



**HAL**  
open science

# Comportement multiaxial des polymères en élongation : des évolutions de microstructure au comportement thermo-mécanique

Hanane Attar

► **To cite this version:**

Hanane Attar. Comportement multiaxial des polymères en élongation : des évolutions de microstructure au comportement thermo-mécanique. Mécanique [physics]. Université Gustave Eiffel, 2023. Français. NNT : 2023UEFL2033 . tel-04320326

**HAL Id: tel-04320326**

**<https://theses.hal.science/tel-04320326>**

Submitted on 4 Dec 2023

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

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

**Laboratoire MSME UMR 8208**

**ECOLE DOCTORALE SIE**

**THESE**

*Pour l'obtention du titre de*

**Docteur**

*de*

**L'UNIVERSITE GUSTAVE EIFFEL**

Discipline : Mécanique

*Présenté par*

**Hanane ATTAR**

**Comportement multiaxial des polymères en élongation : des  
évolutions de microstructure au comportement  
thermomécanique**

*Soutenue le 22 février 2023*

*Devant le jury composé de*

Gilles Régnier	Professeur, Arts&Métiers, Président du jury
Evelyne Toussaint	Professeure, UCA, Rapporteur
Cédric Doudard	Maître de conférences, ENSTA Bretagne, Rapporteur
Sabine Cantournet	Directrice de recherche, Mines Paris, Examinateur
Luc Chevalier	Professeur, UGE, Directeur de thèse
Yun-Mei Luo	Maîtresse de conférences, UGE, Co-encadrante
Fabrice Detrez	Maître de conférences, UGE, Co-encadrant



# Table des matières

<b>Table des figures .....</b>	<b>5</b>
<b>Liste des tableaux .....</b>	<b>9</b>
<b>Introduction.....</b>	<b>11</b>
1    Projet de thèse.....	11
2    Problématique .....	12
3    Objectif et plan.....	12
4    Organisation du manuscrit.....	12
<b>Chapitre I Etat de l'art.....</b>	<b>14</b>
I.1    Fabrication des bouteilles en PET et principe de soufflage .....	14
I.1.1    Généralité sur le PET .....	14
I.1.2    Procédé de fabrication industriel des bouteilles en PET .....	15
I.2    Evolution de la microstructure durant la fabrication des bouteilles .....	19
I.2.1    Techniques expérimentales de caractérisation micro-structurale du PET .....	19
-    Diffraction des rayons X aux petits angles (SAXS) : qui considère les angles inférieurs à 5° .	20
I.2.2    La cristallisation a lieu pendant ou après déformation ?.....	20
I.3    Comportement mécanique.....	21
I.4    Machines de traction bi-axiales utilisées pour des matériaux polymères.....	22
I.4.1    Machine multi-axiale ASTREE .....	23
I.4.2    Machine de traction de Belfast.....	24
I.4.3    Machine de traction bi-axiale de l'institut de physique de Rennes.....	25
I.4.4    Conclusion :.....	26
<b>Chapitre II Conception et réalisation d'un dispositif de traction bi-axial de faible encombrement avec système de chauffe intégré. ....</b>	<b>27</b>
II.1    Cahier des charges et présentation globale du dispositif.....	28
II.1.1    Cahier des charges simplifié : énoncé du besoin .....	28
II.1.2    Présentation globale du dispositif .....	29
II.2    Banc de traction bi-axial.....	30
II.2.1    Choix du matériel .....	30
II.2.2    Modélisation CAO .....	31
II.2.3    Fabrication du banc de traction .....	35
II.2.4    Assemblage du matériel Festo.....	38
II.3    Pilotage : Commande et programmation .....	39
II.3.1    Les différentes étapes jusqu'au pilotage .....	39

II.3.2	Commande des axes .....	40
II.3.3	Mesure des efforts.....	41
II.4	Système de chauffe.....	43
II.5	Montage pour la ligne SWING du synchrotron.....	45
II.5.1	Différentes configurations du banc de traction.....	45
II.5.2	Équipement et enceinte fermée pour le système de chauffe .....	46
II.5.3	Principe des essais sous rayon X.....	47
II.6	Conclusion.....	48
<b>Chapitre III Réalisation d'essais bi-axiaux non équilibrés (CW et NEB) .....</b>		<b>49</b>
III.1	Introduction : dépouillement d'un essai bi-axial .....	50
III.2	Protocole expérimentale des essais bi-axiaux non équilibrés (CW et NEB) .....	51
III.2.1	Fabrication des éprouvettes de traction bi-axiales optimisées.....	51
III.2.2	Essais bi-axiaux non équilibrés (CW et NEB).....	53
III.3	Mesure des déformations sur les diagonales .....	55
III.4	Estimation des contraintes et courbes de comportement .....	59
III.5	Résultats et discussion .....	60
III.6	Identification du modèle visco-hyperélastique (VHE) .....	62
III.6.1	Présentation du modèle VHE .....	62
III.6.2	Identification du modèle VHE .....	64
III.6.3	Essais in-situ .....	65
III.7	Conclusion.....	68
<b>Chapitre IV Identification des propriétés élastiques du PET.....</b>		<b>70</b>
IV.1	Contexte de l'étude.....	71
IV.2	Méthode des champs virtuels appliquée à une géométrie carrée hétérogène sous sollicitation de traction bi-axiale.....	73
IV.2.1	Optimisation de la position du trou .....	73
IV.2.2	Choix des champs de déplacement virtuel pour la simulation numérique .....	74
IV.2.3	Géométrie réelle de l'échantillon .....	79
IV.3	Essai de traction bi-axiale sur éprouvette hétérogène.....	80
IV.3.1	Préparation de l'échantillon.....	80
IV.3.2	Essai de traction bi-axiale.....	81
IV.3.3	Système de corrélation d'images numériques (DIC).....	83
IV.3.4	Choix des champs de déplacements virtuels pour l'identification .....	85
IV.4	Résultats et discussion .....	87

IV.4.1	Résultats.....	87
IV.4.2	Discussion sur les modules d'Young et les coefficients de Poisson.....	87
IV.4.3	Discussion sur le module de cisaillement .....	88
IV.5	Microstructure des bouteilles de l'étude.....	89
IV.6	Conclusions .....	89
<b>Conclusion et perspectives .....</b>		<b>91</b>
<b>Bibliographie .....</b>		<b>93</b>
<b>Annexes.....</b>		<b>99</b>
1.	Assemblage matériel Festo .....	99
2.	Etude paramétrique.....	103
3.	Comparaison de trois échantillons de PET (PET Amorphe, PET cristallisé thermiquement, PET cristallisé mécaniquement dans le cas de la fabrication de bouteille).....	108
4.	Proposal synchrotron.....	110
5.	Rapport expérimental synchrotron .....	113

# Table des figures

Figure 1 – Evolution du poids d'une bouteille d'eau minérale SPA [1] .....	11
Figure 2 - Synthèse du PET : Réaction d'estérification .....	14
Figure 3 - Mécanisme du procédé de mise en forme des bouteilles en PET [8].....	16
Figure 4 - Evolution des propriétés mécaniques en fonction de la géométrie de la préforme.....	17
Figure 5- a) Influence de la température de l'éprouvette lors de l'essai de traction pour une vitesse de déformation donnée sur le module de Young, b) Influence de la vitesse de déformation de l'essai de traction pour une température donnée sur le module de Young .....	17
Figure 6 – a) Influence de la température de l'éprouvette lors de l'essai de traction pour une vitesse de déformation donnée sur le taux de cristallinité, b) Influence de la vitesse de déformation de l'éprouvette lors de l'essai de traction pour une température donnée sur le taux de cristallinité .....	18
Figure 7 – Plage des angles pour les techniques WAXS et SAXS .....	20
Figure 8 - Contrainte en fonction de l'allongement pour différentes vitesses d'étirage et de la température dans le cas d'un essai de traction équibi-axiale [45].....	22
Figure 9 - Vue générale de la machine tri-axiale ASTREE .....	23
Figure 10 - Schéma du montage de chauffage par infra-rouge [22] .....	24
Figure 11 - Machine de traction bi-axiale Belfast, b) éprouvette initiale et déformée [42].....	25
Figure 12 - Vue d'ensemble de la machine de traction de l'Institut de physique de Rennes [56] .....	26
Figure 13 – a) Vue 3D du dispositif de traction/ Cisaillement TRACY, b-Montage du dispositif de traction TRACY sur la ligne Diffabs du synchrotron .....	26
Figure 14 – A) Matériels Festo et leurs références, B) Capteur de force U93 HBM.....	31
Figure 15 - Présentation globale du dispositif .....	31
Figure 16 - Évolution de l'allure du dispositif de traction bi-axiale (a- première version, b- seconde version, c- troisième version validée). .....	33
Figure 17 - Modélisation CAO des plaques utiles à l'assemblage du banc.....	34
Figure 18 - Modélisation des mors et les pièces de maintien du capteur de force.....	34
Figure 19 – Usinage des profilés .....	35
Figure 20 - a) Structure en U et carrée b) Assemblage des structures .....	36
Figure 21 - Support et différents types de raccord.....	37
Figure 22 - Évolution de la forme des mors.....	38
Figure 23 - Mors avec écrou de serrage .....	38
Figure 24 - a) Extérieur armoire électrique , b) Intérieur de l'armoire électrique .....	39
Figure 25 - Déplacements possibles .....	41

Figure 26 - Raccordement capteur de force au module d'acquisition de donnée NI .....	42
Figure 27 – Essai de compression sur le capteur de force avec une machine de traction/compression Instron.....	42
Figure 28 - Différents systèmes de chauffe .....	43
Figure 29 – a) Vue de l'arrière de la machine avec installation du pistolet thermique et camera IR, b) face interne de la plaque en aluminium avec déflecteur .....	44
Figure 30 - Hauteur du dispositif à la limite.....	45
Figure 31 - a) Configuration avec 4 capteurs de force (en violet sur l'image), b) Configuration avec 2 capteurs de force .....	46
Figure 32 – a) Rallonge en forme de cône qui permet de se rapprocher au plus près de l'échantillon, b) Support arrière du dispositif avec feuille de kapton .....	47
Figure 33 – Principe des mesure SAXS sur la ligne SWING .....	47
Figure 34 – Dimensions du montage .....	48
Figure 35 - a) Essai Constant Width (CW), b) Essai bi-axial non équilibré (NEQ).....	49
Figure 36 - Contraint le long de la diagonal [AB] [62].....	50
Figure 37 - Presse à injection DK CODIM 175 du PIMM .....	51
Figure 38 - PET: Des granulés aux plaques injectés .....	52
Figure 39 – Optimisation de la géométrie de l'éprouvette - a) première version de l'éprouvette de traction bi-axiale, b) modèle CAO de la version optimisée de l'éprouvette de traction bi-axiale avec dessin et dimensions.....	52
Figure 40 -Trois tests bi-axiaux, déplacements imposés aux vérins (a) bi-axial équilibré EB (b) « constant width » CW et (c) NEB.....	53
Figure 41 - Mesures des déformations au centre, (a) EB (b) CW et (c) NEB.....	54
Figure 42 - Evolution de la force en fonction du temps (a) EB* (b) CW et (c) NEB. ....	55
Figure 43 - Grille avant et après déformation (a) EB, (b) CW et (c) NEB .....	56
Figure 44 - Modèle de l'éprouvette et géométrie .....	57
Figure 45 - Déformation $\varepsilon_{tt}$ et $\varepsilon_{nn}$ selon la diagonale (a) CW et (b) NEB .....	58
Figure 46 - Modèle de la ½ éprouvette pour l'équilibre entre les forces et les contraintes .....	59
Figure 47 – Déformations (a) et contraintes (b) en fonction du temps pour le test CW .....	60
Figure 48 - Contrainte $\sigma_{xx}$ et $\sigma_{yy}$ en fonction de $\varepsilon_{xx}$ pour le test CW. ....	61
Figure 49 - Déformations et contraintes en fonction du temps pour le test CW .....	61
Figure 50 - Contrainte $\sigma_{xx}$ versus $\varepsilon_{xx}$ (a) Contrainte $\sigma_{yy}$ versus $\varepsilon_{yy}$ pour le test NEB .....	62
Figure 51 - Contraintes $\sigma_{xx} = \sigma_{yy}$ en fonction de $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy}$ pour les tests EB [62] .....	62
Figure 52 - Comparaison entre les mesures expérimentales à 100°C et les simulations du modèle pour (a) CW, (b) NEB et (c) EB .....	65



Figure 53 – Montage du banc sur la ligne swing et éprouvette étirée.....	66
Figure 54 – Clichés SAXS de l'échantillon de PET durant la phase d'étirage et de relaxation dans le cas d'un essai de traction bi-axial .....	67
Figure 55 - Courbe de diffusion pour un essai équi-bi-axial .....	67
Figure 56 - Clichés SAXS de l'échantillon de PET durant la phase d'étirage et de relaxation dans le cas d'un essai de traction Constant Width .....	67
Figure 57 –Courbe de diffusion pour un essai Constant Width.....	68
Figure 58 - Forme de la bouteille et approche classique d'identification à partir de trois échantillons de traction uni-axiale coupés dans les directions 0, 90 et 45° (à gauche) ; échantillon transversal pour l'essai de tension bi-axiale (à droite). .....	72
Figure 59 - Identification à partir d'un essai uniaxial avec trou et d'une bouteille déformée sous pression.....	72
Figure 60 - Essai de traction bi-axial .....	73
Figure 61- Échantillon hétérogène bi-axial : (a) maillage initial et déformé et (b)influence du pourcentage de bruit sur la précision de l'identification.....	77
Figure 62 - Éprouvette hétérogène bi-axiale avec un trou : incertitudes en fonction de la position du trou $x_c$ et $y_c$ .....	78
Figure 63 - Dispersion sur les 30 réalisations de l'identification pour un trou donné en fonction de la distance entre le centre du trou et la "ligne interdite". .....	79
Figure 64 - Meilleur échantillon avec un trou. La ligne interdite a une pente plus élevée que le spécimen carré pour la même anisotropie.....	80
Figure 65- Soufflage des bouteilles SIDEL.....	81
Figure 66 - Procédure de découpe des éprouvettes bi-axiales a) Schéma de l'éprouvette, b) Eprouvette découpée par jet d'eau et installation de l'éprouvette sur le banc de traction bi-axial, c) Zone de prélèvement de l'éprouvette d'une bouteille .....	81
Figure 67 - Machine d'essai bi-axial et équipement d'acquisition d'image .....	82
Figure 68 - Forces à chaque pas de déplacements .....	83
Figure 69 - Remaillage sur MATLAB du maillage VIC-2D .....	83
Figure 70 - Champ de déplacement bi-axial issu de VIC-2D (a) déplacement horizontal U et (b) déplacement vertical V .....	84
Figure 71 - Champ de déformation bi-axial à partir des données expérimentales VIC-2D .....	84
Figure 72 - localisation du 4ème champ, il faut éviter de centrer la zone sur le trou au risque d'obtenir une 4ème équation triviale $0=0$ .....	86
Figure 73 a) Module d'Young ; b) Coefficients de Poisson ; c) Module de cisaillement.....	87

Figure 74 – a ) Cliché SAXS de la microstructure d'un échantillon de bouteille, b) Courbe de diffusion .....	89
Figure 75 - a) Vue éclatée du kit axial simple ; b) Vue éclatée du kit axial parallèle .....	99
Figure 76 - Description générale du variateur CMMP-AS et Schéma du branchement général du variateur.....	100
Figure 77 - Raccord câble d'alimentation/moteur.....	100
Figure 78 - Raccord câble encodeur/résolveur.....	101
Figure 79 - Raccord du câble d'alimentation 24V .....	101
Figure 80 - Raccord de la ligne de commande.....	102
Figure 81 - Branchement borne X40 : Sécurité.....	102
Figure 82 - Optimisation de l'identification des paramètres pour chaque essais indépendamment (CW, EB, NEB).....	103
Figure 83 – Optimisation de l'identification des paramètres à partir de l'ensemble des 3 essais (CW, EB, NEB).....	104
Figure 84 - PET Amorphe .....	108
Figure 85 - PET Cristallin par chauffe .....	108
Figure 86 - PET cristallin mécaniquement .....	109
Figure 87 - Comparaison entre le PET amorphe, le cristallisé par chauffe et celui de la bouteille (cristallisé mécaniquement) .....	109

# Liste des tableaux

Tableau 1 - Résumé des fonctions de contrainte du système .....	29
Tableau 2 – Vitesses imposées durant les essais CW, NEB et EB .....	53
Tableau 3 - Valeurs optimales des paramètres dans le modèle VHE .....	64
Tableau 4 Comparaison des propriétés orthotropes à partir de différentes méthodes .....	88
Tableau 5 – Identification des paramètres à partir des 3 types d’essais (CW, NEB, EB) et l’ensemble de ces 3 essais .....	103
Tableau 6 – Etude paramétrique avec paramètres CW comme références (valeur augmentée).....	104
Tableau 7 - Etude paramétrique avec paramètres CW comme références (valeur diminuée).....	105
Tableau 8 - Etude paramétrique avec paramètres NEB comme références (valeur augmentée) .....	105
Tableau 9 - Etude paramétrique avec paramètres NEB comme références (valeur diminuée).....	106
Tableau 10 - Etude paramétrique avec paramètres EB comme références (valeur augmentée) .....	106
Tableau 11 - Etude paramétrique avec paramètres EB comme références (valeur diminuée) .....	107



# Introduction

## 1 Projet de thèse

2000 Milliards, c'est le nombre de bouteilles en « plastique » fabriquées dans le monde depuis le début de ce travail. Cet emballage de boisson liquide est composé de Poly Ethylène Téréphtalate (PET). Au vu du chiffre important de bouteilles qui circulent sur notre planète, le PET est un matériau qui mérite qu'on lui accorde du temps pour le connaître davantage. D'autant que l'utilisation durable du plastique est devenue un enjeu mondial, toutes les grandes sociétés se sont engagées à réduire l'utilisation du plastique dans les emballages grâce à des initiatives de conception ou de recyclage. La préférence de ce polymère comme emballage de boisson est due à son inertie chimique et à ses propriétés physiques comme la transparence, la légèreté, l'étanchéité aux gaz et la facilité du recyclage. Le PET a remplacé le PVC qui était bien plus lourd, moins résistant et contraignant.

Les bouteilles en PET ont gagné en légèreté et sont sans cesse optimisées mais le potentiel de ce matériau est loin d'avoir été exploité en totalité. Les industriels sont à la recherche constante de moyens pour limiter au mieux la quantité de PET tout en conservant une bouteille avec de bonnes propriétés mécaniques. On observe dans la Figure 1 l'évolution des bouteilles d'eau minérale de la société belge SPA de 1971 à 2021. La quantité de PET a été réduite de plus de la moitié.

Les bouteilles sont mises en forme selon le procédé d'injection soufflage bi-étirage, qui nécessite l'utilisation de moules. Pour valider un nouveau modèle de bouteille, les industriels les soumettent à une série de tests qui nécessite le soufflage effectif des bouteilles prototypes et donc la réalisation des moules d'injection et de soufflage associés qui est très coûteuse. L'industrie s'appuie encore beaucoup sur le processus d'essais et d'erreurs ou sur des connaissances empiriques. Les fabricants de bouteilles reconnaissent la nécessité de s'éloigner de cette approche en utilisant la simulation numérique du processus de formage.



Figure 1 – Evolution du poids d'une bouteille d'eau minérale SPA [1]

## 2 Problématique

Lors de la fabrication d'une bouteille par soufflage, il y a plusieurs paramètres à prendre en compte à des échelles différentes. A l'échelle microscopique, le PET qui est constitué de longues chaînes de macromolécules va s'organiser d'une certaine manière sous sollicitation, ce qui va engendrer une microstructure particulière. Cette microstructure est la conséquence directe du choix des paramètres du procédé de mise en forme (température de chauffe, vitesse d'étirage...). La microstructure obtenue va à son tour avoir une conséquence sur les propriétés macroscopiques du matériau.

L'objectif, à terme, est de construire un outil numérique qui prendrait en compte à la fois l'aspect microstructural et l'aspect mécanique du PET lors du soufflage pour avoir un modèle prédictif du produit final sans passer par la fabrication de ce produit. Pour y parvenir, on doit comprendre les relations procédé-microstructure et microstructure-propriété mécanique.

La modélisation du comportement mécanique des matériaux passe par la mise au point et la réalisation d'essais de comportement. Le test mécanique de référence est l'essai de traction uni-axiale fortement développé à différentes échelles. Des versions « portables » permettent même de pratiquer ce type d'essais sous un faisceau de rayons X et de suivre les évolutions de microstructures.

La possibilité de solliciter le matériau dans plusieurs directions simultanément enrichit la base de données et permet une identification plus fiable du comportement cherché. C'est particulièrement vrai lorsque le comportement n'est pas isotrope ou lorsque la traction génère des modifications de microstructure comme c'est le cas pour le PET.

## 3 Objectif et plan

L'équipe « polymère » de MSME qui travaille sur le PET et le procédé de soufflage a développé des outils dans plusieurs domaines : mesure des propriétés induites, modélisation du comportement visco-hyper élastique au-dessus de  $T_g$ , simulation numérique du soufflage. En parallèle, des investigations sur la microstructure finale ont été réalisées et montrent une corrélation entre les propriétés mécaniques induites par le procédé et la microstructure finale. Un projet de banc biaxial a été lancé afin de réaliser des tractions dans des conditions plus proches du procédé tout en permettant une investigation micro in situ. Ce banc permet de nombreuses applications pour la mécanique des polymères.

Dans le cadre de la thèse, l'application principale visée concerne ces tests de caractérisation du comportement des plaques de PET utilisées pour le soufflage des bouteilles plastiques. Ce polymère présente un comportement singulier en étirage à des températures légèrement au-dessus de la transition vitreuse fortement couplé aux modifications de morphologie à l'échelle microscopique (orientation, cristallisation). L'objectif est de récolter suffisamment de données pour modéliser l'évolution de la microstructure en parallèle de l'évolution des propriétés mécaniques lors d'un essai de bi-étirage en associant les techniques d'inter-corrélation d'images pour déterminer le comportement mécanique à une caractérisation micro-structurale sous diffraction X pour des sollicitations variées et représentatives du procédé.

## 4 Organisation du manuscrit

Dans le chapitre 1, nous présenterons une revue de l'art sur le procédé de soufflage, l'influence des paramètres du procédé sur l'évolution de la microstructure et des propriétés mécaniques. Un bilan des

dispositifs de traction bi-axial est établi, pour retenir les solutions qui serviront pour notre propre réalisation. Le chapitre 2 présente un dispositif de traction bi-axial avec système de chauffage intégré totalement réalisé en interne pour reproduire en laboratoire le mécanisme de soufflage des bouteilles. Nous présenterons toutes les étapes, de la modélisation à la conception, en passant par le pilotage. Le chapitre 3 présente la validation du modèle de comportement visco-hyper-élastique (VHE) sur des essais de traction bi-axiaux non équilibrés en grandes déformations qui reproduisent les sollicitations qu'on retrouve lors du procédé de soufflage. Le chapitre 4 présente une méthode d'identification des propriétés mécaniques finales de la bouteille en utilisant la méthode des champs virtuels. La conclusion revient sur les points clés du travail et ouvre de nombreuses perspectives sur l'étude de la microstructure .

# Chapitre I

## Etat de l'art

### I.1 Fabrication des bouteilles en PET et principe de soufflage

#### I.1.1 Généralité sur le PET

Le PET est un polymère semi-cristallin de la famille des polyesters saturés thermoplastiques. Il fut breveté en 1941 par deux chimistes britanniques de Manchester, John Rex Whinfield et James Tennant Dickson. Ce polymère est obtenu par estérification de l'acide téréphtalique et de l'éthylène glycol avec élimination d'eau Figure 2.

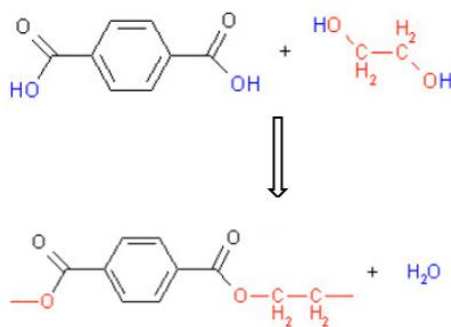


Figure 2 - Synthèse du PET : Réaction d'estérification

Lors de la production du PET, les monomères sont condensés par estérification et la viscosité du matériau est progressivement augmentée jusqu'à ce que la consistance souhaitée soit atteinte à la fin de la polycondensation. Cette masse fondue chauffée à plus de 250°C est ensuite pressée à travers des buses pour former de fines tiges. Ces tiges sont refroidies puis découpées en granulés. Les granulés sont ensuite transformés par différentes méthodes : injection, soufflage, extrusion, étirage, thermoformage...

Les polymères peuvent être aussi bien à l'état amorphe qu'à l'état semi-cristallin. Les chaînes macromoléculaires du PET ont une conformation plane. Il existe plusieurs type d'isomères :

- Une conformation *gauche*
- Une conformation *tans*
- Une conformation *gauche/trans*. On retrouve cette conformation dans le cas du PET amorphe [2]. Il s'agit d'une phase partiellement ordonnée. Son importance est significative lorsque le matériau est sollicité mécaniquement par étirage [3].

Dans le cas de la fabrication des bouteilles, des préformes sont obtenues par injection de granulés, puis mise en forme par étirage et soufflage. Le PET peut être amorphe ou partiellement cristallin (jusqu'à 50 %). L'apparition d'une phase cristalline dépend de la température ainsi que la mobilité moléculaire des chaînes de PET. On distingue trois plages de comportement :



- $T \leq T_g$  : En-dessous de la température de transition vitreuse, les chaînes ont une mobilité très locale pas assez pour pouvoir se mouvoir et s'organiser.
- $T_g \geq T \geq T_m$  : Le PET chauffé à une température comprise entre la température de transition vitreuse ( $T_g \approx 80^\circ\text{C}$ ) et la température de fusion (environ  $T_m = 270^\circ\text{C}$ ), possède les chaînes macromoléculaires mobiles dans la phase amorphe [4] [5] .
- $T \geq T_m$  : Au-dessus de la température de fusion ( $270^\circ\text{C}$ ) les liaisons Van der Waals dans le cristal sont détruites ce qui donne un matériau fluide visqueux.

Dans la plage de température qui permet une mobilité des macromolécules ( $T_g \geq T \geq T_m$ ), la structure cristalline peut être obtenue de deux manières différentes :

- **Thermiquement** : lors d'un refroidissement du polymère depuis le fondu, les macromolécules ont le temps de se ranger en ordre régulier. Plus le refroidissement est lent, plus le taux de cristallinité est élevé. Avec ce mécanisme, on observe une microstructure sphérolitique [6] [7] [8].
- **Mécaniquement** : lorsqu'on impose une sollicitation en grandes déformations au PET, l'organisation des chaînes est perturbée. La déformation des chaînes s'accompagne d'une augmentation du nombre de conformations trans [4] [5], ce qui entraîne la formation de petits cristaux, appelés cristallites.

Lors du procédé de soufflage utilisé pour la fabrication des bouteilles, c'est la cristallisation d'origine mécanique qui apparait. La morphologie induite augmente significativement la rigidité du matériau.

## 1.1.2 Procédé de fabrication industriel des bouteilles en PET

### 1.1.2.1 Principe du procédé de soufflage

Lors de la formation des préformes, le PET à l'état fluide très visqueux est injecté dans des moules refroidis à une température inférieure à l'ambiante ce qui abaisse brutalement la température du polymère et permet d'obtenir des préformes quasi amorphes avec un taux de cristallinité inférieur à 5% [9]. Suivant le type de bouteille souhaitée, les préformes sont plus ou moins de forme cylindrique munie d'un embout hémisphérique d'épaisseur de l'ordre de quelques millimètres et de plusieurs centimètres de longueur. Industriellement, ces préformes livrées à température ambiante sont chauffées à une température légèrement supérieure à la transition vitreuse  $T_g$ , dans des grands fours composés de lampes infrarouges. Pour obtenir une température homogène, la préforme est animée d'un mouvement de rotation autour de son axe de révolution pendant qu'elle passe devant les lampes. Dans le sens de la hauteur de la préforme, l'industriel retient un profil de température qui peut être obtenu en réglant les puissances des lampes de manière différenciée afin d'optimiser la répartition de matière dans la bouteille finale.

Une fois que les préformes ont atteint une température avoisinant les  $100^\circ\text{C}$ , elles sont transportées à l'aide d'une pince, dans un moule. La mise en forme de la bouteille est obtenue par étirage et soufflage. Ce qui induit une orientation (longitudinale puis radiale) des macromolécules en trois étapes :

- Une canne est introduite dans la préforme qui s'étire longitudinalement à une vitesse de l'ordre de 1m/s. Durant cette étape seul l'étirage uni-axial longitudinal est appliqué
- A mi-chemin, s'ajoute à cela un étirage radial par soufflage qui consiste à injecter une pression d'environ 5 à 9 bar, c'est l'étape de pré-soufflage. C'est un étirage bi-axial qui est appliqué ici.

- Et enfin, une application d'une pression d'environ 40 à 50 bar permet de plaquer le matériau sur les parois et épouse la forme précise du moule, qui donne la bouteille finale (Figure 3). Dans cette dernière étape c'est un étirage uni-axial circonférentiel qui est appliqué.

