa résistance aux chocs à basse température reste limitée. Ses performances dépendent directement de la tacticité, de la phase cristalline dominante (α, β, γ) et de la nature des charges minérales ajoutées.

En revanche, le PEHD se distingue par une excellente ténacité, une flexibilité accrue à basse température, une faible perméabilité et une résistance remarquable à la fissuration et à l'abrasion, ce qui en fait un choix privilégié pour les applications de tuyauterie, d'emballage et de transport de fluides.

L'étude expérimentale, qui s'appuie sur des essais de traction, de fluage et de relaxation, a confirmé les comportements mécaniques et rhéologiques que l'on observe en théorie. Le comportement viscoélastique de ces deux polymères change en fonction de la température, de la durée de la charge appliquée et du taux de déformation. Les phénomènes de relaxation identifiés (β, α, α') révèlent les mécanismes internes à l'échelle moléculaire, soulignant ainsi l'importance de la microstructure sur les propriétés finales du matériau.

En résumé, ce travail met en avant la complexité et la richesse du comportement des polymères semi-cristallins. Il met en lumière l'importance de la structure, de la composition et des conditions d'utilisation sur leurs performances. Une bonne compréhension de ces paramètres permet d'optimiser l'utilisation du PP et du PEHD dans les applications industrielles, tout en envisageant des pistes d'amélioration par l'ajout de charges, la modification chimique ou le traitement thermique. Cette recherche représente donc une contribution précieuse à l'ingénierie des matériaux polymères, avec un impact direct sur la sélection, la conception et le recyclage de solutions plastiques performantes.

Références bibliographiques

[1] GUERGOUR A., Conception d'un système basé sur le parallélisme pour l'extraction des radicaux, Université du 8 mai 1945 – Guelma, 2019.

[2] LADJABI H., Étude expérimentale du comportement mécanique des polymères, Université Badji Mokhtar – Annaba, 2011.

[3] KHOUDER A., Analyse du comportement thermique et optimisation du taux de cristallinité des composites polypropylène/talc, Université du 8 mai 1945 – Guelma, 2014/2015.

[4] BOUTARFA Y., Comportement mécanique en traction et au choc d'un polymère PP, Université Badji Mokhtar – Annaba, 2011.

[5] VERMOGEN A., Genèse des microstructures et conséquences sur les propriétés mécaniques dans les polymères semi-cristallins renforcés par des charges lamellaires, 2006.

[6] FRIHI D., Étude du comportement mécanique et rhéologique des polymères, Université Badji Mokhtar – Annaba, 2010.

[7] Fiche technique : Ultima Ker PP est un polypropylène durable, 16 mai 2017.

[8] PADDEN F.J., KEITH H.D., Spherulitic crystallization in polypropylene, Journal of Applied Physics, 1959, 30, 1479–1484.

[9] LIU Y., KENNARD C.H.L., TRUSS R.W., CALOS N.J., Characterization of stress-whitening of tensile yielded isotactic polypropylene, Polymer, 1997, 38, 2797–2805.

[10] F.J. PADDEN, H.D. KEITH, Mechanism for lamellar branching in isotactic polypropylene. Journal of Applied Physics (1973), 44, 1217-1223.

[11] WUNDERLICH B., Macromolecular Physics, Vol. 1, Academic Press, New York, 1973, 450 p.

[12] TURNBULL J.I., FISCHER J.C., Rate of nucleation in condensed systems, Journal of Chemical Physics, 1949, 37, 71–95.

[13] HUMBERT S., Influence de la topologie moléculaire et de la microstructure sur les propriétés mécaniques des polyéthylènes, École doctorale Matériaux de Lyon, 2009.

[14] SACI H., Département de Génie des Procédés, Université Ferhat Abbas – Sétif 1, 2017.

[15] DOSSOGNE R., Polyéthylène haute densité PE-HD, Techniques de l'Ingénieur, traité Plastiques et Composites, p. 1–10.

[16] MESRAFET F., Approche expérimentale du taux de restitution d'énergie et du travail essentiel de rupture dans les couches périphériques d'un tube en HDPE, Université Badji Mokhtar – Annaba, 2019.

[17] Sparrow Xiang, , Comprehensive Guide to Polyethylene (PE) Injection Molding.