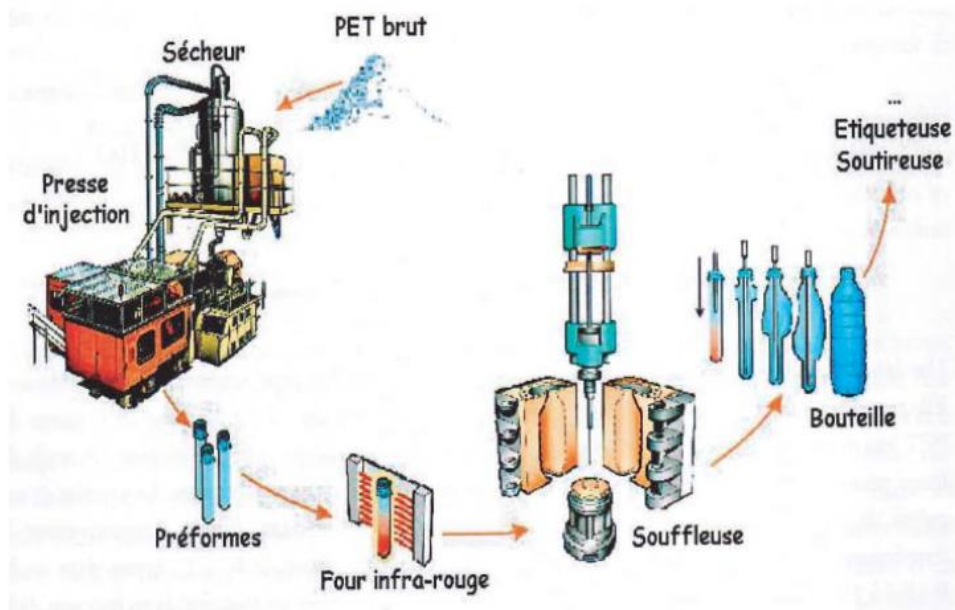


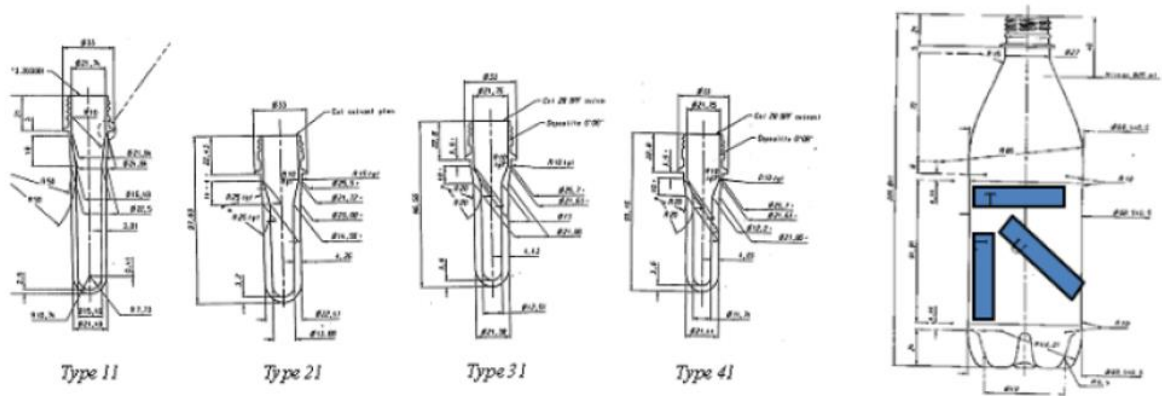
Figure 3 - Mécanisme du procédé de mise en forme des bouteilles en PET [8]

Une "bonne" bouteille doit répondre à des critères mécaniques. Pour résister à l'empilement des palettes (dans les entrepôts ou les magasins), lors de la prise en main des utilisateurs, dans leur vie quotidienne, et à la pression interne (due à la présence de gaz), une rigidité suffisante est nécessaire. Des critères thermiques sont également requis. La bouteille doit pouvoir être utilisée, en conservant sa forme et ses propriétés, à des températures et pressions différentes. Par exemple, elle doit pouvoir être utilisée aussi bien au sommet d'une montagne, qu'au niveau de la mer. Mais aussi dans des endroits chauds et humides. Enfin, la bouteille doit être en capacité de conserver le gaz des boissons gazeuses, de bonnes propriétés de barrière sont souhaitées. De plus, la transparence des matériaux a également été, et est toujours, un critère important pour les consommateurs. Cependant, avec l'apparition des bouteilles recyclées, le critère de transparence peut être difficile à garantir car les cycles thermiques pour le recyclage entraînent une diminution de la transparence [10].

### 1.1.2.2 Paramètres du procédé de soufflage

Des études ont déjà montré que les paramètres du procédé de mise en forme ont une influence sur les propriétés mécaniques et sur la microstructure. C'est le cas de Malhab [11] qui a démontré dans ces travaux l'influence du processus de moulage sur l'orientation cristalline et la morphologie des polymères semi-cristallins dans le cas de la production de micro-pièce en polymère en utilisant le moulage par micro-injection.

Sur la Figure 4 on voit les propriétés mécaniques bouteille qui évoluent suivant les dimensions de la préforme de départ. Parmi les paramètres du procédé on trouve aussi la température de chauffe, la vitesse d'étirage et la pression qui ont tous une influence sur les propriétés mécaniques (Figure 5) et le taux de cristallinité (Figure 6).



	type 11	type 21	type 31	type 41
$E^L$ (MPa)	1440	1790	1905	2015
$E^T$ (MPa)	3020	3050	3100	3480
$\nu^{LT}$	0.38	0.38	0.38	0.38
$G^{LT}$ (MPa)	743	774	773	759

Figure 4 - Evolution des propriétés mécaniques en fonction de la géométrie de la préforme

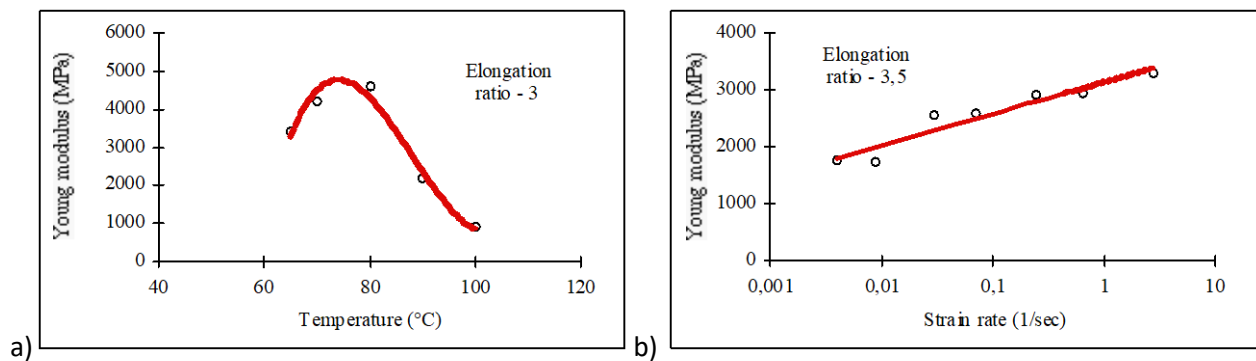


Figure 5- a) Influence de la température de l'éprouvette lors de l'essai de traction pour une vitesse de déformation donnée sur le module de Young, b) Influence de la vitesse de déformation de l'essai de traction pour une température donnée sur le module de Young

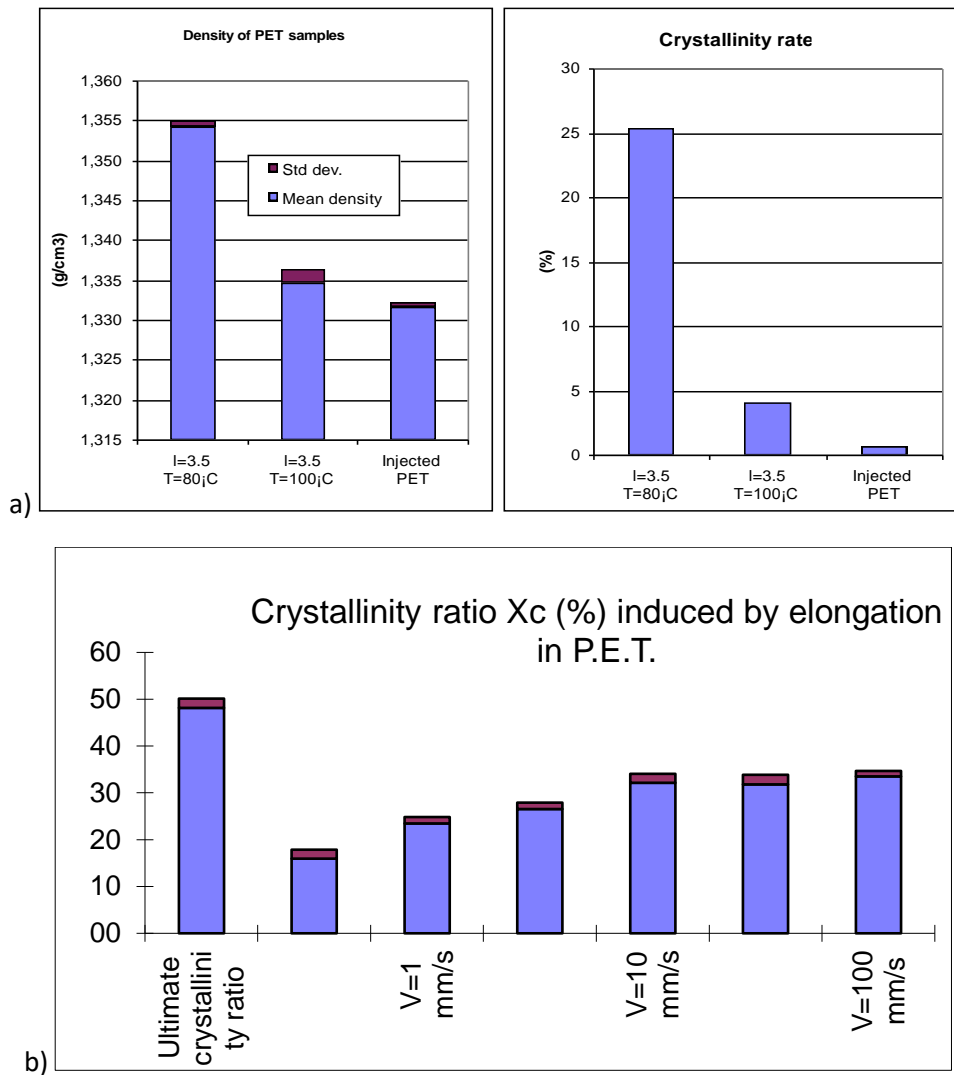


Figure 6 – a) Influence de la température de l'éprouvette lors de l'essai de traction pour une vitesse de déformation donnée sur le taux de cristallinité, b) Influence de la vitesse de déformation de l'éprouvette lors de l'essai de traction pour une température donnée sur le taux de cristallinité

Ces différents facteurs ont une influence directe sur l'organisation des macromolécules et par conséquent de la microstructure. L'organisation des macromolécules avec une phase cristalline plus ou moins importante, influe sur les propriétés macroscopiques telles que la rigidité ou l'anisotropie élastique. On voit là une importance réelle de l'intérêt de maîtriser les étapes du procédé pour prétendre prédire les propriétés induites.

Les propriétés mécaniques sont différentes en chaque point d'une bouteille du fait de leur géométrie complexe et de leur épaisseur variable. Le fond et que le col de la bouteille possède une épaisseur plus importante. Chevalier et Luo ont présenté une procédure d'identification de la distribution des modules dans la base pétaloïde<sup>1</sup> [12] [13] à partir de résultats expérimentaux et numériques.

L'identification des paramètres mécaniques qui régissent la loi de comportement d'un matériau peut être réalisée par la méthode des champs virtuels [14]. Cette méthode est basée sur le principe des travaux virtuels, [15] [16] [17] ont notamment utilisé cette méthode pour déterminer le comportement des matériaux anisotrope. [18] [19] ont utilisé la méthode des champs virtuel pour déterminer les propriétés

<sup>1</sup> Bouteille dont la base est formée de cinq ou six pétales.

mécaniques induites des bouteilles. Les propriétés ont ensuite été corrélées avec les paramètres du bi-étirage appliqué à l'échantillon par une simulation numérique.

Ces travaux montrent clairement l'effet des paramètres de mise en forme sur la microstructure et sur les propriétés induites de la bouteille.

## 1.2 Evolution de la microstructure durant la fabrication des bouteilles

La cristallisation mécanique du PET a été étudiée depuis plusieurs années. Gorlier et al. [20] ont étudié la cristallisation induite par déformation dans le cas de l'étirage-soufflage. Picard [21], Marco [22] et Quandalle [23] durant leur travaux de thèse, ont suivi la microstructure sous sollicitation. Picard a notamment étudié la microstructure sous sollicitation multiaxiale à des températures proches de  $T_g$  en utilisant la technique de trempé. Marco a suivi l'évolution de la microstructure in-situ pour des tests uni-axiaux mais aussi des tests ex-situ pour des sollicitations biaxiales. Quant à Quandalle, il a étudié la microstructure du PET dans le cas d'une déformation uni-axiale et de bi-axiale qui a ensuite été comparée au caoutchouc.

La microstructure du PET est différente pour une cristallisation thermique et une cristallisation mécanique. Dans l'annexe 3, on voit que les pics de diffraction (SAXS) qui caractérisent le cristal est plus intense pour le PET cristallisé mécaniquement que pour le PET cristallisé thermiquement. On s'intéresse ici à la cristallisation du PET par déformation. L'un des problèmes les plus difficiles dans la cristallisation des polymères est de déterminer et de modéliser la nature et la cinétique de la cristallisation induite par déformation qui se produit lorsque le PET est étiré juste au-dessus de sa température de transition vitreuse ( $T_g$ ).

### 1.2.1 Techniques expérimentales de caractérisation micro-structurale du PET

De nombreuses méthodes permettent d'analyser la microstructure d'un matériau [24]. Pour obtenir des informations pertinentes sur la structure et les propriétés des polymères semi-cristallins on a des techniques classiques, comme la microscopie optique utilisée par exemple pour déterminer le taux de croissance et la cinétique de nucléation des sphérolites dans le cas d'une cristallisation thermique. La résonance magnétique nucléaire (RMN) est une technique spectroscopique puissante basée sur la transition entre des niveaux d'énergie quantifiés causés par les interactions avec le matériau. Elle est utilisée pour obtenir des informations liées à la structure, à la relaxation de la chaîne et à la cristallinité [25]. La calorimétrie différentielle à balayage (DSC) efficace pour caractériser les propriétés physiques d'un polymère. Elle permet de déterminer les températures de fusion, de cristallisation à partir de là, le degré de cristallinité des matériaux semi-cristallins [26] [27]. La mesure de la densité, le polymère après avoir cristallisé voit sa densité augmenter. Cette mesure permet d'en tirer le taux de cristallinité. Par dichroïsme infrarouge [28], cette technique consiste à déterminer l'absorbance  $A$  qui est proportionnelle à l'épaisseur de l'échantillon qui suit la loi de Beer-Lambert, cette technique permet de mesurer l'orientation moyenne d'un maillon de chaîne macromoléculaire. On trouve d'autres méthodes comme la microscopie électrique. Ces moyens sont utilisés pour obtenir différentes informations sur la microstructure des échantillons.

Il existe aussi la diffusion des rayons X qui nécessite un développement du fait de sa puissance et des informations qu'on peut en tirer. Cette technique a connu une évolution importante de par les progrès effectués sur les sources de rayons X (rayonnement synchrotron) et sur les détecteurs, c'est l'un des

moyens d'observation de la microstructure les plus puissants. On peut découvrir dans [29] différentes applications de cette méthode.

Il existe principalement deux techniques de diffractions des rayons X:

- Diffraction des rayons X aux petits angles (SAXS) : qui considère les angles inférieurs à 5°
- Diffraction des rayons X aux grands angles (WAXS) : qui considère les angles supérieurs à 5°

Pour une longueur d'onde de  $\lambda = 1,45 \text{ \AA}$  (Figure 7).

Avec les WAXS, il est possible d'identifier et de quantifier les phases cristallines présentes dans un échantillon donné, ainsi que d'estimer la taille des cristallites et l'orientation du réseau cristallin dans une structure. Avec les SAXS, on peut obtenir des informations sur la distance entre deux cristallites, mais aussi la taille de la structure cristalline. Ces deux techniques sont complémentaires et sont les techniques les plus précises pour quantifier les proportions des différentes phases d'un matériau. Chevalier et Marco ont étudiés le taux de cristallinité, le degré d'orientation et la taille des cristallites du PET en combinant le dichroïsme IR et les WAXS [30] [31] [22].

Pour un suivi in-situ de l'évolution de la microstructure durant la déformation, il est nécessaire de disposer du moyen le plus puissant ; la diffraction X apparaît comme une solution réalisable et la plus adaptée.

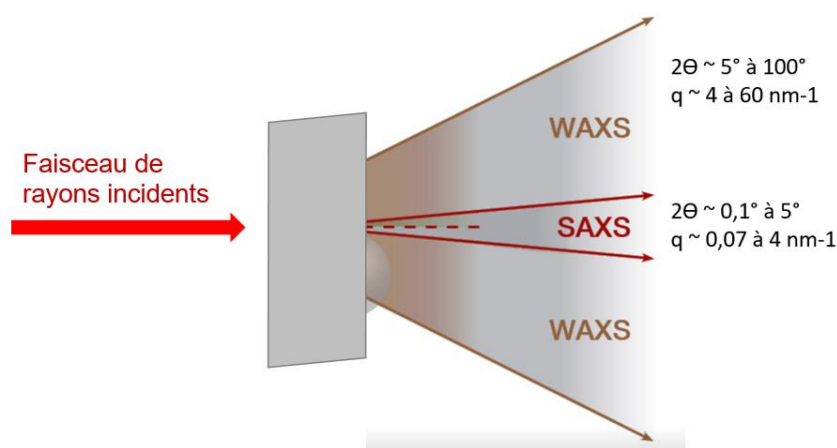


Figure 7 – Plage des angles pour les techniques WAXS et SAXS

## 1.2.2 La cristallisation a lieu pendant ou après déformation ?

On est amené à penser que la cristallisation est contrôlée par la déformation d'après les différents travaux [32] [33] [34] [35] qui ont porté sur la cristallisation induite par plusieurs types de sollicitations mécaniques (traction uni-axiale, bi-axiale, cisaillement). Mais le début de la cristallisation n'est pas encore connu, elle peut avoir lieu durant ou après la déformation. Toutefois, les mesures microstructurales sont pour la plupart menées après déformation de l'éprouvette [36] [37] [38].

Les travaux de Gorlier et al. [20], qui ont étudié la microstructure du PET par la méthode de diffraction rayons X en utilisant la technique de trempe qui permet de figer la microstructure à la fin de la déformation, ont démontré que la cristallisation se produit en grande partie durant l'étape de relaxation, c'est-à-dire après déformation du PET. Mais le refroidissement lors de la trempe influence la microstructure. D'autre chercheur ont montré que la cristallisation est un phénomène progressif qui implique des phases intermédiaires [39].

Marco [22] a réalisé un essai de traction uni-axial in-situ dans des conditions de température proches de celles du procédé pour caractériser les interactions micro-macro du PET. Les essais réalisés ont permis

d'effectuer différentes observations de la microstructure, en particulier par la diffraction des rayons X (WAXS) afin de décrire et quantifier l'évolution microstructurale du matériau au cours des sollicitations. Il a montré que la cristallisation du PET apparaît durant la période du durcissement. Quant à l'orientation, elle prend forme à mesure que l'élongation augmente.

Quandalle [23] à son tour a réalisé des essais in-situ de traction uni-axiale et bi-axiale sur le caoutchouc et le PET sur la ligne synchrotron Diffabs afin d'étudier la cristallisation induite par déformation en WAXS. Il fait la distinction entre apparition d'un réseau cristallin et celle d'une phase organisée. Il montre que la phase organisée a lieu durant toute la période d'étirage. Tandis que l'orientation est contrôlée par le chargement.

### 1.3 Comportement mécanique

Lors de la fabrication des bouteilles, le PET qui est chauffé à une température légèrement supérieure à la température de transition vitreuse  $T_g$ , possède un comportement viscoélastique visible par la dépendance à la vitesse de déformation et l'existence d'une contrainte résiduelle lors d'un essai de relaxation. Sur cette base, le comportement du PET pourrait être modélisé par des modèles viscoélastiques tels que le modèle Maxwell, ou celui de Phan-Thien-Tanner. Néanmoins, ces modèles capables de décrire le comportement des polymères fondus aux structures ramifiées ne conviennent pas pour décrire celui du PET lorsqu'il est chauffé légèrement au-dessus de  $T_g$ . Un autre phénomène survient lors de la formation de bouteilles, appelé durcissement structural qui est directement lié à la cristallisation du PET. Autrement dit, à partir d'un taux d'étirage limite, les chaînes macromoléculaires s'orientent ce qui provoque le début de la cristallisation. Ce phénomène va engendrer un durcissement structural dépendant de la vitesse de déformation et de la température de chauffe. Sur la Figure 8 le durcissement est caractérisé par une augmentation rapide de la contrainte à partir d'un d'allongement relatif d'environ 2,5. Les modèles rhéologiques qui permettent de décrire le durcissement sont des modèles hyperélastiques. On trouvera les premières applications de ces modèles à la modélisation de la rhéologie non-linéaire du PET dans [40] [41].

Cependant, le PET chauffé à une température proche de la transition vitreuse ( $T_g$ ) met en évidence un comportement élastique et visqueux fortement non linéaire avec effet de durcissement. Ces deux types de modèles de comportement ne permettent chacun que de modéliser partiellement le comportement du PET durant le procédé de soufflage.

Gorlier et al. [21] ont utilisé le modèle hyperélastique pour caractériser le comportement du PET en traction uni-axiale dans une machine hydraulique Instron avec une vitesse de déformation jusqu'à  $0,01 \text{ s}^{-1}$ . Chevalier et Marco [22] ont utilisé un modèle viscoplastique pour modéliser le comportement du PET en traction bi-axiale près de  $T_g$  avec une gamme de vitesses de déformation allant de  $0,02$  à  $2,5 \text{ s}^{-1}$ . Buckley et Jones [23] ont utilisé un modèle viscoélastique qu'ils ont développé, sur des tests biaxiaux à des températures de  $75$  à  $120 \text{ °C}$  et à des vitesses de déformation de  $1$  à  $16 \text{ s}^{-1}$ .

Luo [42] [43] a développé durant sa thèse le modèle visco-hyperélastique, qui combine les effets viscoélastiques et hyperplasiques pour reproduire le comportement du PET durant la fabrication des bouteilles. Dans ses travaux, un modèle isotrope visco-hyperélastique non linéaire était utilisable uniquement pour le test de traction bi-axiale. Une version plus récente et anisotrope [44] du modèle permet de s'adapter aux tests bi-axiaux équilibrés ou non et aux expériences de soufflage libre. Il est a

noter que ce modèle est couplé à la thermique. Nous allons, dans le Chapitre III présenter ce modèle visco-hyperélastique qui sera ensuite utilisé pour identifier les paramètres pour différents cas de sollicitations

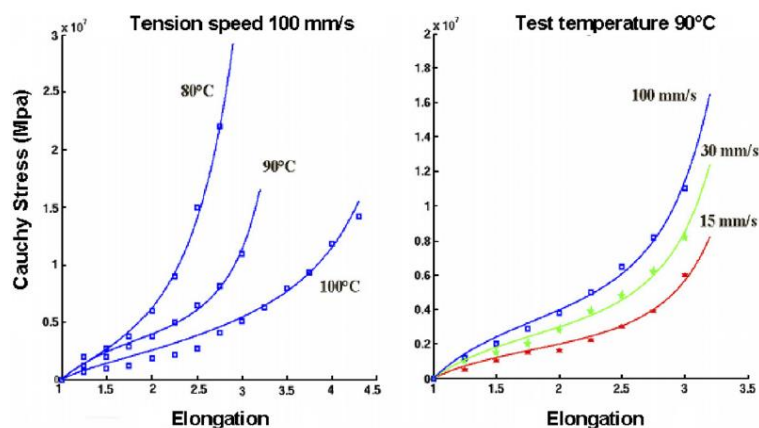


Figure 8 - Contrainte en fonction de l'allongement pour différentes vitesses d'étirage et de la température dans le cas d'un essai de traction équi-biaxiale [45]

## I.4 Machines de traction bi-axiales utilisées pour des matériaux polymères

Avant de nous lancer dans la présentation de notre propre réalisation (Chapitre II), il nous apparaît intéressant de faire un bilan des réalisations en matière de dispositifs de traction bi-axiale. Pour notre conception, nous avons dû analyser les différentes solutions existantes, les retenir et les adapter en fonction de nos besoins.

De nombreuses solutions techniques ont été proposées pour réaliser des essais de traction bi-axiale pour les polymères. Lin et Ding [46] ont ajouté un actionneur manuel à une machine Instron uni-axiale afin d'étudier la plastification des métaux d'aluminium sous test bi-axial. L'adaptation d'une machine de traction uni-axiale est une solution économique. L'utilisation d'un actionneur vertical ne nécessite que des transformations réduites pour ajouter le deuxième chargement horizontal.

Chandran et Jabarin [47] [48] ont effectué l'étirage bi-axial de films de PET extrudés dans la gamme de température de 80-110 °C et jusqu'à une vitesse de déformation de  $2 \text{ s}^{-1}$ . Chevalier et Marco [45] ont utilisé une machine d'essai de traction/compression triaxiale au laboratoire LMT Cachan pour réaliser des essais de tension bi-axiale près de la  $T_g$  avec une gamme de vitesses de déformation de  $0.02$  à  $2 \text{ s}^{-1}$ . Buckley et Jones [49] ont utilisé une machine d'essais spécialement développée, appelée Flexible Bi-axial Film Tester, pour réaliser les essais biaxiaux à des températures de 75-120°C et à des taux de déformation de  $1$  à  $16 \text{ s}^{-1}$ . Des essais expérimentaux uni-axiaux et bi-axiaux sur le PET ont été réalisés par Menary et al. [50] à l'université Queen's de Belfast.

Dans la suite, nous allons détailler la composition et le fonctionnement de quelques-uns de ces dispositifs de tractions bi-axiales.



### I.4.1 Machine multi-axiale ASTREE

Cette machine a été développée par le LMT-Cachan et par Schenck AG (Darmstadt, Allemagne). Les possibilités offertes par ASTREE sont de pouvoir appliquer un chargement tridimensionnel sur une éprouvette ou une petite structure (Figure 9). Le bâti d'ASTREE est constitué d'un soubassement fixe, de quatre colonnes verticales, de quatre traverses verticales mobiles et d'une traverse horizontale mobile. L'espace d'essai est de  $650 \times 650 \times 1500 \text{ mm}^3$ , délimité par six vérins installés dans les trois directions orthogonales. Asservie électro-hydrauliquement, la machine est composée de six actionneurs hydrauliques. La capacité de la machine dans le plan horizontal est de 100 kN en traction et en compression, avec une course de 250mm. Tandis que le chargement hors plan peut atteindre 250 kN avec une course de 250mm. Les six vérins sont installés en vis-à-vis selon trois directions orthogonales. C'est un dispositif très imposant, d'environ 4m de long, et de plus de 1m de diamètre. Aux vues de sa taille et de son poids, la machine a été fixée au sol. Dans ce dispositif, les vérins en vis-à-vis sont pilotés par un mode couplé permettant de garantir l'immobilité du centre de l'éprouvette et la symétrie des conditions limites. Ici, le pilotage des vérins de façon indépendante n'est pas permis. Des servovalves sont montées sur les vérins, pour déplacer les vérins. Le pilotage et l'acquisition des données (force par exemple) sont réalisés par le logiciel de programmation LabView en utilisant le protocole de communication GPIB. Cette machine offre énormément de possibilité de travail sur divers matériaux. Dans [51] [52] notamment, on utilise ce dispositif dans le cas d'essais de fatigue sur des alliages métalliques comme l'acier.

Chevalier et Marco [45] ont intégré au dispositif un système de chauffe par ondes infra-rouges. C'est la méthode utilisée dans l'industrie pour chauffer les préformes. Cette technique de chauffe permet une montée en température rapide et homogène de l'éprouvette. De plus, elle permet l'accessibilité d'une des faces de l'éprouvette pour les analyses optiques de corrélation d'images (Figure 10)

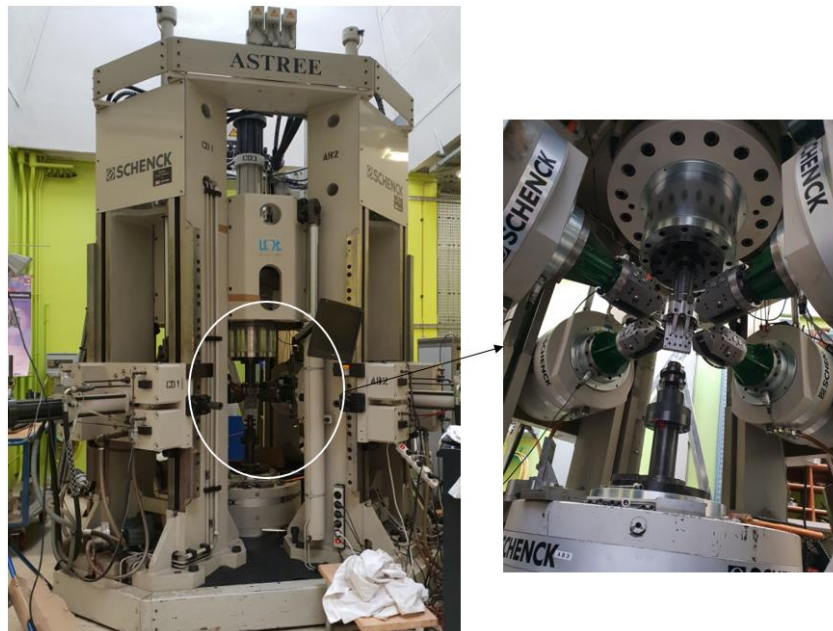


Figure 9 - Vue générale de la machine tri-axiale ASTREE

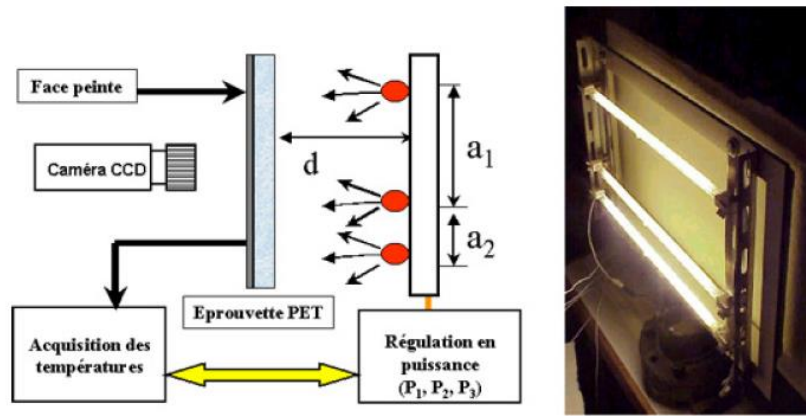


Figure 10 - Schéma du montage de chauffage par infra-rouge [22]

#### I.4.2 Machine de traction de Belfast

Un banc d'essai bi-axial a également été développé à l'Université Queen's de Belfast [53] [54] pour étudier le comportement du PET. Cette machine permet d'atteindre des vitesses de déformation rapides, proches de celles du procédé ISBM (Figure 11-a).

Le dispositif de traction bi-axiale a été construit sur mesure, pour répondre à leurs besoins, à savoir des vitesses de déformation élevées, une déformation supérieure à 200% et une température de chauffe au-dessus de la température de transition vitreuse. Le dispositif est constitué de 24 pinces qui maintiennent l'échantillon. Ce sont des pinces pneumatiques alimentées en azote. Le mouvement des pinces s'effectue grâce à des servomoteurs commandés par une interface informatique. L'utilisateur fournit des informations telles que la vitesse d'étirement, le mode de déformation et la distance requise pour l'étirement. Le mode de déformation est entièrement programmable dans le plan (X, Y), et peut varier d'un étirement équi-biaxial à un étirement où on maintient un axe fixe et pendant que l'autre axe s'étire pour représenter au mieux toutes les sollicitations mécaniques durant le soufflage des bouteilles. Le chargement peut également être appliqué de manière séquentielle. La vitesse d'étirement maximale est de  $2400 \text{ mm} \cdot \text{s}^{-1}$  (vitesse de déformation nominale moyenne de  $32 \text{ s}^{-1}$ ) [55]. Comme la machine ASTREE, elle n'offre pas la possibilité de piloter les vérins indépendamment. La limite d'étirement bi-axial de la machine est d'environ 300% de déformation (Figure 11-b). Le taux de déformation nominal élevé pouvant aller de 2 à  $10 \text{ s}^{-1}$ . La force d'étirement est enregistrée en fonction du déplacement sur chaque axe par deux capteurs de force (charge maximale de 200 N) montés sur la poignée centrale de chaque axe. Ce dispositif est équipé d'un système de chauffe. L'échantillon est chauffé par deux chauffages à convection, l'un monté au-dessus et l'autre au-dessous de l'échantillon d'essai. La température peut atteindre  $160^\circ\text{C}$ . La température en début d'essai est mesurée par un thermocouple placé juste au-dessus de la surface de l'échantillon. Ce système de chauffe, permet d'avoir une bonne répartition de la chaleur sur l'éprouvette, l'inconvénient est l'accès à l'échantillon qui semble difficile.

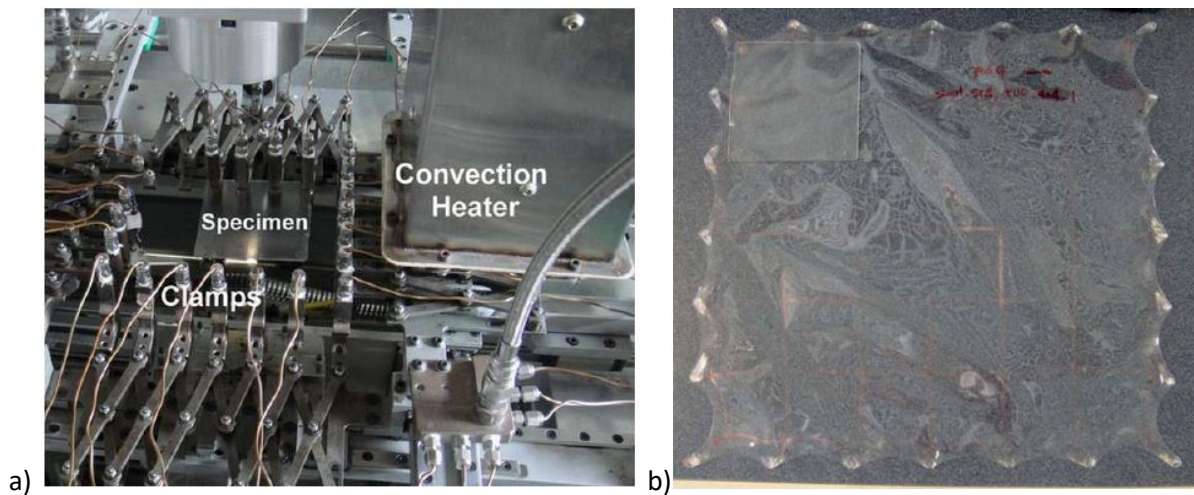


Figure 11 - Machine de traction bi-axiale Belfast, b) éprouvette initiale et déformée [42]

### I.4.3 Machine de traction bi-axiale de l'institut de physique de Rennes

L'institut physique de Rennes dispose d'une machine de traction bi-axiale utilisée principalement pour les élastomères (Figure 12). Elle est composée de quatre actionneurs électriques indépendants RCP4-RA6C-I-56P-4-300-P3-M (IAI). Ils sont pilotés par un contrôleur PCON-CA-56P I-PLP-2-0 et quatre contrôleurs de position PCON-CA (IAI). Les actionneurs sont pilotés au moyen d'un programme LabVIEW développé en interne. Du fait de l'indépendance de chaque vérin, le dispositif permet une grande latitude dans les profils d'essais possibles. Les quatre actionneurs indépendants peuvent être contrôlés de manière à ce que le centre de l'échantillon soit immobile, et ainsi permettent d'étirer symétriquement les échantillons dans deux directions perpendiculaires. Le pilotage se fait en déplacement en imposant une vitesse [56].

Cette machine "maison" permet d'étirer des élastomères de plusieurs dizaines de centimètres pour des éprouvettes à 3 ou 4 branches (cruciformes). Le dispositif est constitué de deux cellules de charge qui mesurent la force dans les deux directions. La capacité de charge de la cellule est de 1094 N. Une caméra optique et une caméra infrarouge sont installées de part et d'autre de la machine d'essai bi-axiale. Les images de la surface de l'échantillon peuvent être enregistrées à une fréquence de 10 Hz avec une caméra IDS équipée d'un objectif télécentrique de 55mm. Le dispositif à couplage de charge (CCD) de la caméra est de 1920x1200 pixels. Le dispositif dispose également d'un moyen pour déterminer le champ de déplacement à la surface de l'échantillon en utilisant la technique de corrélation d'images numériques (DIC). Les images des caméras, les déplacements des vérins, et les forces appliquées dans les deux directions perpendiculaires sont stockées au même rythme, grâce au programme interne.

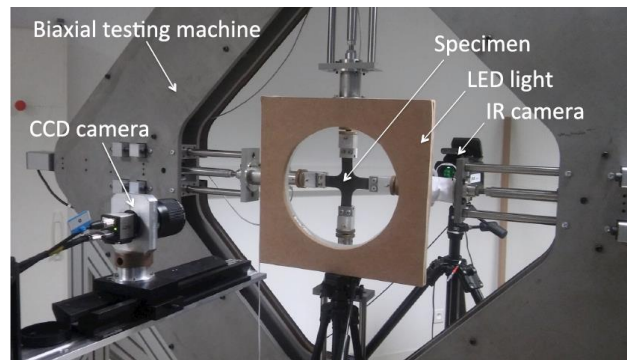


Figure 12 - Vue d'ensemble de la machine de traction de l'Institut de physique de Rennes [56]

#### I.4.4 Conclusion :

On a développé dans cette section quelques dispositifs qui existent au sein des laboratoires, la liste n'est pas exhaustive. Récemment, Quandalle [23] a réalisé des essais de traction et cisaillement avec la machine TRACY (Figure 13) conçue au Centre des Matériaux de l'école des Mines de Paris. Avec ce dispositif, il a pu réaliser à la fois une étude mécanique mais aussi suivre l'évolution de la microstructure lors de la déformation.

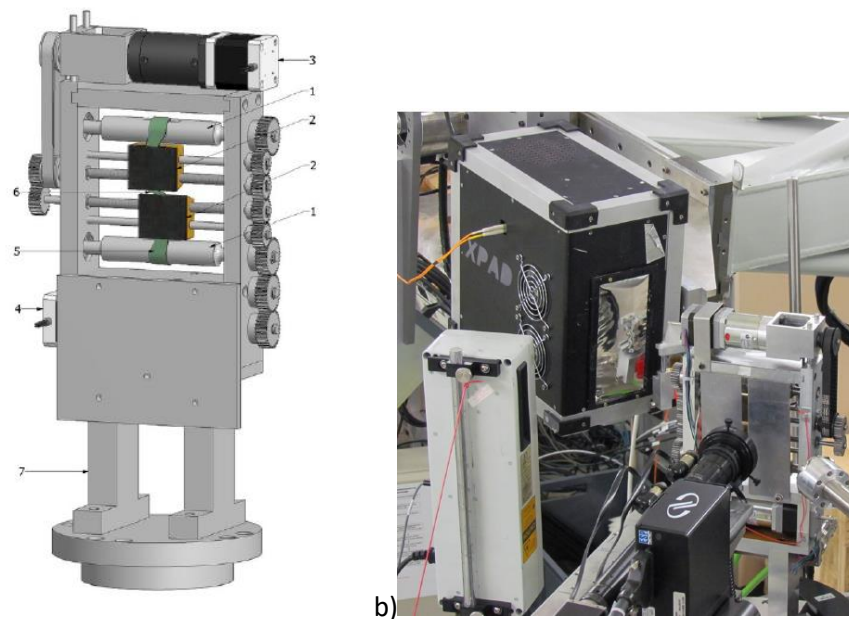


Figure 13 – a) Vue 3D du dispositif de traction/ Cisaillement TRACY, b-Montage du dispositif de traction TRACY sur la ligne Diffabs du synchrotron

On trouve aussi le banc de bi-étirage du laboratoire UMET de Lille qui permet d'atteindre des vitesses de déplacement jusqu'à 500mm/s et des taux d'étirage allant jusqu'à 7. Il dispose aussi d'un système de chauffe. Le laboratoire CEMEF de Mines ParisTech, dispose de deux machines : une pour les polymères et une pour les tissus biologiques.

Ce bilan des dispositifs de traction bi-axiale utilisés dans le domaine de la rhéologie nous permet de retenir les solutions technologiques qui pourront répondre à nos besoins pour la conception de notre propre machine qui fait l'objet du chapitre qui suit.

## Chapitre II

# **Conception et réalisation d'un dispositif de traction bi-axial de faible encombrement avec système de chauffe intégré.**

Depuis les années 80, un grand nombre de laboratoires ont mis au point des systèmes voire des machines pour solliciter les matériaux de manière multiaxiale [57] [58] [59], on est en droit de s'interroger sur la justification de la conception d'une nouvelle machine de traction bi-axiale. Plus particulièrement, pour les polymères dans leur plage de comportement caoutchoutique, ce type de dispositifs a déjà été beaucoup décliné en recherche dans le domaine de la rhéologie. Généralement, ils sont conçus pour des études en réponse à des besoins spécifiques et un nouveau contexte peut nécessiter une nouvelle conception.

Ce projet s'inscrit dans le cadre de l'analyse du comportement des polymères en grandes déformations sous chargement multi-axial dans des conditions de vitesse et de température proches du procédé de soufflage étirage. Il s'appuie sur la conception d'une ressource expérimentale pour tester les matériaux sous sollicitation complexe. Les premiers travaux effectués sur ce projet datent de 2014 par Mélody Seriset, élève ingénieure en Génie Mécanique, lors de son stage de fin d'étude. Elle a notamment établi un premier cahier des charges détaillant les besoins des chercheurs du laboratoire. Ce projet a ensuite été repris entre 2017 et 2018 ce qui a permis l'achat de vérins grâce au financement du Labex MMCD. Mes travaux de thèse ont commencé suite à ces deux projets avec comme point de départ 4 actionneurs et une esquisse de conception du banc.

Ce chapitre de facture peu classique dans un mémoire de thèse, présente la mise en place du dispositif de traction bi-axial conçu pour reproduire des sollicitations proches du procédé de fabrication des bouteilles plastique en PET utilisées en industrie. Cette conception et sa mise au point ont occupé une grande place durant ma thèse.

Durant le procédé de soufflage-étirage, les préformes sont chauffés à une température légèrement supérieur la transition vitreuse, soit environ 100°C, et subissent des déformations qui peuvent atteindre 400%-500% dans le sens radial à une vitesse d'environ 1,5m/s. De plus, la microstructure du PET évolue. Dans cette perspective, l'utilisation d'un dispositif de traction bi-axial adapté à l'étude de l'évolution de la microstructure avec la possibilité d'atteindre de grandes vitesses de déformation est envisagée. Or, à notre connaissance, une telle machine n'est pas actuellement commercialisée, une gamme de machines qui répond à notre demande, à savoir l'étude du PET dans les conditions proches du procédé de soufflage des bouteilles et de faible dimension pour permettre l'étude de l'évolution de la microstructure in-situ. C'est pourquoi nous nous sommes tournés vers la conception et à la réalisation de notre propre système expérimental.

Nous nous sommes inspirés des réalisations existantes sur le marché et des dispositifs élaborés par d'autres laboratoires pour concevoir notre propre machine de traction. Nous avons défini nos besoins et établi un cahier des charges. Ces besoins ont fait l'objet d'une analyse qui nous a permis d'en tirer les caractéristiques principales comme la mise en place d'un système de chauffe ou encore les commandes et les déplacements à imposer pour l'étude de notre matériau. Pour ce faire, ce dispositif devra respecter certaines exigences qui sont détaillées ci-après.

## II.1 Cahier des charges et présentation globale du dispositif

### II.1.1 Cahier des charges simplifié : énoncé du besoin

Ce dispositif de traction a été développé en fonction de nos besoins :

- Il doit permettre d'étirer les polymères suivant deux directions perpendiculaires avec des déformations de l'ordre de 300% à 400%, à une vitesse de déformation élevée de l'ordre  $20s^{-1}$  et à une température régulée supérieure à la température de transition vitreuse du PET à savoir des températures pouvant aller jusqu'à  $150^{\circ}C$  ;
- La taille doit rester suffisamment petite, inférieure à 1,5m, pour être transportable afin d'effectuer des essais bi-axiaux in situ de la ligne SWING du synchrotron SOLEIL.

Au vu des exigences du laboratoire concernant la phase d'utilisation du banc d'essai, le système doit répondre à la fonction principale : « Permettre le bi-étirage d'une éprouvette de PET, dans les conditions proche du procédé de soufflage des bouteilles, être d'encombrement minimal et permettre d'observer l'évolution de sa microstructure par rayon X via l'installation de la machine d'essai dans les laboratoires du Synchrotron Soleil et permettre d'observer l'évolution mécanique du PET . »

Pour la conception du dispositif, nous avons établi un cahier des charges listant les différentes fonctions principales et les différentes contraintes auxquelles le système devra répondre. Le Tableau 1 résume ces fonctions et les critères caractéristiques associés :

- **FC1** On souhaite piloter les vérins de manière indépendante pour envisager une multitude d'essais de traction (uni-axial, équi-bi-axial, bi-axial non équilibré ou traction plane (ce dernier type d'essais est appelé *Constant Width* dans la suite)
- **FC2, FC3** Pour se rapprocher des conditions industrielles, on doit pouvoir étirer l'échantillon à de grande vitesse (supérieure à  $10s^{-1}$ ) et en grande déformation (jusqu'à 400%)
- **FC4** On souhaite visualiser le chargement à chaque instant de l'essai
- **FC5** Eviter les mouvements de corps rigide qui empêchent une prise d'image, notamment lors des mesures de déformation par corrélation d'image
- **FC6** Le dispositif doit être de faible encombrement et permettre son installation sur la ligne Swing du synchrotron pour envisager des essais de caractérisation microstructurale du PET durant un essai de traction bi-axial.
- **FC7** Le dispositif doit être équipé d'un système de chauffe avec une enceinte fermée allant à une température supérieure à  $160^{\circ}C$ . Ce système doit être facilement démonté pour pouvoir changer l'échantillon rapidement.

- **FC8** L'échantillon doit être libre d'accès de chaque côté : pour les essais de caractérisation mécanique, on doit pouvoir d'un côté retirer l'éprouvette assez simplement et de l'autre côté pouvoir installer une caméra pour des mesures par corrélation d'images

Tableau 1 - Résumé des fonctions de contrainte du système

	Fonction de contraintes	Critère
FC1	Mouvement des vérins	Pilotage indépendant des vérins
FC2	Déformation élevée	+200%
FC3	Vitesse de déformation élevée	$10s^{-1}$
FC4	Mesure et gamme des efforts	Force à chaque instant de l'essai, capacité 10kN
FC5	Eviter le mouvement de corps rigide de l'éprouvette	Déplacement max inférieur à 1mm
FC6	Faible encombrement du dispositif	Hauteur inférieur à 1,5m
FC7	Système de chauffe intégré	- Température supérieur 120°C - Système de chauffe facilement démontable
FC8	Laisser libre d'observation les faces de l'échantillon	Les deux faces libres

## II.1.2 Présentation globale du dispositif

On a choisi quatre actionneurs identiques FESTO avec une vitesse maximale de 530 mm/s et une longueur de course de 100 mm ce qui autorise un allongement de 200 mm dans chaque direction. Ces déplacements sont suffisants pour tous les essais que nous envisageons de réaliser. Si on considère un échantillon de dimension  $a \times a$  alors on pourra atteindre des allongements relatifs de l'ordre de  $200/a$ .

Des capteurs de force sont installés à l'extrémité de chaque actionneur. Ces capteurs sont reliés à des pinces qui permettent de maintenir l'échantillon étudié. Ils ont une force nominale de 10kN. Cette valeur est largement surdimensionnée pour le PET au-dessus de sa température de transition vitreuse mais le banc est aussi sensé être utilisé pour d'autres matériaux tels que les caoutchoucs et élastomères.

Les quatre actionneurs sont pilotés indépendamment avec le logiciel de programmation LABVIEW via le protocole Modbus TCP/IP. Ce protocole utilise la communication numérique qui offre une solution avantageuse en matière de commande et contrôle de mouvement car on réduit les risques d'erreur en limitant les conversions entre les formats analogique et numérique.

Le logiciel LabVIEW permet de contrôler les actionneurs mais aussi d'assurer l'acquisition de données de la force mesurée par les capteurs. L'utilisation de ce logiciel est un moyen souple de pilotage et d'acquisition de données.

Les quatre actionneurs indépendants sont contrôlés pour s'assurer que le centre de l'échantillon reste immobile. L'un des impératifs essentiels est d'assurer un chargement symétrique sur chaque bras de l'éprouvette cruciforme. Deux raisons à l'immobilité du centre de l'éprouvette :

- Éviter le cisaillement qui perturbe l'homogénéité de la sollicitation dans la zone de mesure
- Éviter le déplacement de l'éprouvette au cours de l'essai pour garantir une mesure correcte des déformations.

Comme équipement complémentaire, une caméra haute vitesse pour capturer des images pendant l'étirement est nécessaire pour la mesure des déformations par corrélation d'images (DIC), un système de chauffage doit être conçu avec la possibilité d'une zone "libre" permettant le passage des faisceaux de rayons X.

Une attention particulière est accordée aux dimensions du dispositif final. Il doit pouvoir s'adapter sur la ligne SWING du synchrotron. L'étude de l'assemblage des vérins et la disposition des moteurs a été longuement réfléchi.

Après cette présentation des impératifs de conception, nous présentons plus en détail le dispositif mis au point et mettons en évidence l'originalité des solutions proposées.

## II.2 Banc de traction bi-axial

### II.2.1 Choix du matériel

Le système est constitué de quatre vérins électriques (Figure 14-A)a). L'utilisation de ce type de vérins plutôt que d'autres (vérins pneumatiques par exemple) a pour avantage la précision dans la commande en position (la répétabilité des vérins en position est inférieure à  $\pm 0,001\text{mm}$ ). De plus, ils ne nécessitent aucune maintenance régulière contrairement aux autres types de vérins.

Les vérins sont actionnés chacun par un moteur (Figure 14-A)b) avec une vitesse de rotation de 3400 tr/min et un couple maximal de 5,63 Nm . Les actionneurs électriques convertissent la rotation du moteur en mouvement linéaire. Ainsi, le moteur active la vis du vérin, et entraîne le mouvement de poussée ou de traction de la charge.

Ces moteurs de type servomoteur sont couplés à un contrôleur (Figure 14-A)c) qui va vérifier la position angulaire du moteur mais aussi la vitesse et l'accélération. Notre choix, c'est porté sur l'utilisation des servomoteurs car le pilotage de ces derniers est doux, ce qui est appréciable pour des déplacements à grande vitesse.

Au bout de chaque tige de vérin, est installé un capteur d'effort en traction/compression. Ces capteurs U93 de chez HBM (**Erreur ! Source du renvoi introuvable.**-B) sont des capteurs miniatures de faible dimension (35mm de diamètre et 30,5mm de hauteur) qui s'adaptent parfaitement à nos exigences et respectent le cahier des charges en matière d'encombrement du dispositif. Ces capteurs permettent une mesure rapide de la force. La force nominale du modèle choisi est de 10kN largement suffisant pour nos applications.

Les capteurs sont dotés de raccords par bride de chaque côté, qui permettent un montage simple sur notre dispositif. Il a quand même été nécessaire de fabriquer des pièces, pour assembler les capteurs aux vérins. Ces pièces sont présentées par la suite.

Pour une déformation du PET de l'ordre de 300%, on sait que la charge pour les dimensions d'éprouvettes choisies ne dépasse pas les 500 N. Il est à noter que ce dispositif est modulable et doit



pouvoir être utilisé pour d'autres applications que celle pour laquelle il a été conçu. C'est pourquoi, la capacité de charge du capteur de notre dispositif est de 10kN.

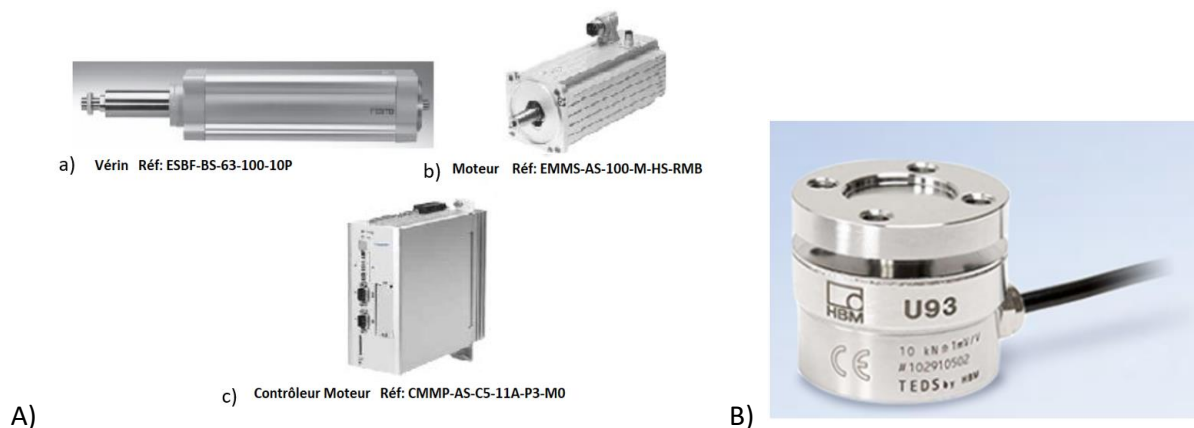


Figure 14 – A) Matériels Festo et leurs références, B) Capteur de force U93 HBM

Pour une déformation du PET de l'ordre de 300%, on sait que la charge pour les dimensions d'éprouvettes choisies ne dépasse pas les 500 N. Il est à noter que ce dispositif est modulable et doit pouvoir être utilisé pour d'autres applications que celle pour laquelle il a été conçu. C'est pourquoi, la capacité de charge du capteur de notre dispositif est de 10kN.

## II.2.2 Modélisation CAO

Dans cette section est présenté l'historique de la modélisation CAO du dispositif de traction bi-axiale de la Figure 15.

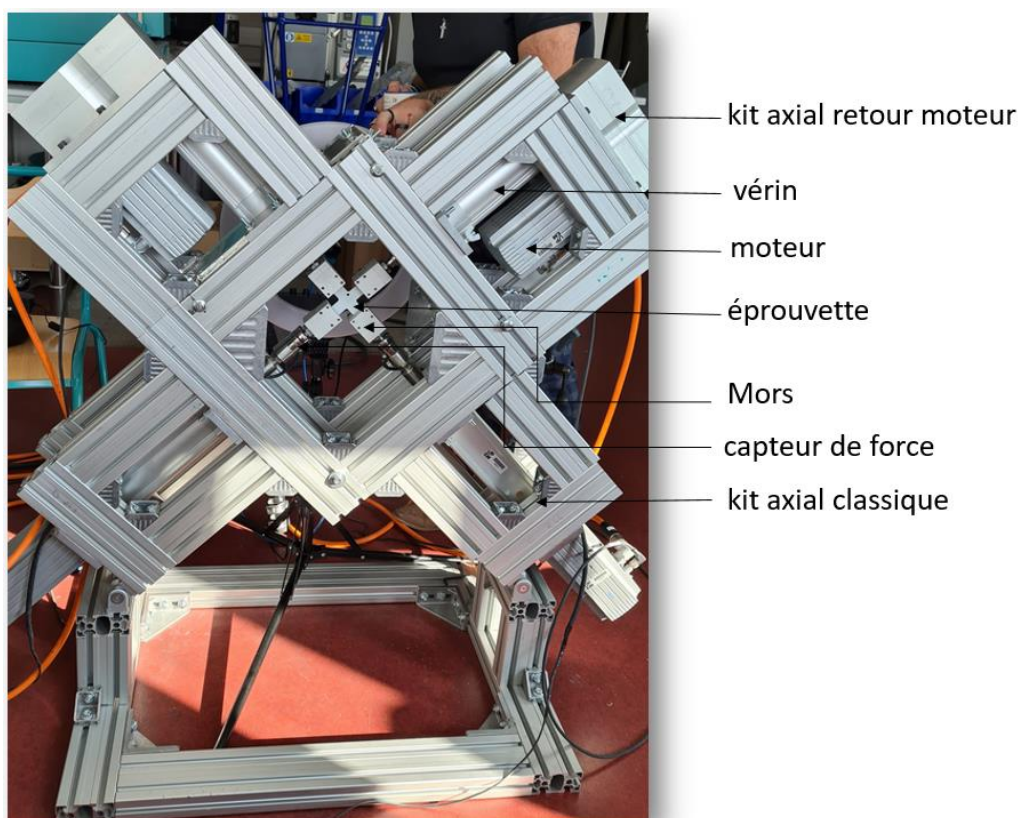


Figure 15 - Présentation globale du dispositif

Pour des raisons pratiques et pour répondre au cahier des charges, nous devons disposer d'un système d'éclairage et d'acquisition d'image d'un côté de l'éprouvette. De l'autre côté, une zone doit être accessible pour l'installation de l'éprouvette. Nous devons donc avoir accès aux deux faces de l'éprouvette.

Le cadre a été positionné verticalement. La position horizontale est à écarter, car la surface inférieure n'est pas visible. L'autre raison qui nous fait rejeter cette disposition est la possibilité d'étudier la microstructure par diffraction X sous rayonnement synchrotron. En effet, des zones « libres » et accessibles des deux côtés du dispositif sont nécessaires pour permettre le passage du faisceau de rayons X.

Après avoir réfléchi sur l'architecture générale du dispositif, on est passé à la modélisation sous logiciel Catia. Différentes étapes ont été nécessaires pour obtenir la version finale du dispositif. Nous présenterons ici, l'évolution de la modélisation, et le choix final.

Même si des détails plus précis seront abordés par la suite, une explication rapide est nécessaire pour justifier l'évolution des solutions. Le dispositif servira pour suivre l'évolution de la microstructure du matériau durant des essais de bi-étirage. Ces essais auront lieu au synchrotron Soleil de Paris-Saclay, sur la ligne SWING (Figure 16-a). Avant de soumettre une proposition pour une demande de temps de faisceau, nous nous y sommes rendus à plusieurs reprises pour connaître au mieux l'environnement où sera installé notre dispositif. Après avoir relevé certaines mesures, on s'est aperçu qu'on était très limité du point de vue dimensionnel, en hauteur notamment. Une contrainte forte était celle de la distance entre la position de l'échantillon et la hauteur maximale du dispositif qui doit être inférieure à 500mm. En effet, un obstacle positionné sur la partie supérieure de la ligne SWING qui ne peut être ni retiré ni déplacé, nous a contraint fortement sur les dimensions du banc de traction. Il a fallu prendre en compte cette contraintes dans nos choix de solution.