[18] BAKARIA R., Étude expérimentale de la propagation de fissure d'un polymère semi-cristallin, Université du 8 mai 1945 – Guelma, 2012/2013.

[19] CHALA K., Élaboration et caractérisation d'un matériau à base de polyéthylène basse densité recyclé et chargé par le talc, Université Mohamed Khider – Biskra, 2016.

[20] https://www.vem-tooling.com/ldpe-vs-hdpe/

[21] MENASRIA A., Production de polyéthylène à haute densité : Étude de l'influence de l'amidon, Université du 8 mai 1945 – Guelma, 2019.

[22] METEHRI A., Polycopié pédagogique – Polymères : cours et travaux dirigés avec corrections, Université Djillali Liabès – Sidi Bel Abbès, 2024/2025.

[23] HAMRERAS T., Étude du comportement mécanique sous sollicitation statique et cyclique d'un PEHD80, Université du 8 mai 1945 – Guelma, 2016.

[24] Wikipédia. (2024).https://fr.wikipedia.org/wiki/Polyéthylène_haute_densité

[25] Wikipédia. (2024). *Polypropylène*. https://fr.wikipedia.org/wiki/Polypropylène

[26] SCHULTZ J.M., Microstructural aspects of failure in semi-crystalline polymers, Polymer Engineering and Science, 1984, 24(10), 770–785.

[27] HENNOUS M., Cours de rhéologie des polymères, Université des Sciences et de la Technologie d'Oran – Mohamed Boudiaf, 2020/2021.

[28] SACI H., Département de Génie des Procédés, Université Ferhat Abbas – Sétif 1, 2017.

[29] AOUABDI H., Effet du brunissage sur les propriétés mécaniques d'un PEHD2050 concentré à 2,5 % de noir de carbone, Université Badji Mokhtar – Annaba, 2018/2019.

[30] Université Mohamed Boudiaf – M'sila, Cours n°4 – Chimie des Polymères, Département de Chimie.

[31] ZIANE A., Caractérisation rhéologique des polymères à basse et haute température, Université Mouloud Mammeri – Tizi Ouzou.

[32] FEID Y., Influence de la charge sur le comportement mécanique du polypropylène, Université Mouloud Mammeri – Tizi Ouzou, 2015/2016.

[33] RACHEDI H., Étude des mécanismes de rupture du polyéthylène, Université Badji Mokhtar – Annaba, 2018/2019.

[34] Université de Batna, Méthodes de caractérisation mécaniques des matériaux, Chapitre 2.

[35] BOUTARFA Y., Comportement mécanique en traction et au choc d'un polymère PP, Université Badji Mokhtar – Annaba, 2011.

[36] JACQUOT B., Propriétés mécaniques des biomatériaux utilisés en odontologie, Société Francophone des Biomatériaux Dentaires (SFBD).

[37] France Analytical and Measuring Instruments Résistance à la traction du polypropylène.

[38] BOUAZIZ M.A., Sécurité des réseaux d'adduction d'eau potable en présence de défaut superficiel sous l'effet du phénomène de coup de bélier, Juin 2018.

[39] KERMOUN A., HACHOUR K., Étude du comportement du PEHD en fluage et relaxation, Université Mouloud Mammeri – Tizi Ouzou, 2012/2013.

[40] BILLOT T., Comportement et endommagement en fatigue et fatigue-fluage à haute température de différents états microstructuraux du superalliage base-nickel Udimet 720, 2010.

[41] MASMOUDI M., Rhéologie des matériaux – Introduction, Université de Batna 2.

[42] Philippe Lours, Fabien Bâillon -Au cœur des matériaux cristallins-2.8.19 mars 2024.

[43] Berlioux N - Jacob JC - Gilloux JF. Page .7.

[44] BERRADJ M, LARBI S ; "contribution à l'étude du comportement Mécanique en fluage des matières composite à matrice organique en milieu contrôlé" ; TH/ING, Tizi Ouzou 2007.

[45] François saint Antonin ; "essai de fluage" technique d'ingénieur M140.

[46] LOURS P., BÂILLON F., Au cœur des matériaux cristallins, 2.8.19, mars 2024.

[47] DIABI A., Contribution à l'étude du phénomène de fluage de polyamide 6 sous l'effet des contraintes échelonnées, Université Mohamed Khider – Biskra, 2020.