Dans cette partie, je vais décrire le cheminement de pensées et les différentes étapes pour arriver au résultat. On a tout d'abord conçu le dispositif de façon classique, à savoir un axe horizontal et un axe vertical, comme illustré dans la Figure 16b. Les quatre moteurs sont reliés aux vérins avec des kits axiaux où le moteur et le vérin sont dans le même axe. Avec toutes les précautions prises lors de la réflexion sur le choix du matériel et des pièces à utiliser, cela n'a pas permis de respecter le critère d'encombrement.

On a décidé de remplacer le kit axial du vérin supérieur par un kit axial de retour moteur comme on peut le voir sur la Figure 16-c. Ceci nous a permis de gagner plusieurs dizaines de centimètres, mais cela n'a pas suffi, la hauteur du dispositif était encore trop élevée.

Les options qui s'offraient à nous sur le choix de l'équipement se sont alors réduites, on a alors décidé d'incliner le banc de traction d'un angle de 45° et d'installer sur les deux vérins du dessus un kit axial retour moteur Figure 16-d. Avec cette disposition, le banc respecte tout juste la contrainte de dimension entre le centre de l'éprouvette et la hauteur maximale. Des explications plus détaillées seront données en section II.5.1 sur le choix qui a été pris pour gagner des centimètres supplémentaires

La modélisation retenue est celle de la Figure 16-d, où on dispose l'éprouvette orientée de 45° par rapport à la verticale.

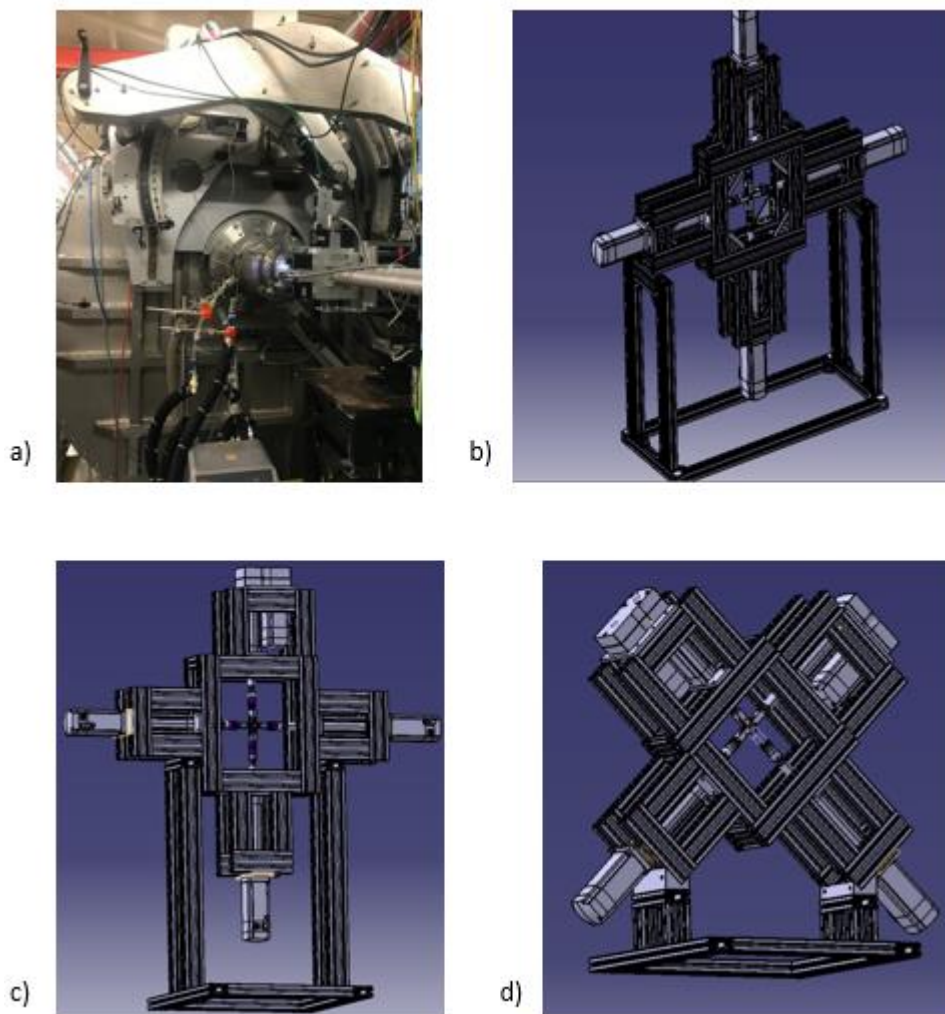


Figure 16 - Évolution de l'allure du dispositif de traction bi-axiale (a- première version, b- seconde version, c- troisième version validée).

On a parlé jusqu'ici de l'évolution du modèle CAO du banc de traction, en évoquant en particulier les différentes positions des vérins. Détaillons maintenant la modélisation des pièces qui vont servir à l'assemblage.

Le cadre est composé de profilés en aluminium que l'on verra en détail dans la partie conception du banc. Pour maintenir l'ensemble vérin-moteur dans le cadre, on a conçu des plaques qui, grâce à des écrous, seront fixées aux profilés. On distingue trois plaques différentes (Figure 17) suivant l'endroit où elles seront positionnées. Les plaques « coté vérin », au nombre de quatre, sont composées d'un trou où l'on vient insérer la partie avant circulaire du vérin. On distingue ensuite deux modèles différents de plaques « côté moteur », suivant le kit axial utilisé. Pour le kit axial parallèle (retour moteur) on a deux trous rectangulaires pour le vérin et le moteur. Et enfin la plaque « coté moteur » pour le kit axial simple (alignement moteur) avec un trou rectangulaire pour permettre une fixation au moteur.

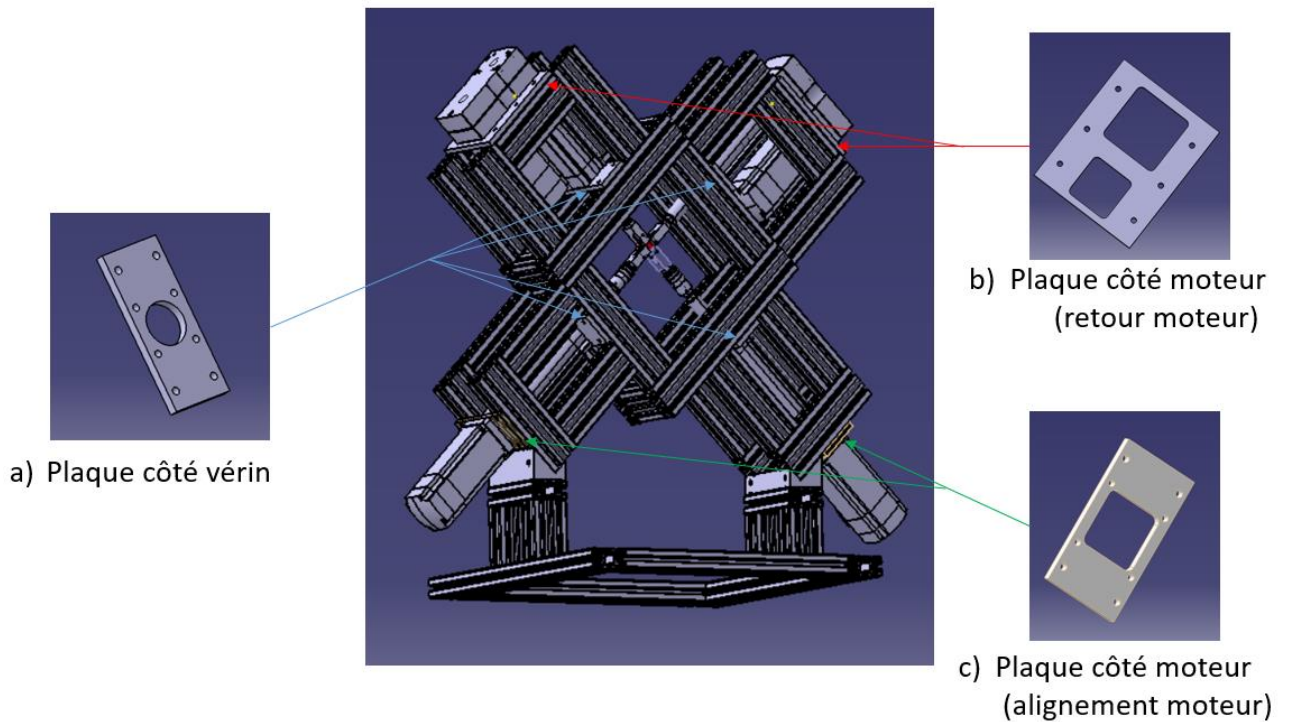


Figure 17 - Modélisation CAO des plaques utiles à l'assemblage du banc

Concernant le raccord des capteurs de force à l'extrémité des vérins, celui-ci se fait à l'aide de la pièce dont la modélisation est illustrée en Figure 18-a. Quant à la pièce de la Figure 18-c, elle est placée entre le capteur de force et le mors.

Le mors (Figure 18-b) qui permet de maintenir l'échantillon, a été modélisé en forme de « U ».

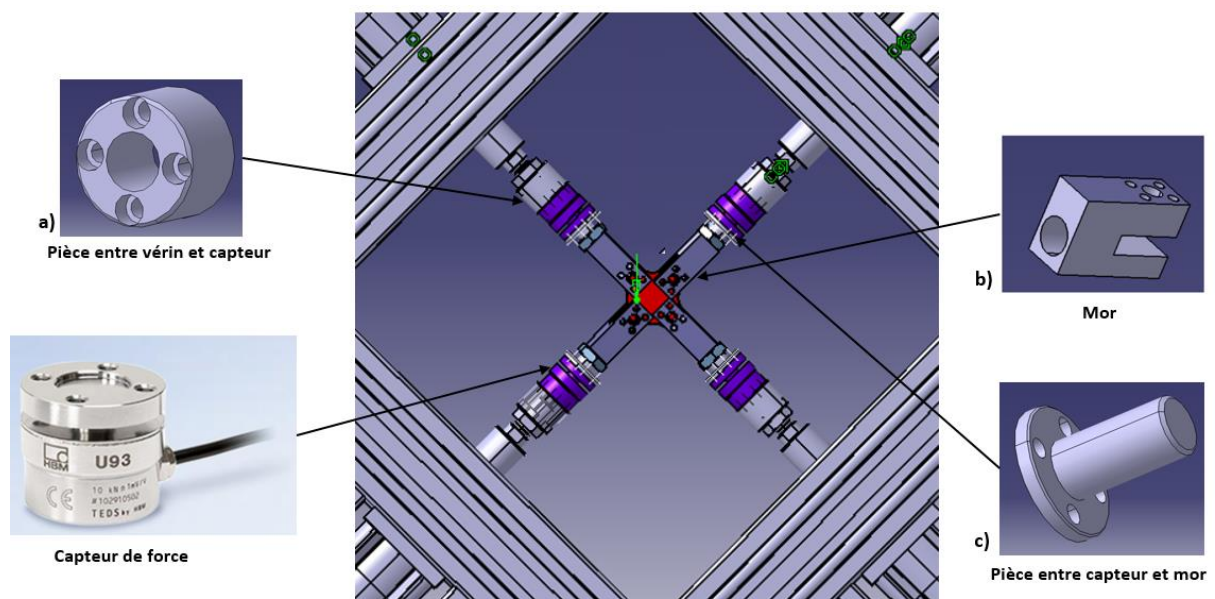


Figure 18 - Modélisation des mors et les pièces de maintien du capteur de force

On a présenté dans cette section la modélisation CAO du banc de traction dans sa globalité. Après avoir validé ce modèle, on a une vision précise du dispositif et on dispose des dimensions nécessaires à la réalisation.

## II.2.3 Fabrication du banc de traction

### II.2.3.1 Cadre et support

- Cadre

Le cadre est l'élément essentiel dans le fonctionnement général du dispositif. Il permet un positionnement précis des axes de traction afin que la sollicitation soit plane et les directions de chargement orthogonales.

Le cadre est constitué de profilés en aluminium de section 45x90 cm<sup>2</sup> découpés et usinés avec une fraiseuse à commande numérique mise à disposition par l'ESIPE et le CNAM (Figure 19). L'assemblage des profilés a permis de construire deux carrés de dimensions extérieures 48cm x 48cm auxquels sont fixés les quatre vérins, ainsi que huit structures en « U » de dimension 40cm x 26cm (Figure 20) pour garantir le maintien en positions des kits axiaux durant les essais. Ces structures ont été assemblées à l'aide d'équerres pour la rigidité globale et de la visserie.



Figure 19 – Usinage des profilés

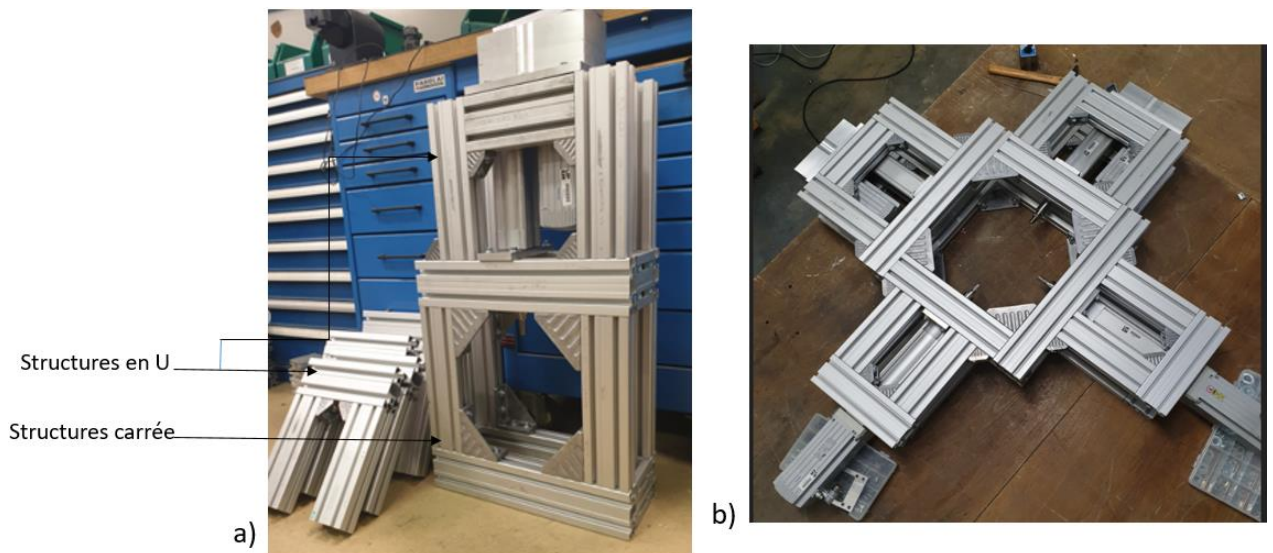


Figure 20 - a) Structure en U et carrée b) Assemblage des structures

Entre les deux carrés qui composent la structure du cadre, les trois types de plaques (en aluminium de 12 mm d'épaisseur, voir Figure 22) ont été fabriquées par Benoît Proust le technicien de l'ESIPE. Elles permettent la mise et le maintien en position des kits axiaux (vérins+ moteurs). Ces plaques sont fixées aux profilés avec à l'aide de lardons qui coulisent dans les rainures des profilés et maintenues en position par des vis. Les plaques présentent des trous oblongs qui nous permettent un réglage, utile à l'alignement des axes des vérins. Des cales supplémentaires ont été nécessaires pour un alignement précis. Elles viennent s'insérer entre les plaques et les profilés.

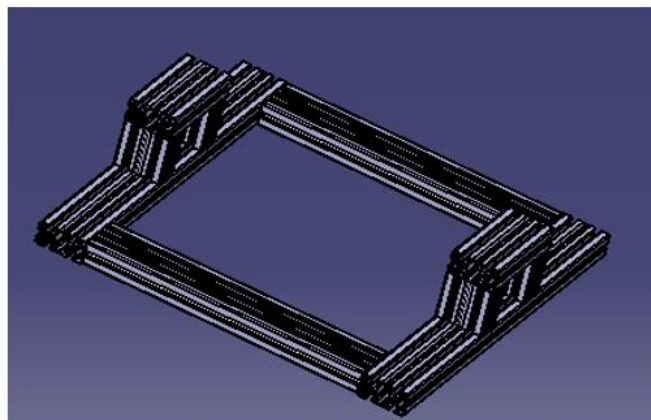
La dimension du cadre et la position des axes permettent l'étude d'éprouvettes « carrées » de cotés variables entre 25mm et 100mm. La zone utile du cadre est de plus ou moins 40mm x 40mm.

- Support

Le cadre qui maintient les vérins ainsi que les quatre moteurs est relié à un support pour garantir un positionnement vertical de l'éprouvette. Ce support est constitué des mêmes profilés en aluminium que ceux utilisés pour le cadre. Un rectangle de stabilisation de dimension 80x60cm<sup>2</sup> a été envisagé pour éviter le basculement du banc de traction.

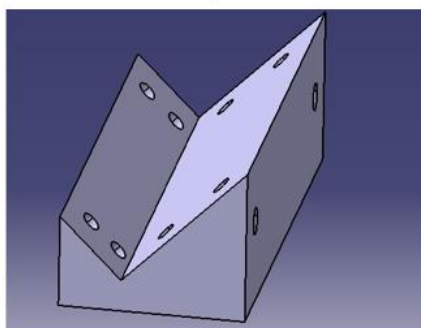
Pour relier le support au cadre, on a tout d'abord opté pour la fabrication d'une pièce qui a servi à la modélisation présentée dans la section précédente. Au moment du passage à la fabrication, on s'est rendu compte de la complexité de l'usinage de la pièce (Figure 21). En effet, sur les fraiseuses CN auxquelles nous avons accès, la fabrication aurait nécessité la réalisation de montage d'usinage complexe à cause de la position des alésages sur des plans inclinés. C'est pour cela que nous avons opté pour l'utilisation de pièces articulées RS PRO (Figure 25). Celles-ci permettent un raccord direct sur les profilés mais offrent une faible accessibilité pour le serrage au niveau de l'articulation. Malgré cela, nous avons adopté ce moyen de raccord.

## Support



*Deux options de fixation du support*

Pièce à fabriquer



Pièce compliqué et prend du temps à la fabrication

Achat d'articulation



Pièce facilement disponible mais difficile à serrer

*Figure 21 - Support et différents types de raccord*

L'encombrement total de la machine une fois le banc équipé est d'environ 1,2m de hauteur et de 1m de largeur.

### II.2.3.2 Les mors de maintien d'échantillons

La forme et la configuration des mors est importante pour des essais réussis. Au départ, on a réalisé des mors en forme de « U » (Figure 22-a) de dimension  $2 \times 5,5 \text{ cm}^2$ . Une mauvaise conception qui n'a pas résisté au serrage lors du placement de l'échantillon. Une fissure est apparue sur l'un des quatre mors au bout du 10<sup>e</sup> essai. Une seconde forme a été imaginée en forme de « L » de même dimension que la version précédente, avec une plaque qu'on vient serrer sur l'échantillon. Cette seconde idée a permis de réaliser des essais sans endommagement des mors. Mais un autre problème a été relevé, celui du glissement de l'éprouvette dans les mors lors du bi-étirage.

Une troisième conception a été proposée avec une dimension de mors plus large que les deux précédents (Figure 22-b) de dimension  $4 \times 5,5 \text{ cm}^2$  et surtout, une liaison par obstacle avec l'éprouvette via les vis qui nécessitent des alésages dans l'éprouvette. Cela permet un serrage de l'échantillon aux quatre extrémités de chaque bras de l'échantillon, un meilleur maintien lors de l'essai et un glissement nettement moins important. C'est cette dernière version qui nous a servis à effectuer les essais présentés dans les chapitres suivants (Figure 27).

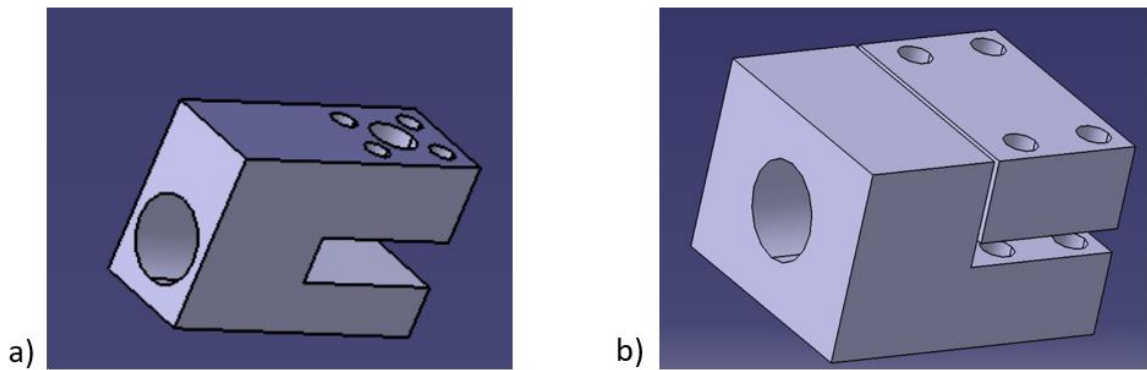


Figure 22 - Évolution de la forme des mors

Les mors ont été fabriqués à partir d'une plaque d'aluminium usinée à l'ESIPE. L'alésage visible sur la Figure 22 a été taraudé, ce qui permet d'insérer facilement la pièce reliant la cellule de force et le mors (Figure 18-c) dont l'arbre est fileté.

Un écrou supplémentaire a été placé pour permettre un meilleur serrage et un réglage de l'orientation des mors autour de l'axe des vérins. Ceci permet de garantir que les quatre mors soient dans le même plan et ainsi éviter une déformation de l'éprouvette avant même le début de l'essai (Figure 23).

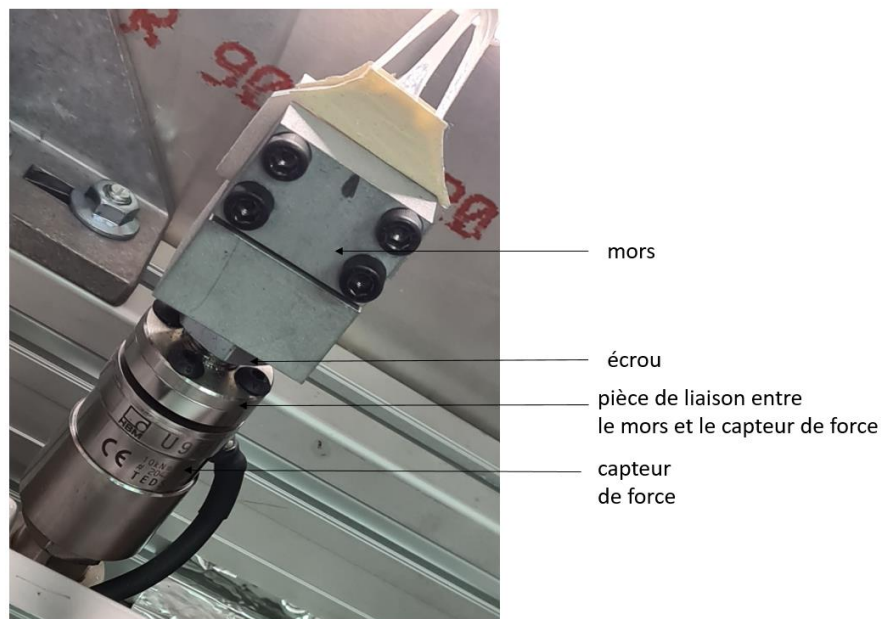


Figure 23 - Mors avec écrou de serrage

## II.2.4 Assemblage du matériel Festo

Les vérins présentés dans la Figure 14 sont montés sur les servomoteurs via des kits. Les servomoteurs sont liés aux contrôleurs moteurs. Le détail de l'assemblage est expliqué dans l'**annexe 1**

Les contrôleurs moteurs sont installés dans une armoire électrique ainsi que le boîtier d'alimentation qui permet de distribuer une alimentation électrique à l'ensemble du dispositif Figure 24-b. Une armoire métallique contient tout l'équipement. Un système de fixation a été mis en place pour permettre



d'accrocher des différents modules. Sur la partie supérieure de l'armoire, un bouton d'arrêt d'urgence a été fixé, qui est facilement accessible en cas de besoin Figure 24-a.

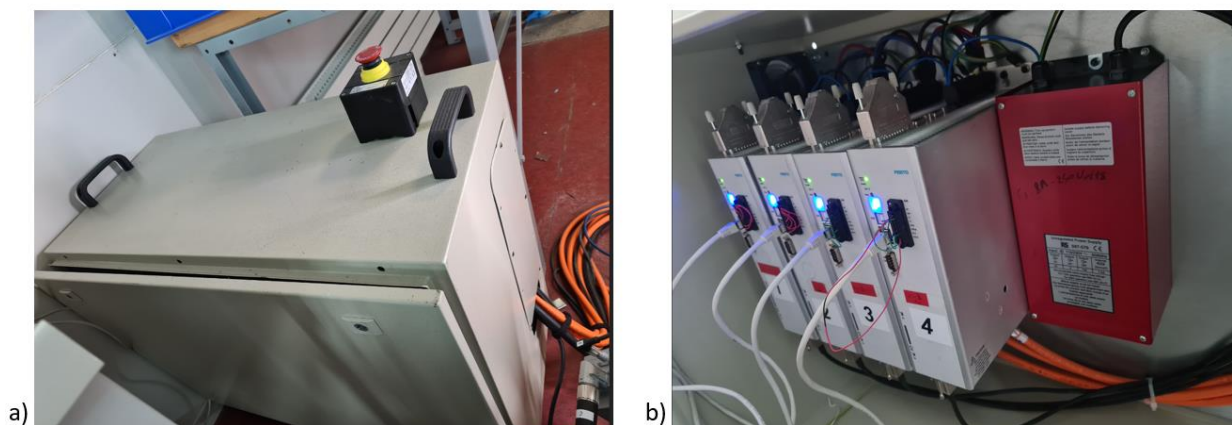


Figure 24 - a) Extérieur armoire électrique , b) Intérieur de l'armoire électrique

## II.3 Pilotage : Commande et programmation

Ce type de matériel peut être piloté de manière analogique ou numérique, le pilotage analogique nécessite des modules supplémentaires pour convertir des données analogiques en numérique cette méthode est assez simple à mettre en œuvre mais du fait de la conversion, il y a plus de risque d'erreur sur les données. On a fait le choix du numérique.

Le dispositif de traction est piloté par un logiciel de programmation LabVIEW installé sur un PC portable dédié. La communication entre le PC et le contrôleur moteur se fait via le protocole de communication Modbus TCP/IP via un câble Ethernet.

### II.3.1 Les différentes étapes jusqu'au pilotage

Le pilotage du dispositif de traction a nécessité un grand travail de développement sur des sujets qui ne sont pas le cœur de métier du laboratoire. Pour arriver à un pilotage avec LabVIEW il a été nécessaire de fonctionner par étapes :

#### Étape 1 : mouvement d'un vérin seul avec logiciel Festo Configuration (FCT) de chez Festo

Pour s'assurer du branchement et du montage correct du matériel, nous avons utilisé le logiciel FCT de chez Festo. Cela a permis le paramétrage et la mise en service efficace du système.

On a créé un projet pour chacun des quatre vérins en sélectionnant le modèle du moteur, du variateur, et des vérins ainsi que du kit axial. Après quoi nous avons pu détecter les différentes erreurs de câblage ou d'alimentation.

L'inconvénient de ce logiciel est de ne pas pouvoir connecter plusieurs variateurs en même temps, ce qui empêche d'effectuer des mouvements de plusieurs vérins simultanément.

## **Étape 2 : Pilotage d'un vérin seul avec le client modbus de chez Festo**

Nous avons comme objectif de piloter les vérins en modbus avec LabVIEW avec le protocole modbus. Pour comprendre comment fonctionne de ce protocole de communication modbus, on a décidé d'utiliser le client modbus FESTO. Il a fallu comprendre comment envoyer des commandes pour activer le variateur puis envoyer des instructions.

Pour communiquer en modbus TCP/IP, il est préférable d'associer au variateur des adresses IP du réseau. Puis les variateurs doivent être configurés en modbus TCP depuis le logiciel FCT.

La communication Modbus est basée sur le modèle client/serveur. Dans ce cas, le client sera le client modbus de chez Festo et le serveur sera le variateur.

Pour communiquer avec le variateur en Modbus, il faut lui envoyer des trames de 8 octets, chaque octet possède 8 bits. La première trame correspond aux "données de sortie" et la seconde trame aux "données d'entrée". Donc pour faire fonctionner le moteur, il faut envoyer la bonne combinaison sur la trame "données de sortie", l'autre trame sert à lire la réponse.

Cette étape nous a permis de comprendre le fonctionnement du protocole de communication modbus, mais ne nous permet pas de piloter les quatre vérins de manière simultanés.

## **Étape 3 : Pilotage des quatre vérins avec LabVIEW via protocole de communication modbus**

LabVIEW est un environnement de programmation graphique qui semble simple au premier abord, mais demande une grande maîtrise pour des applications complexes.

Le pilotage d'un banc de traction avec quatre axes, chacun contrôlé avec un variateur différent est une application assez compliquée.

Plusieurs formations du CNRS avec des développeurs LabVIEW ont été nécessaires pour comprendre et prendre en main le logiciel. Des contacts répétés avec les programmeurs de National Instrument m'ont également permis de me faire une idée sur la façon de monter ce projet.

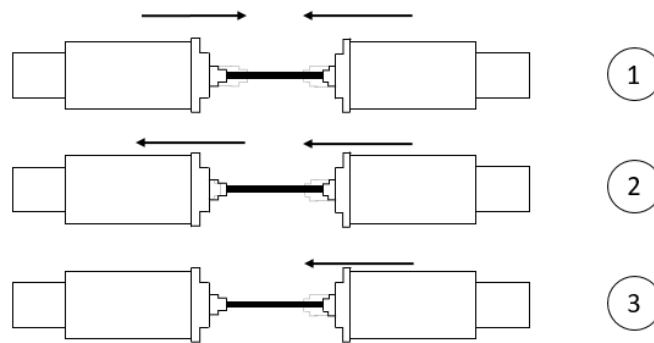
En utilisant les connaissances acquises lors des formations, j'ai pu réaliser un programme pour un vérin. Ce programme fonctionne comme pour le client modbus de chez Festo. Le variateur peut lire et écrire sur des trames de 8 octets, il a fallu envoyer les bonnes commandes pour établir une communication avec le variateur.

Une fois la communication avec un vérin achevée, il y a été assez simple de l'étendre à quatre vérins pour piloter intégralement la machine de bi-étirage.

### **II.3.2 Commande des axes**

Le pilotage du banc est maintenant possible. Un dialogue continu est assuré entre LabVIEW et le contrôleur moteur (variateur) grâce à la liaison Ethernet. Les déplacements et la vitesse des vérins sont ainsi connus à tout moment.

Les commandes des axes X et Y étant indépendantes, les déplacements imposés pourront être différents et toutes les combinaisons chargement/déchargement seront possibles ce qui laisse une grande variété d'essais réalisables comme on peut le voir dans la Figure 25.



- ① Déplacement symétrique des mors
- ② Déplacement des mors dans la même directions
- ③ Déplacement de chaque axe indépendamment des autres

Figure 25 - Déplacements possibles

Il existe deux modes de commande, en déplacement et en effort. Le programme créé nous permet une commande en déplacement qui est le meilleur choix pour les essais mécaniques. Pour effectuer une commande en effort, il est nécessaire de programmer différemment. Par manque de temps, nous nous sommes limités à un pilotage en déplacement uniquement.

Une grande variété de sollicitations est offerte à l'utilisateur. Il y a la possibilité d'imposer des chargements uni-axiaux ou bi-axiaux. L'utilisateur choisit les valeurs des déplacements et des vitesses imposées.

Une commande d'initialisation de la position des axes nous permet un positionnement automatique des axes avant la mise en place des éprouvettes. Cela permet d'avoir toujours les mors à la même position au début de chaque essai pour garantir une bonne répétabilité du positionnement des éprouvettes.

L'utilisateur a la possibilité d'interrompre l'essai à tout instant, via le programme LabVIEW. Si le contact entre l'ordinateur et le contrôleur est rompu, il est possible d'actionner le bouton d'arrêt d'urgence. L'arrêt normal s'effectue en fin de programme.

### II.3.3 Mesure des efforts

Le dispositif contient quatre capteurs de force. Ces capteurs ont été raccordés à des modules placés sur un châssis d'acquisition de données de National instrument (NI) (Figure 26).

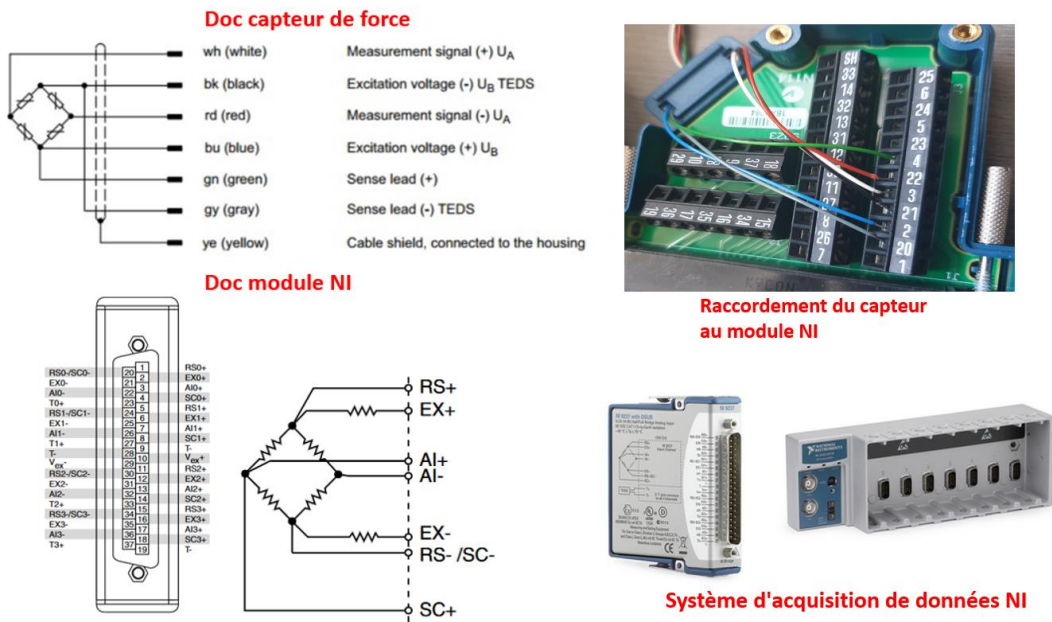


Figure 26 - Raccordement capteur de force au module d'acquisition de donnée NI

L'acquisition d'effort à chaque instant se fait via le logiciel LabVIEW. Le châssis d'acquisition est relié au PC avec un câble USB. Le programme consiste en la conversion de valeurs électriques en mV/V en une force en Newton. Ce programme d'acquisition de données est disponible directement dans le logiciel LabVIEW.

Pour s'assurer du bon paramétrage du programme, ainsi que de la justesse du capteur, on a décidé de réaliser un essai de compression sur le capteur et comparer la valeur de force imposée à la valeur de force obtenue avec le capteur (Figure 27). Après cette vérification, on a pu procéder au montage des capteurs dans le banc de traction.

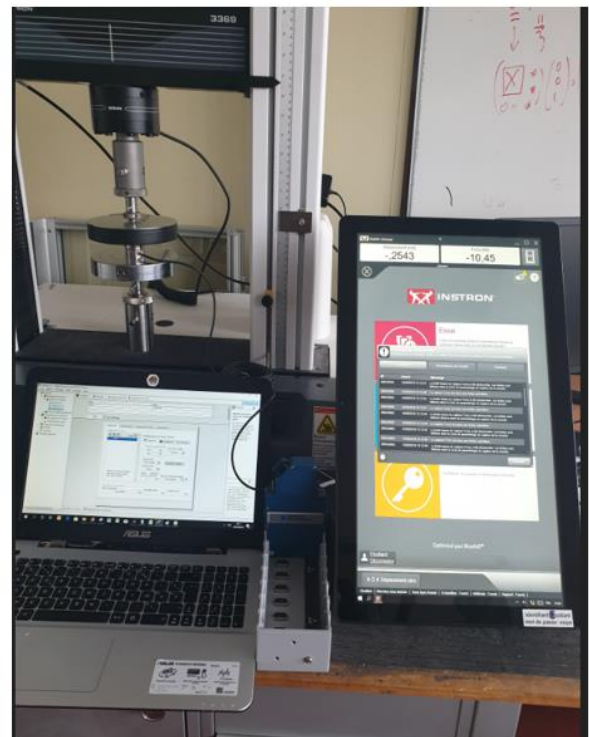
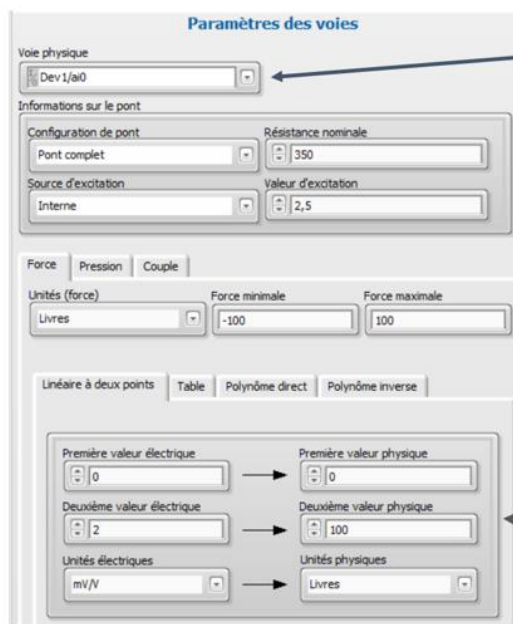


Figure 27 – Essai de compression sur le capteur de force avec une machine de traction/compression Instron

## II.4 Système de chauffe

Pour tester le comportement du polymère dans des conditions proches du procédé de fabrication des bouteilles, le banc bi-axial doit être équipé d'un système de chauffage qui permet d'atteindre des températures proches et supérieures à la température de transition vitreuse du PET ( $T_g = 80^\circ\text{C}$ ).

Cette partie a été développée par Thanh Tung Nguyen dans le cadre de sa thèse : il s'est chargé de cette partie du projet durant mon congé de maternité.

Le choix du type de chauffage a été longuement réfléchi. Il était naturel de penser au système de chauffe utilisé dans l'industrie avec des lampes infrarouges. Ce type de chauffage par rayonnement est idéal pour porter les éprouvettes à la température voulue, rapidement et de manière uniforme (Figure 28-a). Cette idée a vite été écartée car elle ne convient pas à l'étude de la microstructure in-situ. Il nous fallait un système de chauffe facilement démontable pour nous permettre de réaliser un maximum d'essais au synchrotron. De plus, il faut pouvoir être capable d'installer les éprouvettes sans difficulté.

Une seconde idée était l'installation d'un boîtier chauffant (Figure 28-b). A l'usage, il s'avère que ce type de produit n'a pas la puissance suffisante pour réguler la température qui ne dépassait pas les  $70^\circ\text{C}$ . De plus, ce système fonctionne avec un ventilateur dont l'installation en façade, en plus du boîtier est trop encombrante pour notre enceinte.

On s'est alors penché sur l'utilisation d'un pistolet thermique (Figure 28-c). Cette méthode de chauffe est celle qui convient le mieux à notre application. Le pistolet est facilement maniable, il peut être installé et désinstallé de manière très simple et rapide. Il peut chauffer l'air et l'éprouvette à des températures élevées, au-delà de  $T_g$ . Le pistolet thermique utilisé possède une puissance de 3400 W avec un débit maximal d'air chaud de 800 l/min avec une température pouvant aller jusqu'à  $300^\circ\text{C}$ .

Le pistolet est finalement le moyen le plus pratique, d'une installation simple et qui permet de chauffer l'échantillon assez rapidement aux températures souhaitées.



Figure 28 - Différents systèmes de chauffe

Afin de constituer une enceinte fermée, des plaques isolantes ont été installées autour du cadre central de la machine. Une plaque d'aluminium isole la face arrière et une plaque de verre est installée sur la face

avant. La plaque en verre nous permet d'avoir une visibilité de l'éprouvette durant l'essai à chaud, afin d'installer une caméra et de suivre l'évolution de la déformation par exemple. L'enceinte n'est pas parfaitement « fermée », des fuites d'air sont possibles. Les plaques isolantes sont simplement vissées aux profilés auxquels on a ajouté un ruban adhésif thermique.

Le pistolet thermique est inséré dans un trou de la plaque arrière (en aluminium) réalisée avec la machine à découpe jet d'eau de l'ESIPE. De l'autre côté de la plaque, un déflecteur (Figure 29-b) a été conçu. Le principe du chauffage par convection est de réchauffer l'air. L'air chaud plus léger remonte à la surface, le déflecteur sert ici à diriger la chaleur du pistolet vers la partie inférieure de l'enceinte. Ainsi on assure une répartition de la chaleur homogène dans l'ensemble de l'enceinte et on évite de chauffer une partie de l'éprouvette plus qu'une autre.

Comme équipement complémentaire, une caméra infrarouge (IR) FLIR B250 est utilisée pour mesurer le champ de température sur l'éprouvette. La longueur d'onde de la caméra est située dans la plage de 7,5 à 13  $\mu\text{m}$ . Une fenêtre au centre de la plaque en aluminium permet de suivre l'évolution de la température dans l'échantillon avec la caméra thermique. On dispose également de thermocouple qu'on fixe sur l'échantillon. Les thermocouples nous ont servis principalement pour l'étude préliminaire de réglage et pour s'assurer du bon fonctionnement de la caméra infrarouge. Une étude de l'évolution des températures des mors et aussi de différents endroits de l'éprouvette, a été faite pour plusieurs puissances de chauffe du pistolet et plusieurs géométries de déflecteur. La meilleure solution a été retenue et ses performances sont publiées dans Luo *et al.* [60].

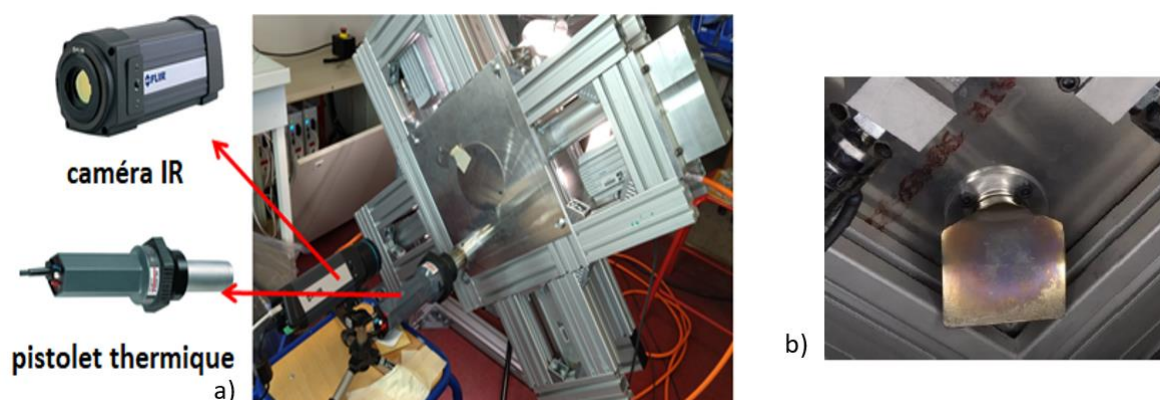


Figure 29 – a) Vue de l'arrière de la machine avec installation du pistolet thermique et camera IR, b) face interne de la plaque en aluminium avec déflecteur

Il est à noter que, lors du chauffage de l'enceinte, l'ensemble de l'équipement à l'intérieur de l'enceinte chauffe également. En particulier les mors et les pièces circulaires qui maintiennent les capteurs de force. L'aluminium qui compose ces pièces subit une dilatation, cette dilatation n'affecte pas l'échantillon étudié. En effet, la dilatation provoque une légère compression de l'échantillon qui, compte tenu de la fine épaisseur de la zone testée, fléchit légèrement sans générer d'effort. On peut facilement corriger ce défaut de planéité avant le démarrage effectif de l'essai, on verra un exemple plus concret dans le Chapitre III .

Cette enceinte fermée constituée d'une plaque en verre est utilisée uniquement au sein du laboratoire. Pour les essais effectués au synchrotron, la plaque de verre qui n'est pas adaptée à l'étude envisagée est remplacée par une seconde plaque d'aluminium et une ouverture dans la zone centrale pour approcher le

nez de mesure au plus près de l'éprouvette. On présente cette autre enceinte dans la section sur l'adaptation de la machine à la ligne SWING du synchrotron SoleiL (voir paragraphe 1.5.2).

## II.5 Montage pour la ligne SWING du synchrotron

### II.5.1 Différentes configurations du banc de traction

Le banc de traction bi-axiale a été pensé principalement pour l'étude de l'évolution de la microstructure sur la ligne SWING durant un essai de bi-étirage. Il a fallu concevoir une machine qui s'adapte parfaitement aux conditions et aux contraintes du synchrotron, et principalement à l'environnement et à l'espace disponible sur la ligne SWING. Comme on a pu le voir en section 1.2.1, plusieurs modélisations CAO ont été nécessaires pour trouver une solution qui respectant notre cahier des charges.

Le dispositif de bi-étirage s'installe sur une table élévatrice réglable de sorte à avoir le centre de l'échantillon face au faisceau. La distance entre le centre de l'éprouvette et la hauteur maximale du dispositif ne doit pas dépasser 500mm. Avec la modélisation CAO présentée précédemment cette distance est d'environ 493mm, ce qui nous donne 7mm de marge lors de l'assemblage et du montage (Figure 30). Cette marge d'erreur nous a semblé trop faible, aussi nous avons proposé une modification spécifique pour les essais sous synchrotron.

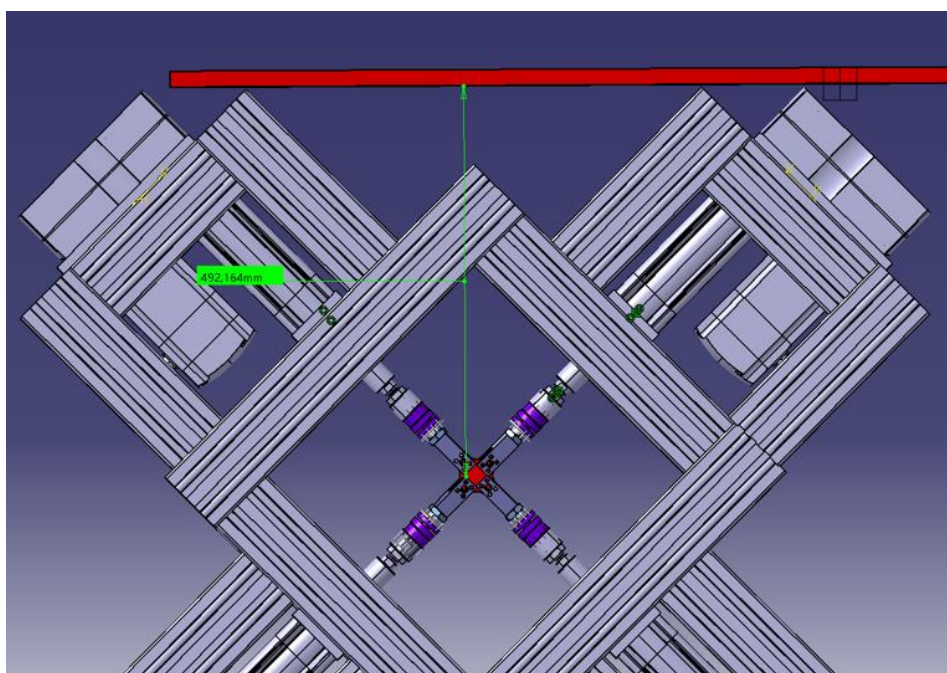


Figure 30 - Hauteur du dispositif à la limite

En résumé, nous avons réalisé deux configurations de la machine :

- Une première configuration dédiée à l'utilisation au sein du laboratoire avec les quatre capteurs de force qui a été présenté jusqu'ici (Figure 31-a). Cette configuration sera utilisée dans le cadre de l'étude des propriétés élastiques du PET dans le chapitre 3, ou pour la réalisation d'essais dans des conditions proches du soufflage présentée dans le chapitre 4.

- Une seconde configuration dédiée exclusivement au synchrotron, où l'on supprime les deux capteurs de force des vérins supérieurs (après avoir vérifié que lorsque le centre est bien immobile les forces dans les deux capteurs en vis-à-vis sont identiques). Cela nous permet de gagner une vingtaine de centimètres supplémentaires (Figure 31-b). Avec la suppression de ces capteurs, on obtient un jeu suffisant pour le montage de la machine sur la ligne SWING.

Pour passer d'une configuration à l'autre, nous devons remplacer le carré central. Dans le premier cas, la dimension du cadre central est de 47x47cm<sup>2</sup> et de 55x55cm<sup>2</sup> pour le second. Ce changement nécessite une journée pour une personne à cause du réglage de l'alignement des axes.

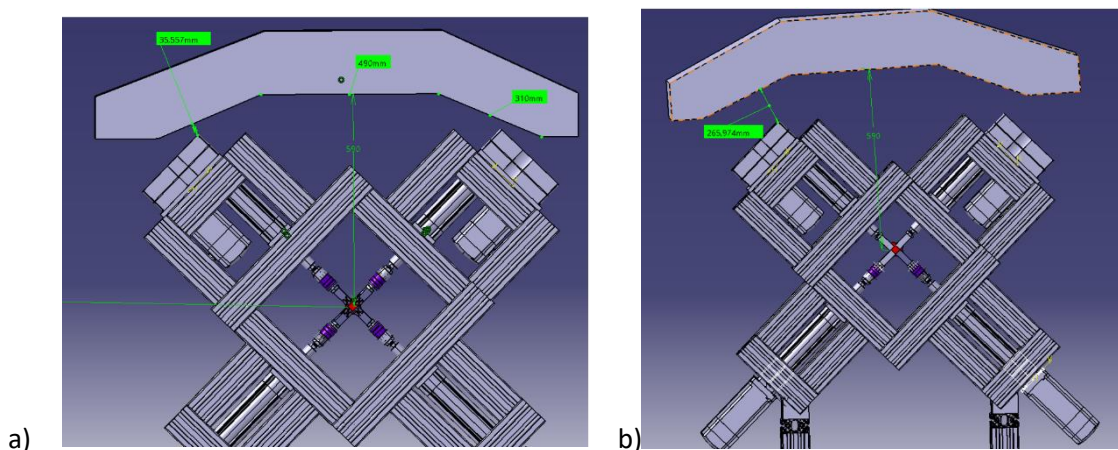


Figure 31 - a) Configuration avec 4 capteurs de force (en violet sur l'image), b) Configuration avec 2 capteurs de force

## II.5.2 Équipement et enceinte fermée pour le système de chauffe

La version de l'enceinte thermique a aussi dû être adaptée à l'environnement du synchrotron pour effectuer des mesures par rayon X. D'un côté du dispositif, l'enceinte reste constituée de la même plaque d'aluminium présentée dans la section 1.4, qui nous permet d'insérer le pistolet thermique, avec une trappe qui permet à la fois de surveiller la température mais aussi de laisser passer le faisceau à rayon X. En revanche, de l'autre côté, la plaque en verre a été remplacée (i) par une plaque en aluminium avec un renforcement dans la zone centrale (Figure 32-a) permettant de positionner le récepteur de rayon X au plus près de l'éprouvette, de plus (ii) puisque le verre ne permet pas la transmission du rayonnement X, le verre a été remplacé par une feuille de Kapton transparente aux rayons X :

- (i) Sur la ligne SWING, pour l'étude des petits angles (SAXS) il faut que l'échantillon soit au plus près du récepteur. Suite à l'encombrement de la ligne, le positionnement du dispositif de traction est limité suivant l'axe du faisceau. On dispose d'une rallonge en forme de cône (Figure 32-a) qui permet de se rapprocher au plus près de l'échantillon. Pour avoir le cône au plus près de l'échantillon, on a mis au point une structure avec un enfoncement carré dans une zone centrale qui permet le passage du cône.
- (ii) Une feuille de Kapton est placée entre l'échantillon et le récepteur afin de fermer l'enceinte et protéger le récepteur d'une trop forte augmentation de température.



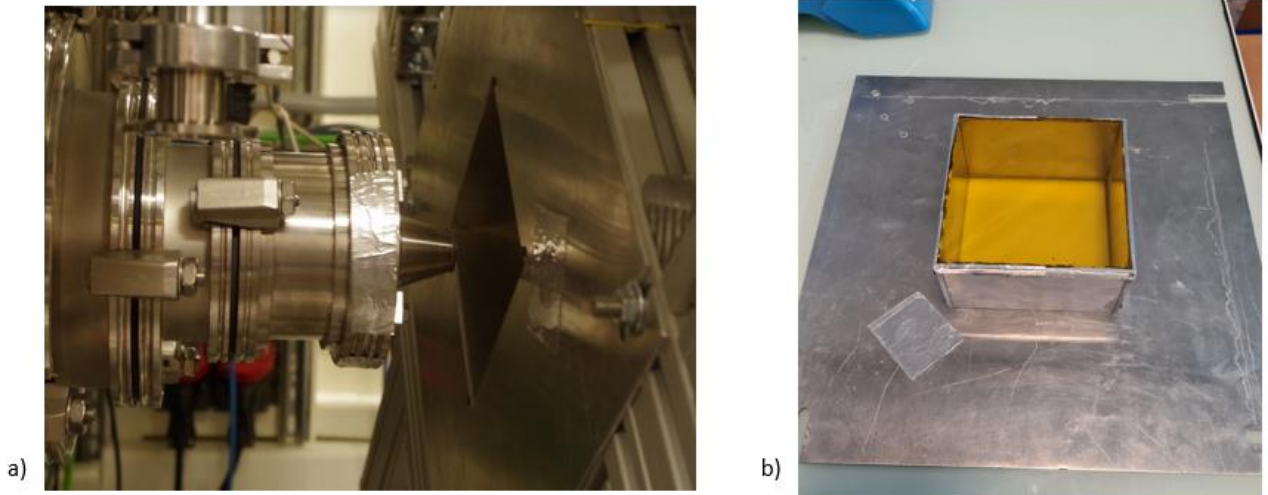


Figure 32 – a) Rallonge en forme de cône qui permet de se rapprocher au plus près de l'échantillon, b) Support arrière du dispositif avec feuille de kapton

### II.5.3 Principe des essais sous rayon X

Lors des essais in-situ, les éprouvettes sont chauffées à la température souhaitée puis la plaque de la face avant de l'enceinte est retiré pour permettre le passage du faisceau. La température est suivie par la caméra thermique installée proche du faisceau de sorte à être face à l'éprouvette. Le faisceau de rayons X arrive perpendiculairement à l'échantillon qui est installé sur le banc de traction bi-axial. Puis l'éprouvette est étirée pendant que le faisceau frappe l'échantillon. Les clichés de diffraction sont capturés toutes les 0,06 secondes avec une caméra de 1083 pixels x 1035 pixels, et chaque pixel a une taille de 75  $\mu\text{m}$  (Figure 33).

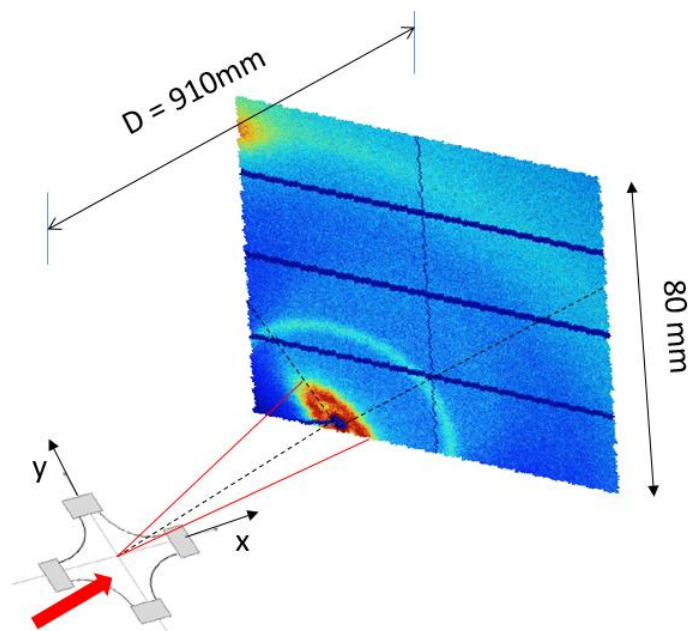


Figure 33 – Principe des mesure SAXS sur la ligne SWING

Le récepteur est positionné à une distance de 910mm de l'échantillon. Avec cette distance, on calcule un angle de diffusion maximal de  $2\theta \approx 2,5^\circ$  (Figure 34) pour une longueur d'onde  $\lambda = 1,45\text{\AA}$ . Ce qui correspond

à une mesure SAXS. Pour effectuer des essais WAXS, l'échantillon doit être plus proche du récepteur. L'encombrement actuel du dispositif ne nous permet pas de réaliser des tests WAXS. Des modifications du dispositif de traction sont en cours pour permettre ces mesures.

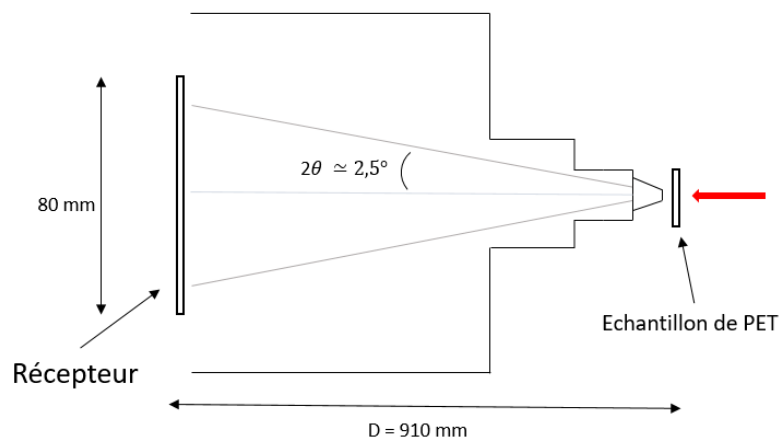


Figure 34 – Dimensions du montage

## II.6 Conclusion

Dans ce chapitre, la conception, la fabrication et la mise au point d'une machine de traction bi-axiale ont été présentées. Ce banc possède des caractéristiques de vitesse et de température qui se rapprochent des conditions de bi-étirage lors de la mise en forme des bouteilles en PET par étirage soufflage. Notamment, une attention particulière a été apportée aux grands déplacements et aux grandes vitesses de déformation, ainsi qu'à la régulation thermique. Toutes les étapes de la conception et de fabrication ont été réalisées au sein du laboratoire ; et je me suis chargée en autonomie de la partie pilotage de la machine.

Ce projet a nécessité environ 18 mois de travail du fait des différentes difficultés rencontrées. Ces difficultés sont dues d'une part au manque de compétences techniques au sein du laboratoire MSME dont le cœur de métier est la modélisation et la simulation mais aussi à des problèmes techniques électriques ou informatiques rencontrés. De plus, la rénovation du bâtiment dans lequel se faisaient ce montage a fortement impacté le fonctionnement des laboratoires et rallongé le temps de mise au point du banc de traction.

Le banc a néanmoins été validé et plusieurs séries d'essais ont pu être réalisés durant la seconde partie de la thèse. Ce dispositif peut être utilisé dans plusieurs domaines de la rhéologie du fait de ces caractéristiques. La possibilité de piloter chaque vérin indépendamment les uns des autres permettent d'effectuer des essais de cisaillement sur des élastomères tel que le caoutchouc par exemple. Le système de chauffe offre la possibilité d'étudier la réponse thermique d'un matériau. On peut envisager une multitude d'essais mécaniques avec ce dispositif. Différentes études sont présentées dans les chapitres suivant mais nous sommes loin d'avoir exploité toutes ses possibilités. L'encombrement réduit du dispositif a permis de l'adapter sur la ligne SWING du synchrotron pour la caractérisation microstructurale et offre la possibilité d'envisager d'autres manipulations sur de grands équipements.

## Chapitre III

# Réalisation d'essais bi-axiaux non équilibrés (CW et NEB)

Le procédé de soufflage par bi-orientation génère au sein de la préforme soufflée, des étirages longitudinaux et circonférentiels de vitesses de déformation et d'élongations différentes suivant ces deux directions. En conséquence, il est utile d'étudier l'influence de cette différence sur la manière dont la microstructure s'organise et sur le comportement ainsi généré qui est anisotrope comme le montre l'étude des propriétés induites [61] où seuls les tests bi-axiaux équilibrés sont présentés.

Par ailleurs, Luo *et al.* [42] [44] au laboratoire MSME, ont proposé un modèle visco-hyper élastique (VHE) qui a été progressivement enrichi et qui prend en compte l'anisotropie qui se développe durant le soufflage. L'identification de ce modèle à 11 paramètres se fait en minimisant la différence entre la simulation par éléments finis et les courbes de expérimentales issues d'essais bi-axiaux. Dans [61] cette identification se fait sur la base d'essais bi-axiaux équilibrés, ce qui ne permet pas de différencier le rôle des paramètres isotropes de ceux anisotropes. Disposer de résultats de tests non équilibrés rendrait l'identification plus pertinente.

Dans [61] nous avons développé et justifié une procédure d'identification et l'objet de ce travail est double : (i) étendre la méthode d'identification aux essais non équilibrés, c'est-à-dire à des essais constant width (CW) (Figure 35-a) et des essais bi-axial non équilibrés (NEQ) (Figure 35-b) et (ii) affiner l'identification du modèle VHE.

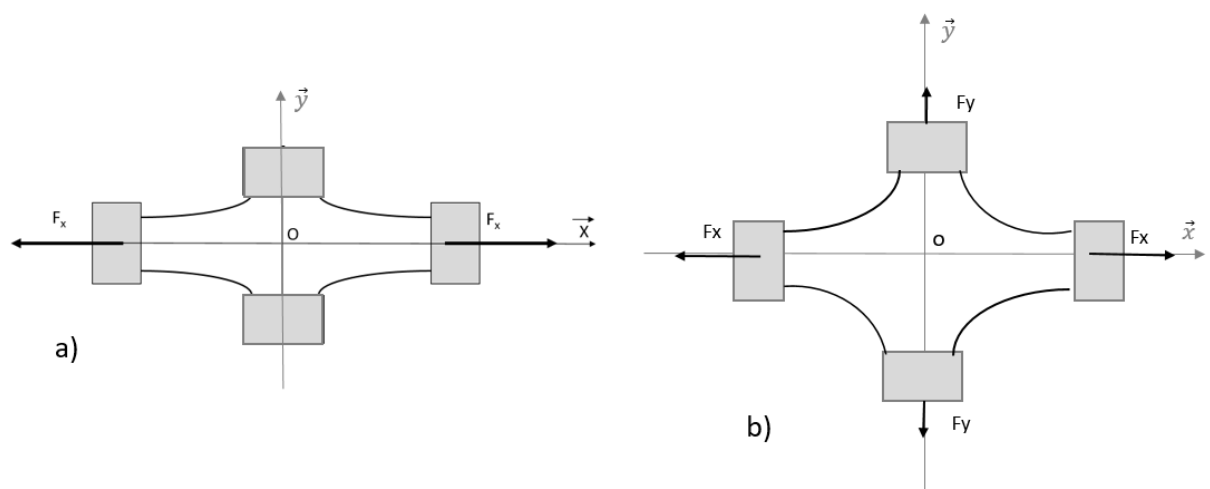


Figure 35 - a) Essai Constant Width (CW), b) Essai bi-axial non équilibré (NEQ)

### III.1 Introduction : dépouillement d'un essai bi-axial

S'inspirant de la technique de dépouillement de l'essai équi-biaxial déjà utilisée dans [45] [43], nous proposons une adaptation au dépouillement des essais bi-axiaux non équilibré. Le problème consiste à identifier, d'une part, les déformations au centre de l'éprouvette. Ces déformations sont quasiment dirigées suivant X dans un essai « constant width » (CW) puisque le déplacement suivant Y est bloqué. Un autre cas est aussi testé : un essai bi-axial proportionnel mais non équilibré (NEB). Proportionnel indique que le démarrage et la fin de la traction commencent et s'arrêtent en même temps dans les deux directions. Cela implique aussi que si le déplacement suivant X vaut U et celui suivant Y vaut U/2 alors la vitesse des vérins sera de V et de V/2 respectivement. Cette mesure de déformation est réalisée par analyse d'images.

D'autre part, il convient de déterminer deux contraintes  $\sigma_x$  et  $\sigma_y$  au centre de l'éprouvette en fonction des forces  $F_x$  et  $F_y$  mesurées. Dans la thèse de Thanh Tung Nguyen [44] il a été montré que pour un essai bi-axial équilibré (EB) les allongements relatifs normaux aux diagonales  $\varepsilon_{nn}$  restaient uniformes le long de la diagonale [AB] (Figure 36) et permettaient de considérer que la contraintes  $\sigma_{nn}$  pouvait se calculer de manière simple par le ratio  $\sigma_{nn} = F/S$ . Les détails de ces calculs seront présentés dans la section III.4. L'objectif de cette section est de vérifier si cette approche peut s'étendre à tous les états bi-axiaux.

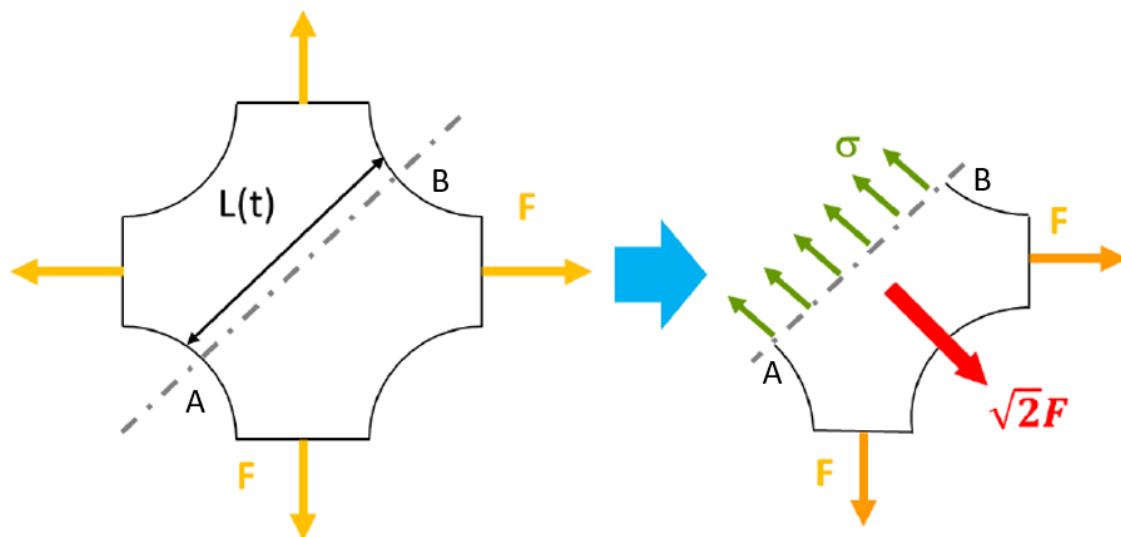


Figure 36 - Contrainte le long de la diagonal [AB] [62]

Pour cela il est nécessaire (i) de réaliser des essais CW et NEB dans des conditions de vitesse et de température identiques à un des essais EQ réalisé par Thanh Tung ; (ii) de dépouiller les déformations afin de vérifier leurs distributions suivant les diagonale (avec l'orientation de ces dernière qui évoluent au cours du temps alors qu'elles restaient inclinées à environ  $45^\circ$  en EQ) et ; dans le cas où l'étape (ii) est satisfaisante ; (iii) de trouver les relations entre les forces et les contraintes et les évaluer expérimentalement. Adapter la méthode afin d'obtenir non pas une mais deux relations pour déterminer les deux contraintes. La méthode pourrait ainsi être généralisée à tous taux de bi-axialité comme c'est le cas lors du soufflage où l'élongation longitudinale est différente de l'élongation circonférentielle.

## III.2 Protocole expérimentale des essais bi-axiaux non équilibrés (CW et NEB)

### III.2.1 Fabrication des éprouvettes de traction bi-axiales optimisées

Pour se rapprocher de l'élongation des préformes pendant le soufflage en industrie, on doit pouvoir étirer bi-axialement le centre de l'éprouvette sans endommager les bras. Une étude d'optimisation de la géométrie a été entreprise par T.T. Nguyen afin d'avoir des déformations bi-axiales significatives au centre.

#### III.2.1.1 Injection de plaque de PET

**Matériaux :** Les granulés (Figure 38-a) utilisés proviennent de la société SIDEL qui est l'un des principaux fournisseurs de bouteilles dans le monde. On a utilisé du PoliPET™ 84SD qui est une résine PET de poids moléculaire élevé adaptée à la production de bouteilles.

**Paramètre d'injection :** Après avoir purgé et nettoyé la presse à injection, le PET a été séché à une température d'environ 150°C. Un taux d'humidité de 0,05 % est acceptable. Pour ne pas dépasser cette limite, le temps de séchage était d'environ 6h. Lors de l'injection des plaques de PET, un réajustement du réglage a été nécessaire au cours de la fabrication pour déterminer les paramètres qui permettent d'obtenir une plaque lisse transparente et sans bulle d'air. Pour une pression d'injection de 900 bar, à une vitesse de buse de 60 mm/s et une pression de maintien dans le moule de 400 bar on obtient des plaques correctes. La dimension du moule est de 125x125x4 mm<sup>3</sup>, la température de ce dernier a été fixée à 30°C. Ceci s'est effectué sur la presse à injection DK CODIM 175 du Centre de Ressources Mise en Œuvre des Polymères du PIMM avec la collaboration du technicien Paulo FERREIRA (Figure 37). La plaque une fois sortie du moule avec la présence de la section de carotte (Figure 38-b), celle-ci est ensuite découpée pour avoir les plaques prêtes à être utilisées (Figure 38-c).



Figure 37 - Presse à injection DK CODIM 175 du PIMM

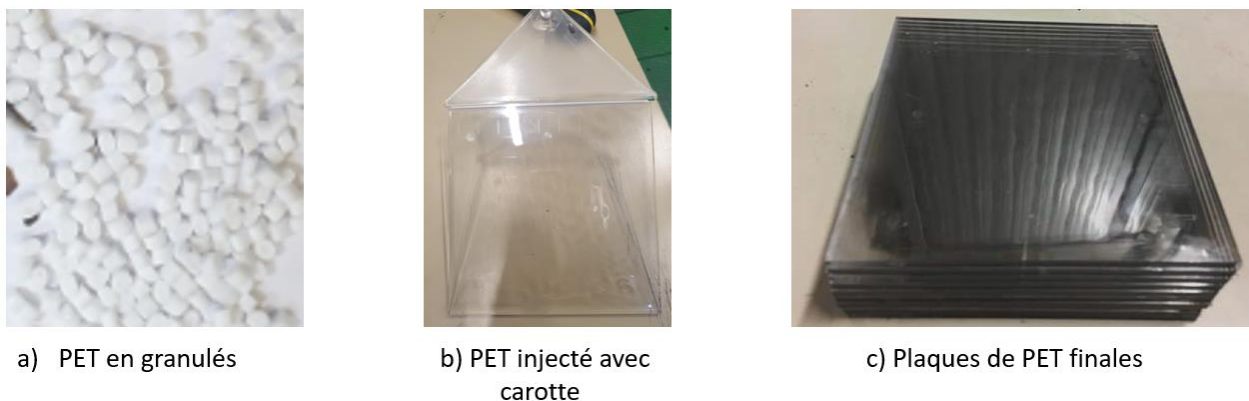


Figure 38 - PET: Des granulés aux plaques injectés

### III.2.1.2 Optimisation de l'éprouvette

La forme générale des éprouvettes a été définie, avec comme contrainte imposée l'utilisation du dispositif de traction bi-axiale présenté dans Chapitre II. La première version de l'éprouvette que l'on voit dans la Figure 39-a, ne permet pas une déformation suffisante de la zone centrale. L'éprouvette était tout simplement maintenue par serrage des mors. Du fait de l'épaisseur de l'éprouvette, des glissements trop importants empêchaient la déformation. Dans la version finale on a décidé d'utiliser les quatre vis de chaque mors qui font obstacle et évite les glissements.

Afin d'obtenir une zone centrale assez étendue soumise à des déformations plus fortes, nous avons envisagé d'affiner la zone centrale. De plus, les éprouvettes ont été marquées par des entailles à environ 45° des axes de symétrie, proche de la zone centrale (Figure 39-b). Les entailles ont pour but de faciliter la déformation centrale de l'éprouvette par un écartement des brins qui rend les bras assez souples.

Avec cette géométrie d'éprouvette, on atteint des déformations de l'ordre de 200% pour des éprouvettes chauffées à environ 100°C.

La géométrie de l'éprouvette a été obtenue avec une machine à découpe jet d'eau. Pour affiner la zone centrale, on utilise une fraiseuse rapide sur chaque face de l'éprouvette, puis l'éprouvette subit un polissage pour lisser la zone utile.

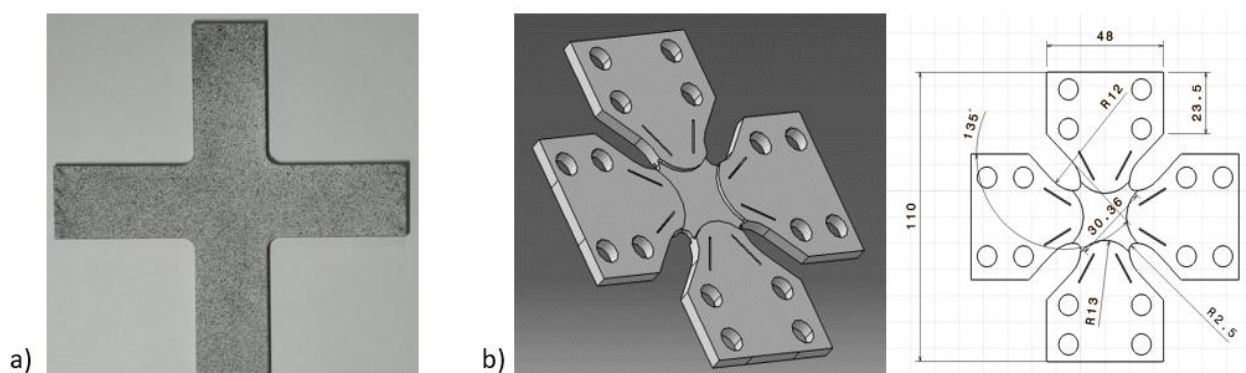


Figure 39 – Optimisation de la géométrie de l'éprouvette - a) première version de l'éprouvette de traction bi-axiale, b) modèle CAO de la version optimisée de l'éprouvette de traction bi-axiale avec dessin et dimensions.

### III.2.2 Essais bi-axiaux non équilibrés (CW et NEB)

Sur notre machine de traction bi-axiale nous avons réalisé deux séries d'essais, cinq essais CW et cinq essais NEB pour la répétabilité, en imposant une température  $T=100^{\circ}\text{C}$  et des vitesses des vérins  $v_x$  et  $v_y$  données dans le Tableau 2 pour CW, NEB et EB réalisé lors d'une étude antérieure.

Tableau 2 – Vitesses imposées durant les essais CW, NEB et EB

	Equi-biaxial	Constant Width	Bi-axial non équilibré
Vitesse $v_x$	100mm/s	100mm/s	100mm/s
Vitesse $v_y$	100mm/s	0mm/s	50mm/s

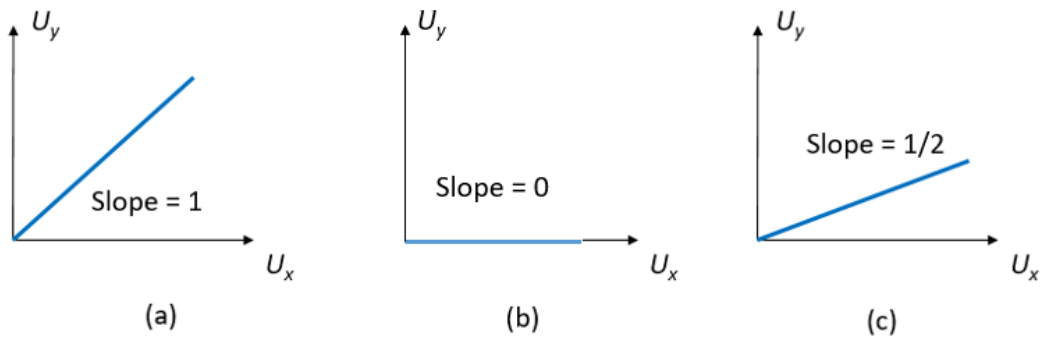
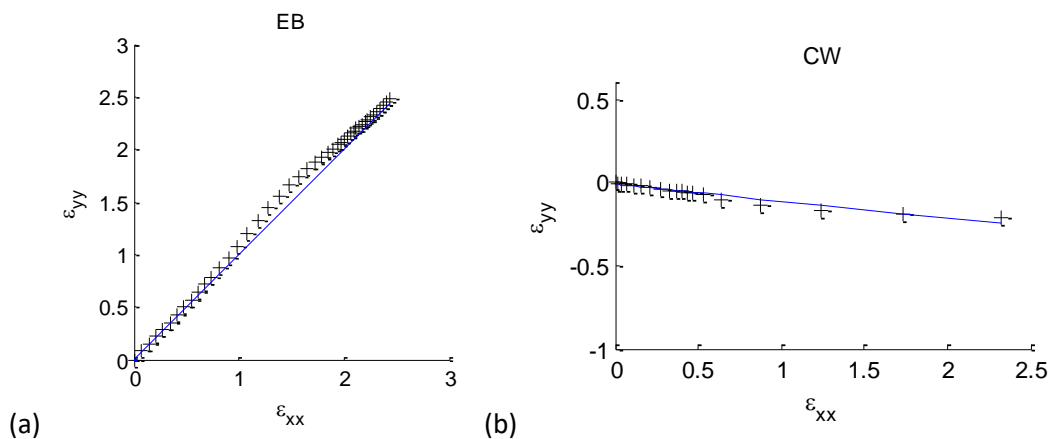


Figure 40 -Trois tests bi-axiaux, déplacements imposés aux vérins (a) bi-axial équilibré EB (b) « constant width » CW et (c) NEB

L'analyse d'images permet de mesurer localement les déformations au centre de l'éprouvette qui ont été préalablement recouvert de peinture blanche et d'un mouchetis noir. Ainsi on peut constater que les composantes des déformations  $\epsilon_{xx}$  et  $\epsilon_{yy}$  ne suivent pas exactement la forme imposée par les mors (Figure 40), notamment à cause de la déformation des « bras » de l'éprouvette qui s'étirent sous l'effet des contraintes. Les trois Figure 41 présentent ces déformations au centre de l'éprouvette pour les trois cas de charge avec la droite bleue qui représente l'interpolation linéaire de l'évolution de la déformation durant l'essai.



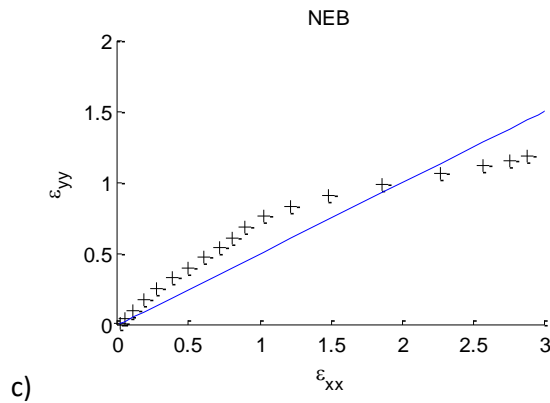
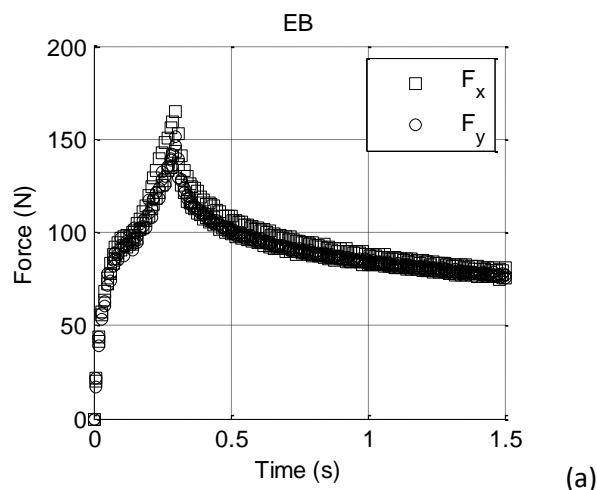


Figure 41 - Mesures des déformations au centre, (a) EB (b) CW et (c) NEB

Ainsi la droite qui caractérise EB est bien à 45° mais présente quelques fluctuations lors de l'essai qui sont dues au comportement du PET qui ne se déforme pas de manière totalement homogène à cause du durcissement structural induit par la déformation. En effet, si à cause d'une imperfection de l'éprouvette, la déformation part dans la direction X, le phénomène de durcissement va « ralentir » cette déformation et celle suivant Y va « rattraper » son retard. La droite CW est bien rectiligne mais n'est pas parfaitement verticale et indique que le matériau se contracte ( $\epsilon_{yy} < 0$ ) malgré l'absence de déplacement des mors dans cette direction. Cette compression est d'environ 25% qui est faible devant la déformation de plus de 230%. Pour le cas NEB, on retrouve les fluctuations observées en EB autour d'une droite de pente 0,5. Cependant ces fluctuations sont plus fortes. Les déformations au centre de l'éprouvette présentées sur la Figure 41 sont, aux erreurs expérimentales près, conformes aux conditions expérimentales illustrées dans la Figure 40.

Dans les trois cas, les forces relevées par les quatre capteurs attestent de l'équilibre des vérins 2 à 2. En conséquence seules deux forces,  $F_x$  et  $F_y$  sont représentées sur les graphiques. Sur la Figure 42, on observe que tous les essais EB, CW et NEB présentent un effet de durcissement durant la phase de traction. Cette phase de l'essai dure 0.5s et correspond à un déplacement de 50mm du vérin le plus rapide. Suit une phase de relaxation durant laquelle on observe une diminution des deux forces qui ne semblent pas converger vers 0. Cela indique certainement une élasticité résiduelle.





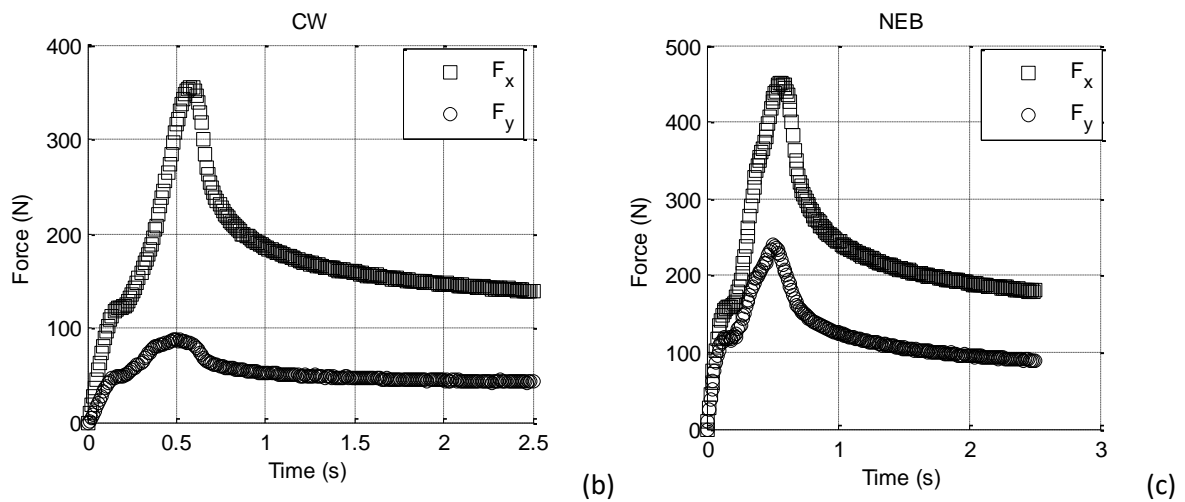


Figure 42 - Evolution de la force en fonction du temps (a) EB\* (b) CW et (c) NEB.

\* Le déplacement bi-axial n'est que de 30mm pour l'essai EB car les essais à 50mm n'ont pas pu aboutir, l'éprouvette se déchire avant la fin

La première constatation concerne la valeur de force maximale  $F_x$  atteinte pour les 3 essais : A température, élongation et vitesse de déformation identique, la force  $F_x$  est d'autant plus élevée que le taux de bi-axialité  $\lambda_x \lambda_y$  est grand. Ainsi, pour l'essai CW ce taux vaut  $\lambda_x$ , c'est le plus faible et  $F_x$  atteint 360N, pour l'essai NEB le taux vaut  $\lambda_x(\lambda_x+1)/2$  ce qui est plus élevé que  $\lambda_x$  et la force  $F_x$  atteint alors 450N.

Pour l'essai EB le taux serait de  $\lambda_x^2$  encore plus élevé que les deux précédents et on pourrait s'attendre à une force encore plus grande. Mais à cette température les éprouvettes rompent, se déchirent avant d'atteindre 50mm de déplacement donc l'essai présenté ne va que jusqu'à 30mm de déplacement et l'effort ne dépasse pas 170N mais si la courbe se prolongeait jusqu'à un déplacement on serait au-delà de 500N.

### III.3 Mesure des déformations sur les diagonales

Pour mesurer la déformation nominale, on utilise un programme de corrélation d'image différent de celui présenté dans le Chapitre IV qui n'est pas adapté aux grandes déformations. On utilise la version de Corelli GD (pour les grandes déformations) afin de dépouiller ces mesures durant la phase d'élongation. La partie relaxation n'est pas exploitée dans la suite. Une image est prise toutes les 0,1 s ce qui donne 50 images à analyser par essai afin d'obtenir l'évolution du champ de déplacement et par suite les déformations au centre de l'échantillon.

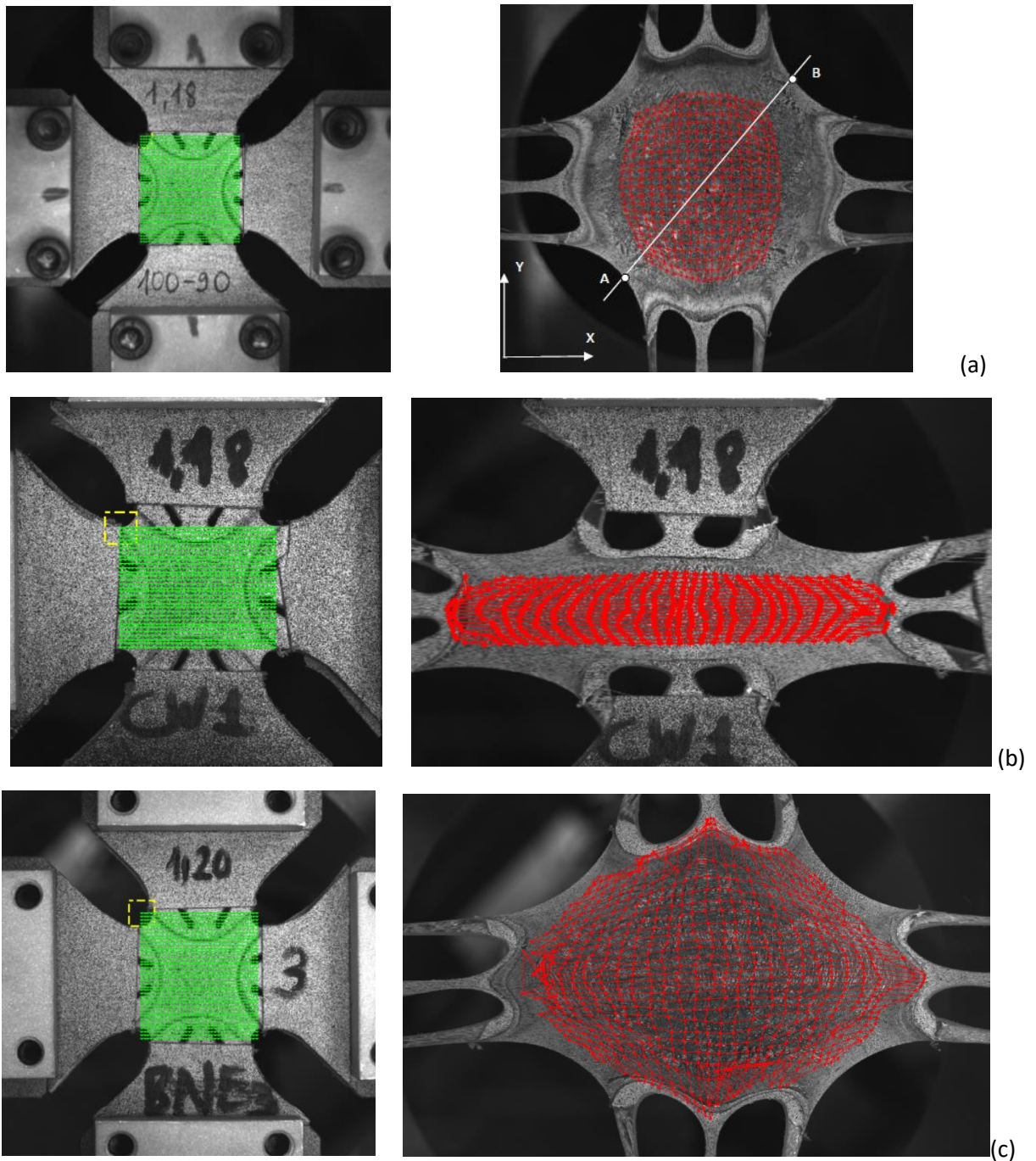


Figure 43 - Grille avant et après déformation (a) EB, (b) CW et (c) NEB

Notons que les grilles déformées de la Figure 43-a-b présente un quadrillage moins régulier que lors des essais EB Figure 43-c. Néanmoins le test CW conduit bien à une grille qui s'allonge horizontalement sans perdre de hauteur et le test NEB avec un facteur  $\frac{1}{2}$  entre les deux déformations respecte bien cette condition dans la zone centrale. Il est à prévoir que les irrégularités des grilles vont conduire à des données plus bruitées que lors des essais EB.

A partir des déformations de chaque image au centre de l'éprouvette,  $\varepsilon_{xx}$  et  $\varepsilon_{yy}$  (qui est censé être quasiment nul pour un essai de CW), on peut obtenir les abscisses des courbes de comportement contrainte en fonction de déformation. Mais la question se pose de la détermination des contraintes et leur relation avec les forces mesurées.

A l'instar de ce qui a été proposé dans [43], on s'intéresse à la répartition de ces déformations le long des diagonales de l'éprouvette pour confirmer ou infirmer la pertinence de l'hypothèse faite sur les contraintes pour l'identification. Sur la Figure 43 on voit que, sur la grille déformée en fin de traction pour l'essai CW (b) et l'essai NEB (c), on observe des distorsions angulaires qui sont de plus en plus importantes quand on s'éloigne de la zone centrale. Ainsi la déformation  $\varepsilon_{tt}$  suivant une « diagonale » inclinée d'un angle  $\theta$  (voir Figure 44) ne sera pas uniforme.

En effet, si cet angle  $\theta$  vaut toujours  $45^\circ$  lors des essais équilibrés EB, une manière simple de l'exprimer pour CW ou NEB est de supposer que la diagonale de l'éprouvette coïncide avec la diagonale du rectangle formé par les 4 mors. Cette hypothèse conduit à l'expression suivante :

$$\tan \theta = \frac{a + 2v_y t}{a + 2v_x t} \quad \text{III.1}$$

Où  $a$  la distance initiale entre les mors et  $v_x$  et  $v_y$  les vitesses des vérins. Ce qui donne une évolution de  $\theta$  qui part de  $45^\circ$  et qui croît ou décroît suivant que  $v_y$  est plus grand ou plus petit que  $v_x$ . Grâce à l'analyse d'images on peut calculer  $\varepsilon_{nn}$  sur la diagonale [AB] (Figure 44) avec les composantes de la normale  $\vec{n}$  à [AB] qui a pour expression :

$$\vec{n} = \begin{pmatrix} -\sin \theta \\ -\cos \theta \end{pmatrix} \quad \text{III.2}$$

Ce qui donne la déformation  $\varepsilon_{nn}$  qui s'exprime :

$$\varepsilon_{nn} = \vec{n} \cdot (\underline{\underline{\varepsilon}} \vec{n}) = \begin{pmatrix} -\sin \theta & -\cos \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} \\ \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{yy} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -\sin \theta \\ -\cos \theta \end{pmatrix} \quad \text{III.3}$$

$$\Rightarrow \varepsilon_{nn} = \varepsilon_{xx} \sin^2 \theta + \varepsilon_{yy} \cos^2 \theta + 2\varepsilon_{xy} \cos \theta \sin \theta$$

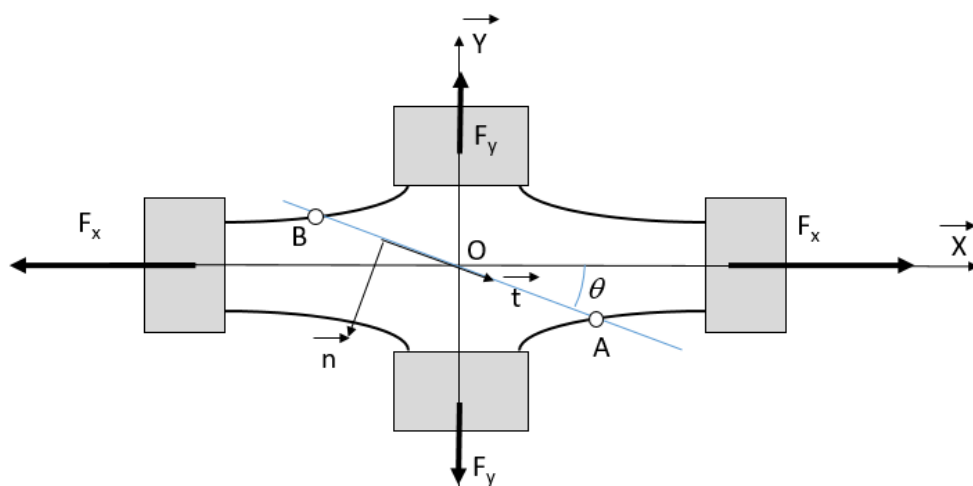


Figure 44 - Modèle de l'éprouvette et géométrie

Ainsi pour les deux essais CW et NEB, la Figure 45 montre, en rouge, la déformation  $\varepsilon_{nn}$  normale à la diagonale, le long de la diagonale, pour la dernière image qui correspond à un allongement de 100mm suivant X. Cette déformation est représentée le long d'une abscisse adimensionnée  $\xi=s/L$  où  $s$  est l'abscisse

curviligne suivant la diagonale [AB] et L la longueur de la diagonale à l'instant t, et les points de mesure des deux droites inclinées de  $\pm\theta$  par rapport à l'axe X ont été superposés. On peut en conclure que :

- Cette déformation est assez uniforme le long de la diagonale et plutôt faible (environ 50%) en valeur moyenne pour l'essai CW
- La valeur moyenne est bien plus élevée pour l'essai NEB et aussi plus bruitée avec une dispersion importante autour de  $\varepsilon_{nn} = 200\%$

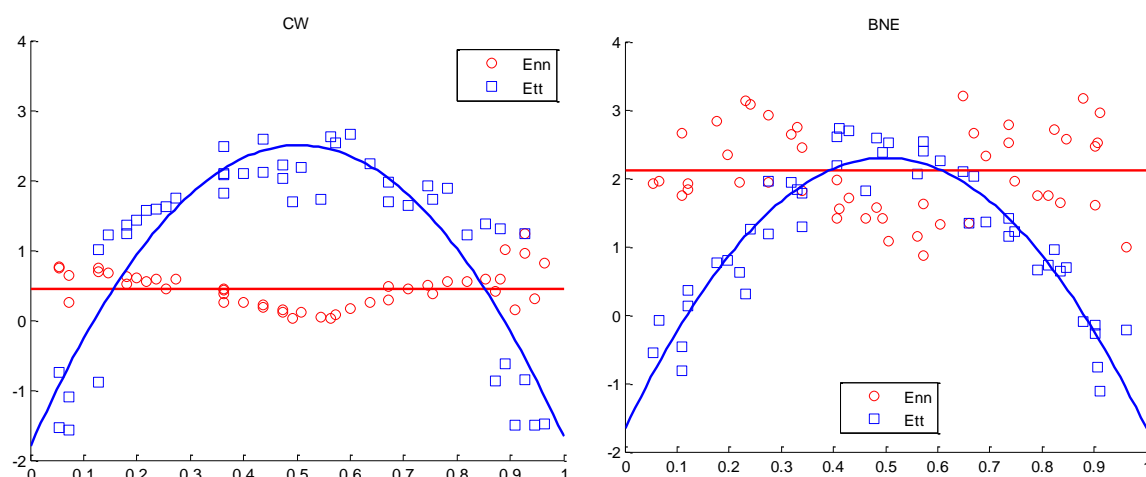


Figure 45 - Déformation  $\varepsilon_{tt}$  et  $\varepsilon_{nn}$  selon la diagonale (a) CW et (b) NEB

On peut aussi calculer la déformation  $\varepsilon_{tt}$ , c'est-à-dire déformation suivant la diagonale pour vérifier si celle-ci est ou n'est pas uniforme. La déformation  $\varepsilon_{tt}$  s'écrit :

$$\varepsilon_{tt} = \vec{t} \cdot \left( \underline{\underline{\varepsilon}} \vec{t} \right) = \begin{pmatrix} \cos \theta & -\sin \theta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & \varepsilon_{xy} \\ \varepsilon_{xy} & \varepsilon_{yy} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \cos \theta \\ -\sin \theta \end{pmatrix} \quad \text{III.4}$$

$$\Rightarrow \varepsilon_{tt} = \varepsilon_{xx} \cos^2 \theta + \varepsilon_{yy} \sin^2 \theta - 2\varepsilon_{xy} \cos \theta \sin \theta$$

En bleu sur la Figure 45, on peut voir que l'allongement relatif  $\varepsilon_{tt}$  le long de la diagonale varie fortement entre le centre où l'élongation est supérieure à 200% aussi bien pour CW que NEB alors qu'au bord, près de la surface libre, la diagonale est le siège d'allongements relatifs fortement négatifs.

En conclusion, on peut considérer que (i)  $\varepsilon_{nn}$  est constant et que (ii) l'allongement relatif  $\varepsilon_{tt}$  n'est pas uniforme, ce qui implique d'utiliser l'analyse d'images pour déterminer les déformations maximales au centre de l'éprouvette et qu'il est nécessaire de calculer la moyenne de  $\varepsilon_{tt}$  sur la diagonale ou de mesurer la longueur  $L$  de cette diagonale car cette longueur est nécessaire pour trouver l'épaisseur moyenne de l'échantillon au cours de l'essai. En effet, cette dernière sera nécessaire pour passer des forces aux contraintes et si on fait l'hypothèse de conservation du volume dans une zone localisée au voisinage de la diagonale permet d'écrire :

$$\lambda_n \lambda_t \lambda_z = 1 \rightarrow \lambda_z = 1/(\lambda_n \lambda_t) \quad \text{III.5}$$

Où  $\lambda_n = 1 + \varepsilon_{nn}$  et  $\lambda_t = \langle 1 + \varepsilon_{tt} \rangle$  où les crochets représentent la valeur moyenne le long de la diagonale. L'épaisseur peut être déterminée en utilisant l'épaisseur initial  $e_0$  par :  $e = e_0 \lambda_z$

### III.4 Estimation des contraintes et courbes de comportement

S'inspirant de la démarche mise en place pour le dépouillement des essais bi-axiaux équilibrés, on peut chercher à faire l'équilibre d'une ½ éprouvette découpée suivant la « diagonale » [AB] (Figure 46). On suppose les contraintes  $\sigma_{xy}$  négligeables et  $\sigma_{nn}$  uniforme le long de la diagonale, ce qui permet le calcul de la contrainte normale à la coupure  $\sigma_{nn}$  :

$$\sigma_{nn} = \vec{n} \cdot (\underline{\underline{\sigma}} \vec{n}) = (-\sin \theta \quad -\cos \theta) \begin{pmatrix} \sigma_x & 0 \\ 0 & \sigma_y \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -\sin \theta \\ -\cos \theta \end{pmatrix} \quad \text{III.6a}$$

$$\Rightarrow \sigma_{nn} = \sigma_x \sin^2 \theta + \sigma_y \cos^2 \theta$$

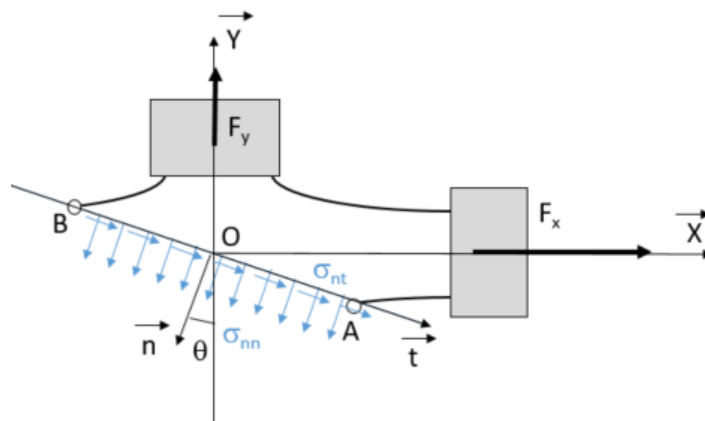


Figure 46 - Modèle de la ½ éprouvette pour l'équilibre entre les forces et les contraintes

Ainsi, si cette contrainte est uniforme sur [AB] (de longueur L et d'épaisseur moyenne e), la projection, de l'équation d'équilibre des efforts suivant la direction n appliquée à la ½ éprouvette conduit à la relation :

$$\sigma_x \sin^2 \theta + \sigma_y \cos^2 \theta = \frac{F_x}{eL} \sin \theta + \frac{F_y}{eL} \cos \theta \quad \text{III.6b}$$

La mesure des forces  $F_x$  et  $F_y$  ainsi que la mesure de la longueur L et l'estimation de l'épaisseur e vue plus haut sont connues. Cette projection donne une première équation. Mais cela est insuffisant pour déterminer les deux contraintes  $\sigma_x$  et  $\sigma_y$  qui ne sont pas égales dans les cas CW ou NEB.

Pour obtenir deux équations il est préférable de projeter l'équation d'équilibre des efforts suivant X et suivant Y. Pour ce faire, il est nécessaire de compléter le vecteur contraint suivant la coupure et de calculer la contrainte tangentielle  $\sigma_{nt}$ .

$$\sigma_{nt} = \vec{t} \cdot (\underline{\underline{\sigma}} \vec{n}) = (\cos \theta \quad -\sin \theta) \begin{pmatrix} \sigma_x & 0 \\ 0 & \sigma_y \end{pmatrix} \begin{pmatrix} -\sin \theta \\ -\cos \theta \end{pmatrix} \quad \text{III.6c}$$

$$\Rightarrow \sigma_{nt} = (\sigma_y - \sigma_x) \sin \theta \cos \theta$$

Notons que cette contrainte est nulle dans le cas bi-axial équilibré. Ainsi, les projections de l'équation d'équilibre suivant X puis suivant Y donne les deux relations :

$$\begin{aligned}\sigma_{nm} \sin \theta - \sigma_{nt} \cos \theta &= \frac{F_x}{eL} \\ \sigma_{nm} \cos \theta + \sigma_{nt} \sin \theta &= \frac{F_y}{eL}\end{aligned}\tag{III.6d}$$

Ce qui donne finalement, après remplacement des  $\sigma_{nn}$  et  $\sigma_{nt}$ , deux relations ::

$$\begin{cases} (\sigma_x \sin^2 \theta + \sigma_y \cos^2 \theta) \sin \theta - (\sigma_y - \sigma_x) \sin \theta \cos^2 \theta = \frac{F_x}{eL} \\ (\sigma_x \sin^2 \theta + \sigma_y \cos^2 \theta) \cos \theta + (\sigma_y - \sigma_x) \sin^2 \theta \cos \theta = \frac{F_y}{eL} \end{cases}\tag{III.7}$$

Et après simplification :

$$\begin{cases} \sigma_x = \frac{F_x}{eL \sin \theta} \\ \sigma_y = \frac{F_y}{eL \cos \theta} \end{cases}\tag{III.8}$$

Finalement, deux relations assez simples où la contrainte  $\sigma_x$  est directement proportionnelle à la force  $F_x$  et symétriquement entre  $\sigma_y$  et  $F_y$ .

### III.5 Résultats et discussion

A cette étape, il reste à produire les courbes de comportement, généralement la contrainte  $\sigma$  versus la déformation  $\varepsilon$  mais pour le cas des essais CW ou NEB cette représentation est délicate. En effet, pour le cas de traction simple ou pour le cas EB, une seule courbe suffit. Lorsque les déformations sont différentes dans les deux directions il est plus facile de comparer les contraintes ou les déformations en fonction du temps. Ainsi, la Figure 47 donne les déformations nominales  $\varepsilon_{xx}$  et  $\varepsilon_{yy}$  en fonction du temps. Le premier graphe a déjà été présenté d'une autre façon Figure 47: les déformations  $\varepsilon_{yy}$  restent quasi nulles légèrement négatives, mais ce graphe ci montre que l'évolution de la déformation  $\varepsilon_{xx}$  n'est pas proportionnelle au déplacement  $U_x$ . Il semble que la diminution de longueur suivant Y en 2<sup>ème</sup> moitié de test facilite l'allongement suivant X

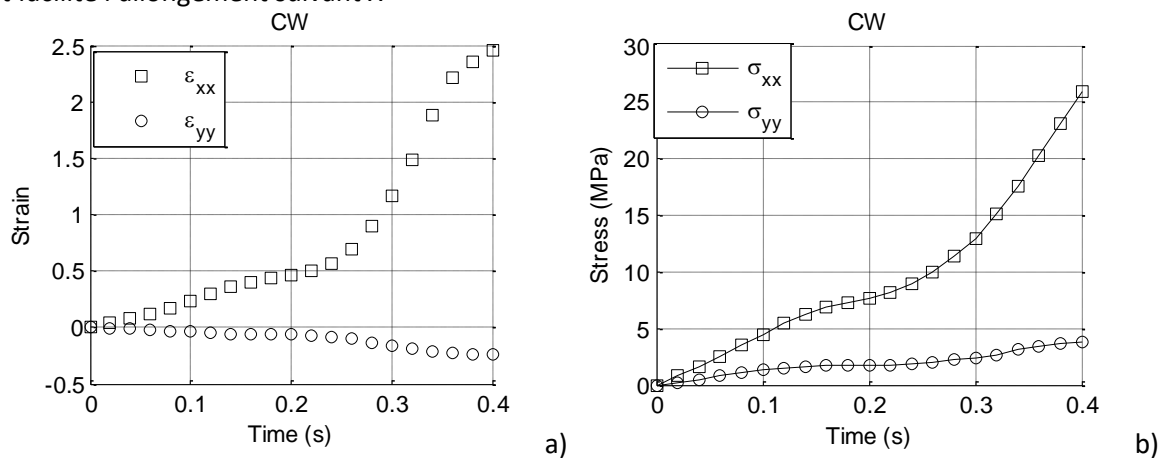


Figure 47 – Déformations (a) et contraintes (b) en fonction du temps pour le test CW

Pour une zone utile carrée de 20mm de côté, si l'allongement de 100mm était directement imposé au bord cela donnerait un  $\varepsilon_{xx} = 100/20 = 5$  ! Ici on arrive seulement à 2.5 car les « bras » ne sont pas

indéformables malgré leur surépaisseur par rapport à la zone « utile ». En conséquence le carré équivalent serait plutôt de 40mm de côté et la vitesse de déformation associée de l'ordre de  $\alpha = 200/40 = 5s^{-1}$  ! Or, d'après la pente de la courbe  $\epsilon_{xx}$  versus t, on a plutôt une pente de  $0.5/0.2 = 2.5s^{-1}$  en première partie mais qui passe à  $1.5/0.1 = 15s^{-1}$  en fin d'essai dans la direction X.

Cette augmentation de la vitesse de déformation en fin d'essai s'accompagne d'une augmentation de la contrainte qui pourrait être associée au phénomène de « *strain hardening* » observé dans le PET à ces températures. Cependant, la courbe  $\sigma_{xx}$  versus  $\epsilon_{xx}$  de la Figure 48 montre que ce phénomène est moins prononcé en CW que lors de essais de traction uni-axiaux ou bi-axiaux. Ce durcissement est d'ailleurs inexistant dans la direction Y.

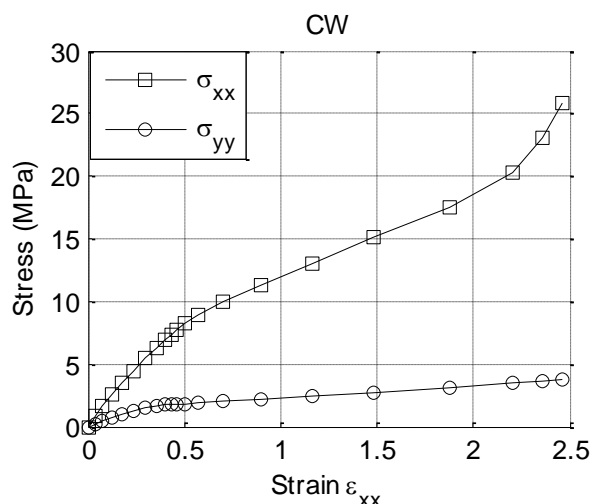


Figure 48 - Contrainte  $\sigma_{xx}$  et  $\sigma_{yy}$  en fonction de  $\epsilon_{xx}$  pour le test CW.

Dans le cas NEB on observe aussi deux phases : une première où les déformations  $\epsilon_{xx}$  et  $\epsilon_{yy}$  semblent évoluer comme une déformation équi-biaxiale puisque les deux courbes de la Figure 49-a sont quasiment superposées, puis à partir de 0.1s la déformation  $\epsilon_{xx}$  prend le dessus et augmente pour atteindre presque 300% !

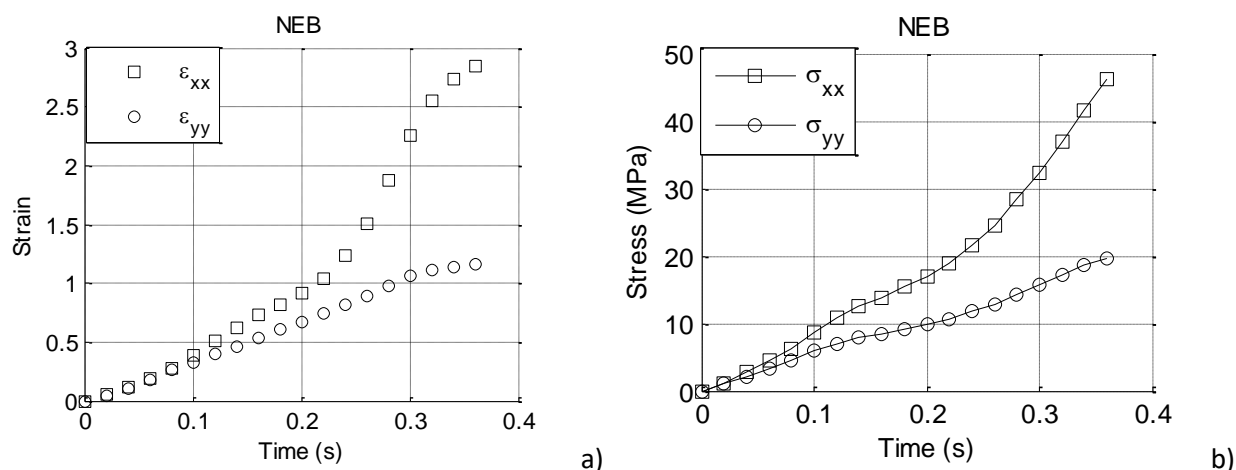


Figure 49 - Déformations et contraintes en fonction du temps pour le test CW

La Figure 50 montre que l'effet de durcissement est plus net sur cet essai et ceci pour les deux directions. Puisque les déformations sont nettement différentes dans les deux directions, ces courbes de comportement sont présentées sur deux figures différentes.

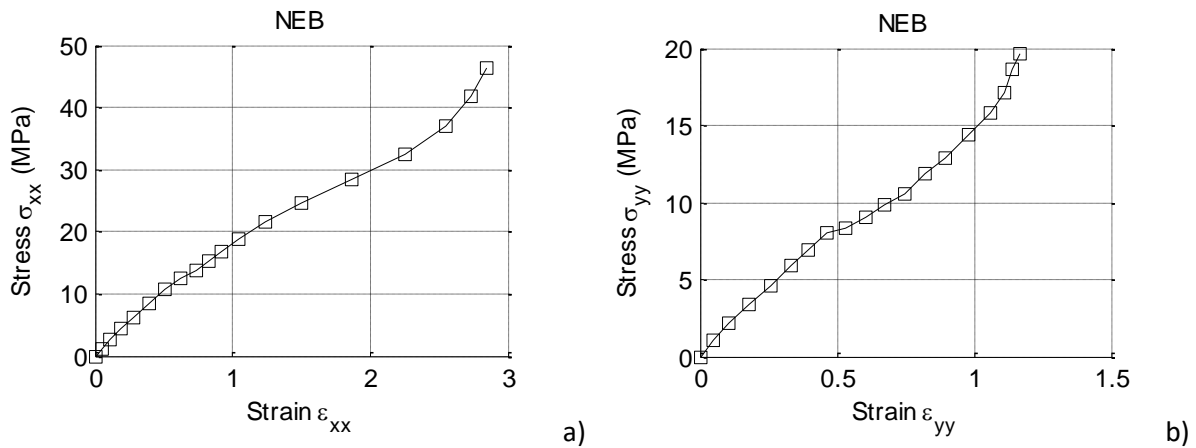


Figure 50 - Contrainte  $\sigma_{xx}$  versus  $\epsilon_{xx}$  (a) Contrainte  $\sigma_{yy}$  versus  $\epsilon_{yy}$  pour le test NEB

On peut noter que la contrainte  $\sigma_{xx}$  atteint presque 50MPa en NEB pour un allongement relatif de presque 300% et environ 35MPa pour 250%. Cette même contrainte n'atteint que 27MPa pour une déformation de 250% en CW : ce qui semble confirmer qu'une plus forte bi-axialité conduit à des contraintes plus élevées. Dans le même temps, on note que  $\sigma_{yy}$  atteint 4MPa en CW alors que cette contrainte monte à 20MPa en NEB.

Il est délicat de comparer ces résultats avec ceux des essais bi-axiaux car les élongations finales ne sont pas les mêmes, les vérins ayant été déplacés de 30mm et non de 50mm pour cette série. Cependant, on peut estimer qu'un déplacement de 50mm aurait donné une déformation de 250% x 50/30 soit environ 400% si le déchirement n'était pas survenu et qu'en conséquence, la contrainte  $\sigma_{xx}$  et  $\sigma_{yy}$  dépasseraient largement les 50MPa de l'essai NEB comme semblent le montrer les courbes extrapolées (Figure 51) qui prolongent l'essai 100°C à 100mm/s à partir de fonction d'interpolation de degré 3.

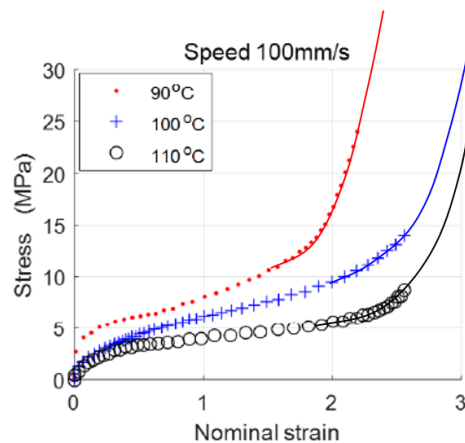


Figure 51 - Contraintes  $\sigma_{xx} = \sigma_{yy}$  en fonction de  $\epsilon_{xx} = \epsilon_{yy}$  pour les tests EB [62]

## III.6 Identification du modèle visco-hyperélastique (VHE)

### III.6.1 Présentation du modèle VHE

Les essais de traction bi-axiale non équilibrés présentés plus haut nous permettent de reproduire en laboratoire les sollicitations que subit le matériau lors de la fabrication des bouteilles. Pour modéliser le comportement du PET lors de l'essai on utilise le modèle visco-hyperélastique de Luo et al. [63]. Pour la



partie élastique, un modèle incompressible, hyperélastique de type Hart Smith [64] est utilisé. Pour la partie visqueuse, un modèle non linéaire incompressible viscoplastique est utilisé. Dans un premier temps, une version isotrope [44] du modèle a été proposée mais sa réponse numérique ne représente pas correctement la forme des bouteilles lorsqu'il est utilisé pour simuler le soufflage, notamment le facteur de forme L/R n'est pas correctement reproduit. Afin d'obtenir une simulation plus réaliste, le modèle VHE a été développé en version orthotrope [63]. La partie déviatorique de la contrainte dans le modèle peut être écrite sous les formes suivantes :

*Partie élastique :*

$$\underline{\underline{\hat{\sigma}}} = 2G_1 e^{\Lambda_1(I_1-3)^2} \underline{\underline{\hat{B}_e}} + 2I_4 G_2 e^{\Lambda_2(I_4-1)^2} \underline{\underline{\hat{A}_1}} + 2I_6 G_2 e^{\Lambda_2(I_6-1)^2} \underline{\underline{\hat{A}_2}} \quad \text{III.9}$$

où  $\underline{\underline{B_e}}$  est la partie élastique du tenseur de déformation de Cauchy gauche,  $\underline{\underline{\hat{B}_e}}$  est la partie déviatorique de  $\underline{\underline{B_e}}$ .  $I_1$  est le 1<sup>er</sup> invariant classique de  $\underline{\underline{B_e}}$  qui est associé à l'isotropie,  $I_4$  et  $I_6$  sont les invariants associés au comportement orthotrope :

$$I_1 = \text{tr}(\underline{\underline{B_e}}), I_4 = \underline{n_1} \cdot \underline{\underline{B_e}} \cdot \underline{n_1}, I_6 = \underline{n_2} \cdot \underline{\underline{B_e}} \cdot \underline{n_2} \quad \text{III.10}$$

$\underline{n_1}, \underline{n_2}$  et  $\underline{n_3}$  sont les directions privilégiées des propriétés orthotropes. Les  $\underline{\underline{A_i}}$  sont les tenseurs de structure :

$$\underline{\underline{A_1}} = \underline{n_1} \otimes \underline{n_1}, \quad \underline{\underline{A_2}} = \underline{n_2} \otimes \underline{n_2} \quad \text{III.11}$$

Et  $G_1, G_2, \Lambda_1$  et  $\Lambda_2$  sont les paramètres à identifier de la partie élastique

*Partie visqueuse :*

Pour la partie visqueuse, une forme non linéaire incompressible visqueuse est proposée :

$$\underline{\underline{\hat{\sigma}}} = 2\underline{\underline{\eta D_v}} \Rightarrow \begin{pmatrix} \hat{\sigma}_{11} \\ \hat{\sigma}_{22} \\ \sqrt{2}\hat{\sigma}_{12} \end{pmatrix} = 2 \begin{bmatrix} \eta_{11} & \eta_{12} & 0 \\ \eta_{12} & \eta_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \eta_{44} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} D_{v11} \\ D_{v22} \\ \sqrt{2}D_{v12} \end{pmatrix} \quad \text{III.12}$$

$$\text{Avec} \begin{cases} \eta_{11} = \eta_0 h_1 f(\overline{\dot{\epsilon}_v}) \\ \eta_{12} = \eta_0 \max(h_1, h_2) f(\overline{\dot{\epsilon}_v}) \\ \eta_{22} = \eta_0 h_2 f(\overline{\dot{\epsilon}_v}) \\ \eta_{44} = \eta_0 \max(h_1, h_2) f(\overline{\dot{\epsilon}_v}) \end{cases}$$

Où  $D_v$  est la vitesse de déformation visqueuse ;  $h_i$  sont les fonctions spécifiques qui dépendent de la déformation visqueuse suivant chaque direction d'orthotropie telles que:

$$\begin{cases} h_1 = (1 - \exp(-K\varepsilon_{v1})) \cdot \exp(\alpha_1(\varepsilon_{v1})^2 + \alpha_2(\varepsilon_{v1})) \\ h_2 = (1 - \exp(-K\varepsilon_{v2})) \cdot \exp(\alpha_1(\varepsilon_{v2})^2 + \alpha_2(\varepsilon_{v2})) \end{cases} \quad \text{III.13}$$

Et  $f(\overline{\dot{\epsilon}_v})$  la loi de Carreau-Yasuda telle que :

$$f(\bar{\dot{\epsilon}}_v) = \frac{1}{\left(1 + \left(\lambda \bar{\dot{\epsilon}}_v / \dot{\epsilon}_{ref}\right)^a\right)^{\frac{1-m}{a}}}, \bar{\dot{\epsilon}}_v = \sqrt{\frac{2}{3} \text{tr}(D_v^2)}$$

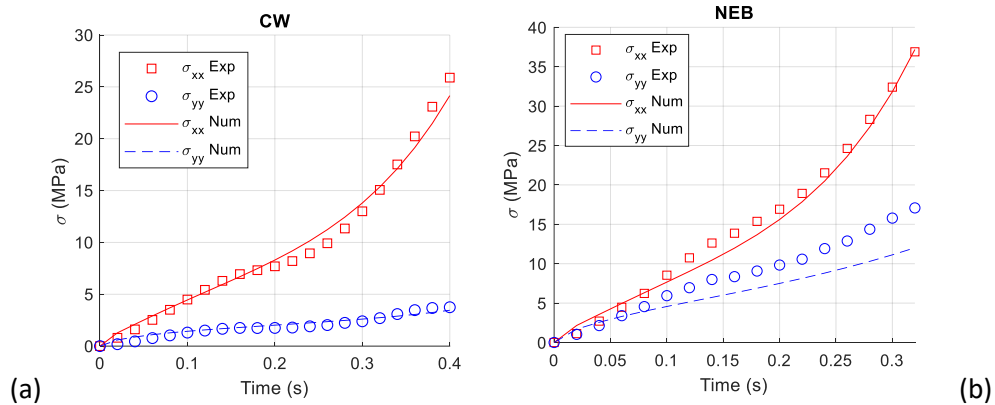
$\epsilon_{vi}$  est l'élongation visqueuse pour chaque direction d'orthotropie,  $\bar{\dot{\epsilon}}_v$  est le taux de déformation visqueux équivalent,  $\dot{\epsilon}_{ref}$  la valeur de référence pour la vitesse de déformation choisi égal à  $1s^{-1}$ .  $\eta_0, K, \alpha_1$  et  $\alpha_2, \lambda, m, a$  sont les paramètres à déterminer pour la partie visqueuse.

### III.6.2 Identification du modèle VHE

La procédure d'identification est faite en utilisant l'outil d'optimisation dans Matlab « fminsearch » pour minimiser l'écart entre les courbes expérimentales et celles numériques. Une étude paramétrique est mise au point afin d'obtenir les sensibilités de chaque paramètre sur le résultat final. Les détails de cette étude sont présentés dans l'**annexe 2**. La prise en compte des différentes situations bi-axiales permet d'obtenir un jeu optimal et malgré les écarts visibles par superposition des courbes, l'écart moyen ne dépasse pas 10% (CW 5,36% ; NEB 9,84% et EB 5,62%) pour les 3 tests présentés dans figure 52. On obtient une bonne représentation des résultats des essais de traction bi-axiale équilibrée ou non, avec le modèle VHE proposé. Les paramètres identifiés sont listés dans le Tableau 3.

Tableau 3 - Valeurs optimales des paramètres dans le modèle VHE

$G_1$ (Pa)	$\Lambda_1$	$G_2$ (Pa)	$\Lambda_2$	$\eta_0$ (Pa.s)	K	$\alpha_1$	$\alpha_2$	$\lambda$	a	m
$4.5 \times 10^5$	1.1	$4.1 \times 10^6$	1.4	$9.9 \times 10^5$	4.4	16.9	-1.7	13.3	13.9	1.4



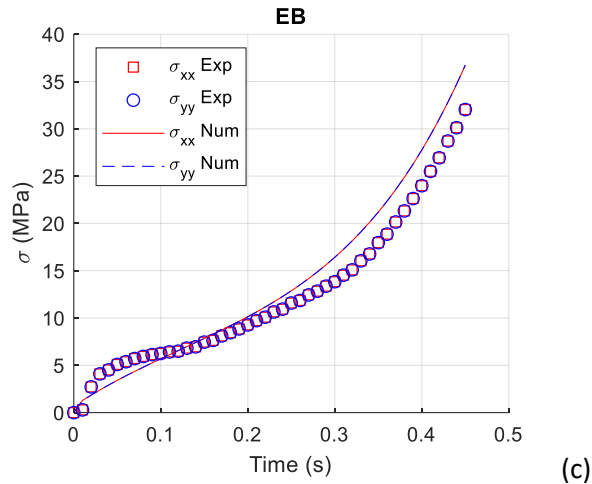


Figure 52 - Comparaison entre les mesures expérimentales à 100°C et les simulations du modèle pour (a) CW, (b) NEB et (c) EB

### III.6.3 Essais in-situ

Le comportement mécanique complexe des matériaux polymères est fortement lié à la microstructure complexe basée sur la configuration et l'interaction des chaînes macromoléculaires. Par conséquent, le développement d'un modèle capable de représenter avec précision le comportement du matériau sous charge doit s'appuyer sur une connaissance fine des changements microstructuraux au cours de la déformation. Les essais expérimentaux permettent de réaliser l'optimisation et la modélisation du procédé à plusieurs échelles : à l'échelle macroscopique, le polymère présente un comportement visco-hyperélastique thermodépendant ; à l'échelle microscopique, le polymère soumis à un champ de déformation complexe évolue quant à son rapport cristallin, son orientation moléculaire et la taille de ses cristallites. Les changements microstructuraux subis par le matériau (orientation, cristallisation) améliorent le produit final car ses propriétés mécaniques sont bien supérieures à celles des matériaux amorphes initiaux. Comprendre les liens entre les conditions d'allongement de l'éprouvette (telles que les vitesses de déformation, la température et les allongements) et les changements microstructuraux au cours de la déformation est crucial pour construire une optimisation et une simulation numérique précises et fiables du processus.

Un modèle visco-hyper-élastique capable de reproduire le comportement mécanique du PET dans les conditions de traitement a été présenté dans les sections précédentes. Cependant, notre modèle ne prédit pas la cristallisation.

L'objectif est de réaliser des essais in situ de caractérisation microstructurale du PET par rayonnement synchrotron X dans le cadre d'essais d'allongement multiaxiaux, utilisant plusieurs vitesses d'allongement, rapports d'étirage et températures, proches du procédé de soufflage.

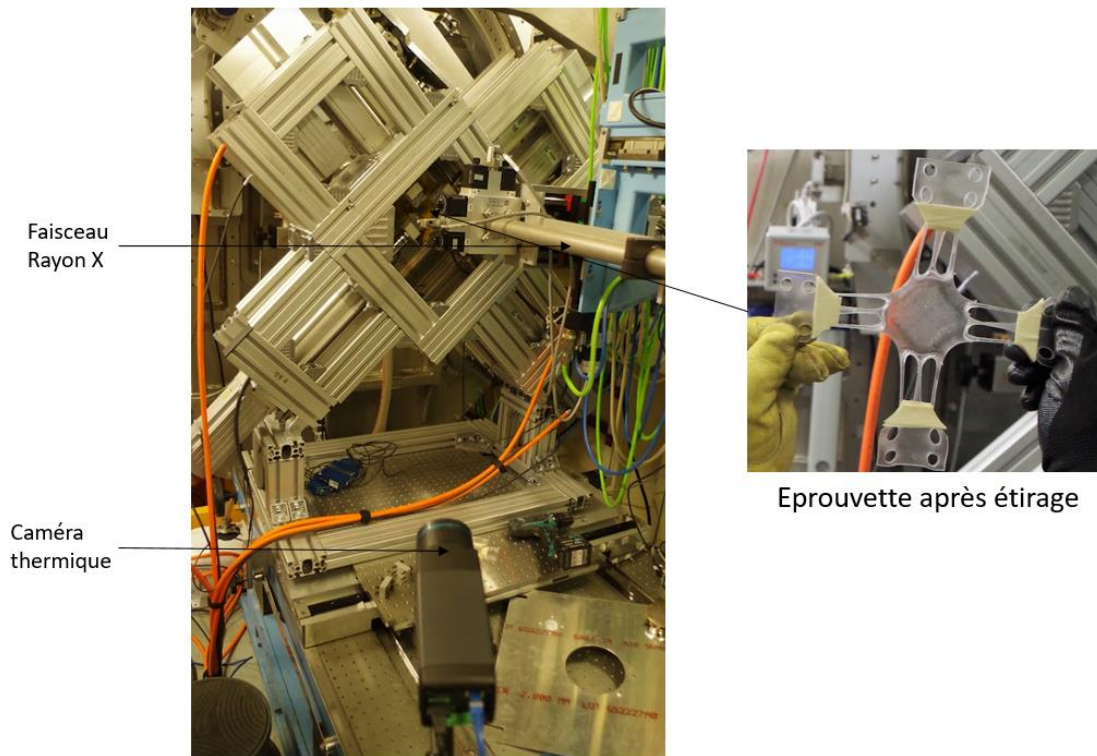
L'objectif ici est double : (i) comprendre la cinétique d'orientation et de cristallisation lors de l'allongement à haute vitesse de déformation à une température au-dessus de la transition vitreuse afin d'enrichir la base de données du matériau proche des conditions du procédé ISBM, notamment en proposant un allongement multiaxial, utilisant plusieurs vitesses d'allongement, rapports d'étirage et températures. (ii) L'évolution de la microstructure corrélée au comportement mécanique visco-hyper-élastique dans les conditions proches du procédé ISBM permettra de construire une nouvelle version du modèle VHE couplé à la microstructure. Grâce à la micromécanique, l'estimation des propriétés mécaniques finales induites sera alors possible.

### III.6.3.1 Description des essais

Dans cette campagne de test, nous avons voulu explorer l'effet de plusieurs paramètres afin d'identifier les plus pertinents. Par conséquent, nous avons exploité trois vitesses (4, 6, et 10  $\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$ ) qui induisent des vitesses de déformation nettement plus faibles que celles imposées industriellement, mais nous permettent de conserver un temps d'intégration suffisant pour disposer de clichés de diffraction des rayons X, à plusieurs températures (90 à 110°C). Le champ de température est capturé avec une caméra thermique lors de la phase de chauffage et d'étirement (Figure 53). L'influence du rapport de bi-axialité est également testée, équi-biaxialité (EB) et constant width (CW). Enfin, chaque test doit être répété au moins 2 ou 3 fois pour s'assurer de la reproductibilité.

L'éprouvette présentée dans la section III.2.1.2 installée sur le banc de traction bi-axial est amenée à la température souhaitée dans une enceinte fermée (voir section II.5.2) puis étirée. Une étude préliminaire a permis de connaître la variation de température entre le moment où on arrête de chauffer et le début de l'essai. De ce fait, on a ajusté la température afin de commencer l'essai à la bonne température.

Les essais in-situ ont été réalisés sur la ligne SWING, comme évoqué dans la section Principe des essais sous rayon X II.5.3, seuls les essais SAXS ont été possibles dû à l'encombrement du dispositif de traction.



### III.6.3.2 Analyse des clichés SAXS : Orientation des chaînes macromoléculaires du PET

Pour l'essai de traction équi-biaxial, l'allongement est généré dans les deux directions X et Y. La Figure 55 représente les courbes d'intensité en fonction de l'angle de diffusion  $2\theta$  pour chaque clichés. Cette courbe montre qu'aucun pic ne se produit pendant l'allongement. On constate aussi qu'au-delà de 8,3s (durée de l'étirage) dans la phase de relaxation il n'y a pas de pic de diffraction. le pic visible correspond au pic de diffraction de la feuille de kapton entre l'éprouvette et la rallonge (voir Figure 32-b). On peut également voir sur la partie inférieure de la Figure 54 qu'aucune orientation macromoléculaire spécifique n'est notée

: le halo le plus grand réduit légèrement son épaisseur mais reste une forme de cercle total typique de l'absence d'orientation dans le matériau. L'épaisseur diminue pendant le test d'allongement et l'intensité moyenne diminue également, cela explique le niveau plus élevé des courbes au début du test.

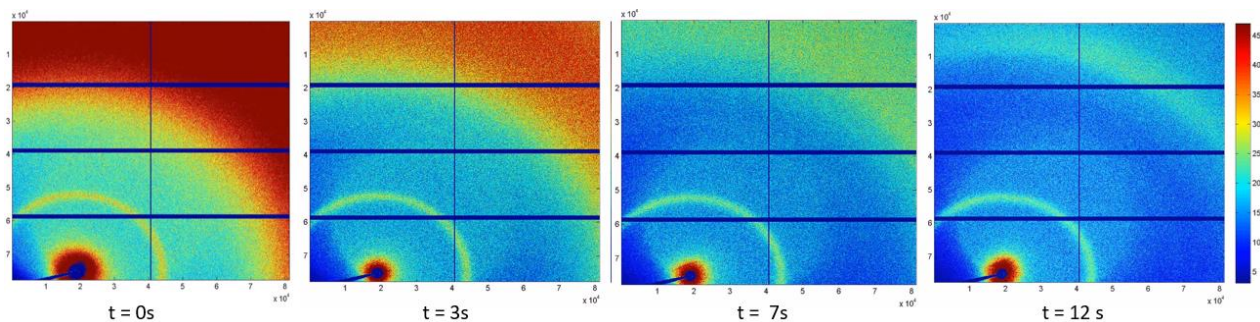


Figure 54 – Clichés SAXS de l'échantillon de PET durant la phase d'étirage et de relaxation dans le cas d'un essai de traction bi-axial

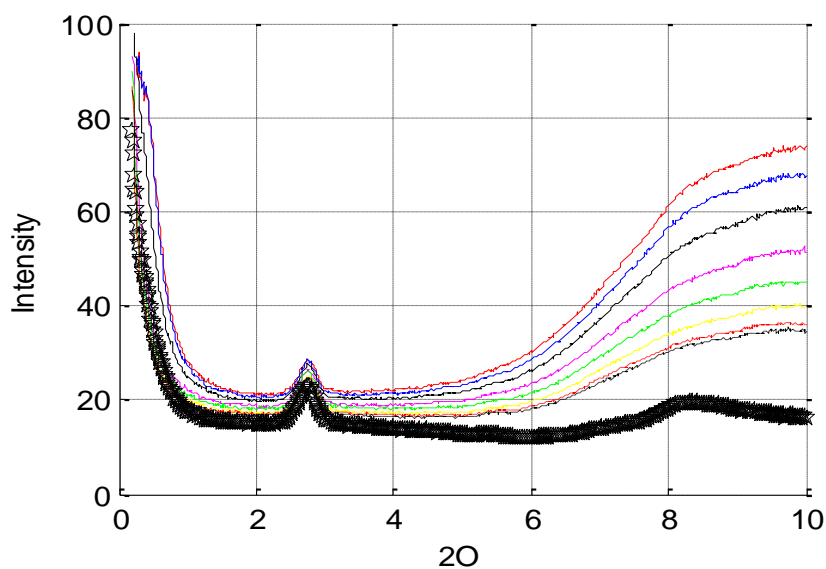


Figure 55 - Courbe de diffusion pour un essai équi-bi-axial

Dans le cas d'un essai Constant Width (CW), l'échantillon est étiré le long de la direction diagonale inférieure gauche à supérieure droite et reste de la même longueur dans la deuxième direction diagonale. La Figure 56 indique que la cristallisation apparaît pendant l'allongement CW et se poursuit pendant la phase de relaxation. Il indique également l'orientation des macromolécules dans la direction étirée.

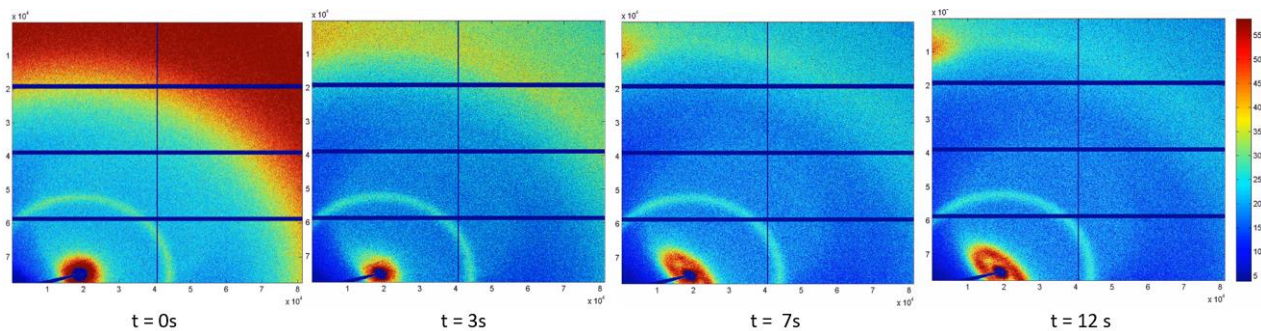


Figure 56 - Clichés SAXS de l'échantillon de PET durant la phase d'étirage et de relaxation dans le cas d'un essai de traction Constant Width

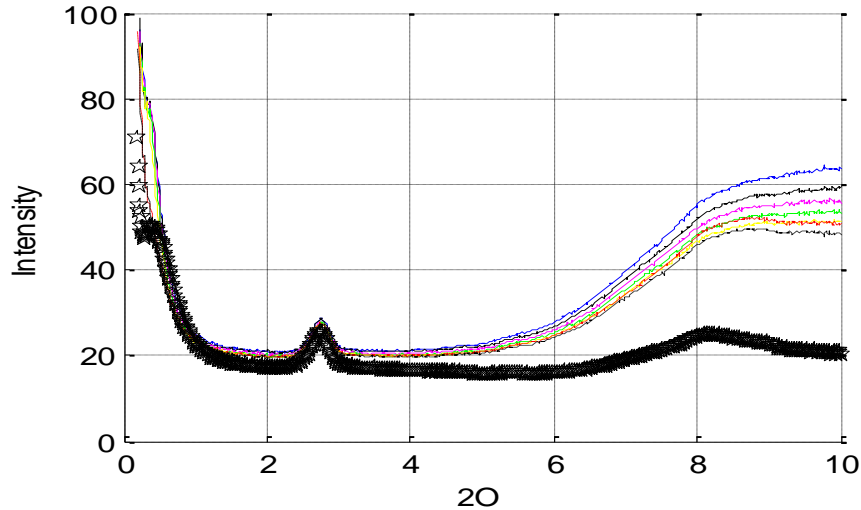


Figure 57 – Courbe de diffusion pour un essai Constant Width

La localisation du pic (Figure 57) et l'orientation sont caractéristiques d'une microstructure cristallisée et orientée... encore faiblement ici.

### III.7 Conclusion

Dans ce travail, nous avons présenté une campagne expérimentale d'essais sur des plaques de PET injectées (amorphe) dans les conditions proches du procédé de soufflage industriel, sous sollicitations bi-axiale non équilibré (NEB) et constant width (CW) à une température de 100°C. Les résultats expérimentaux fournissent des informations pour l'identification du modèle VHE.

Le modèle VHE, basé sur l'additivité des vitesses de déformation élastique et visqueuse développé en version orthotrope, est présenté. Un jeu de paramètre optimal du modèle a été trouvé pour lequel l'écart entre les courbes expérimentales et numérique est le plus faible pour les trois types de sollicitation (équi-bi-axial, Constant Width et non équi-bi-axial). L'identification est réalisée en utilisant un outil d'optimisation dans Matlab pour minimiser l'écart entre les courbes expérimentales et celles numériques. Le jeu de paramètres est utilisé pour simuler le soufflage libre des préformes en PET.

Il serait intéressant d'utiliser ce modèle pour une simulation par éléments finis des essais EB, CW et NEB afin de valider l'hypothèse de contrainte  $\sigma_{nn}$  constante sur la diagonale et de comparer directement la réponse du modèle aux grandeurs mesurées  $F_x$ ,  $F_y$ ,  $U_x$  et  $U_y$ .

Une seconde campagne d'essai sur le même type de plaques pour une sollicitation équi-bi-axial (EB) et Constant Width (CW) a été réalisée au synchrotron sous rayon X pour suivre l'évolution de la microstructure durant cette phase d'étirage.

Nous avons effectué des tests d'allongement avec 14 tests NEB et 3 tests CW afin d'explorer l'influence de la déformation, de la vitesse de déformation, de la température et du rapport de forme. Le nombre de test effectué trop réduit ne nous permet pas de repérer un paramètre avec une plus grande influence que les autres. Une nouvelle campagne d'essais permettra de mieux comprendre l'influence de ces paramètres. Les résultats obtenus par SAXS nous donnent des éléments assez satisfaisant sur le moment où a lieu apparition de l'orientation. Avec le test Constant Width, on a bien l'orientation qui apparait durant la phase

d'étirage. Ceci dit, nous n'avons pas d'information sur taux de cristallinité. Une autre étude WAXS permettrait de mieux observer l'orientation et l'apparition de la phase cristalline.

## Chapitre IV

# Identification des propriétés élastiques du PET

Du point de vue macroscopique, identifier les lois de comportement des matériaux solides est souvent réalisé à partir d'essais de traction simple. Cependant depuis de nombreuses années, pour mieux représenter le comportement sous sollicitations 3D, de nombreux laboratoires ont développé des machines afin de solliciter les éprouvettes de manière complexe, soit en utilisant des éprouvettes de forme complexe sur des machines simples (essais de traction sur une plaque trouée par exemple) soit en concevant des machines capables de solliciter plusieurs termes de la matrice des contraintes (traction torsion, traction bi ou tri axiale...), soit en réalisant des combinaisons des deux. C'est le cas de l'étude présentée dans ce chapitre et qui constitue la 1<sup>ère</sup> application du banc de traction bi-axiale développé au MSME.

Dans le cas du PET, les propriétés mécaniques [65] [66] [43] [22] en particulier les modules élastiques, augmentent au cours du processus de fabrication des bouteilles. Cette augmentation dépend de nombreux paramètres tels que la morphologie initiale de la préforme, le profil de température avant l'étirage, le taux d'élongation et l'élongation finale [67] [68] [69]. Par conséquent, et même dans des conditions industrielles stables, les propriétés mécaniques induites des bouteilles produites sont anisotropes, plutôt orthotropes. Pour simuler numériquement les sollicitations auxquelles peuvent être soumises les bouteilles en service à température ambiante, il est nécessaire de connaître ses modules, aux moins ceux de la surface moyenne de la bouteille. Nous présentons une démarche permettant d'identifier ces coefficients de la loi élastique orthotrope par un seul essai réalisé sur une éprouvette découpée dans la partie cylindrique d'une bouteille en PET.

Classiquement, pour les matériaux orthotropes, il serait nécessaire d'effectuer 3 essais de traction simple pour déterminer les 5 constants élastiques. Une sollicitation bi-axiale doit permettre de dégager par un seul essai les constantes de la loi de comportement. Un essai unique évite les dispersions des résultats liés à l'utilisation d'éprouvettes différentes. Dans le cas où le matériau lui-même présente de la dispersion (matériau naturel ou propriétés sensibles au procédé de fabrication) chaque essai constitue une réalisation et en multipliant les essais il est possible de construire le tenseur d'élasticité stochastique du matériau.

Nous avons réalisé une étude du PET soumis à un étirement bi-axial en petite déformation. Cette étude vise à déterminer les coefficient  $K_{ij}$  caractéristiques de la matrice d'élasticité linéaire. La démarche d'identification retenue utilise la méthode des champs virtuels. Le choix d'autant de champs virtuels que de paramètres à identifier et conduisant à un système d'équations indépendantes est un point clé de la méthode.

L'étude expérimentale a été entièrement réalisée avec le dispositif de traction bi-axial présenté dans le Chapitre II . Dans le cadre de cette étude, les essais sont réalisés à température ambiante, par conséquent le système de chauffe n'est pas utile ici.

Dans ce chapitre, nous présentons en section 1, le contexte de ce travail en évoquant les méthodes existantes pour identifier les propriétés élastiques et nous parlerons de leurs limites.



En section 2 nous présenterons le choix délicat des quatre champs virtuels qui rend difficile l'identification des propriétés dues à la symétrie du champ de déformation. Une étude numérique est présentée pour optimiser la forme de l'éprouvette en y plaçant un trou. La position de ce trou est étudiée afin d'obtenir la meilleure précision possible sur la mesure des cinq paramètres du tenseur élastique orthotrope.

Dans la section 3, nous présentons la campagne d'essai de traction effectuée avec le banc de traction. Ici, l'appareil est utilisé pour effectuer un essai de traction équi-baxiale (EB) sur un échantillon de PET et la corrélation d'images numériques est utilisée pour déterminer le champ de déformations hétérogènes.

Enfin, en section 4, la méthode du champ virtuel est utilisée pour l'identification. Les résultats de l'étude seront exposés et comparés à d'autres méthodes. Puis, dans la dernière section nous concluons sur cette partie et nous évoquons la modélisation stochastique du tenseur d'élasticité du PET.

## IV.1 Contexte de l'étude

Pouvoir simuler avec précision la performance des bouteilles sans avoir à les fabriquer serait d'une grande aide pour l'industrie ; par exemple en simulant les essais de résistance à l'écrasement, à la mise sous pression. Ces sujets ont été abordés depuis longtemps [69] [70] mais nécessite une connaissance précise de la géométrie et notamment de la distribution des épaisseurs ainsi que des propriétés mécaniques induites. Dans le cas de bouteilles avec une grande partie cylindrique, l'hypothèse d'un comportement homogène et orthotrope peut être faite dans cette zone cylindrique. Il est donc nécessaire d'identifier cinq paramètres élastiques  $E_z$ ,  $E_\theta$ ,  $\nu_{\theta z}$ ,  $\nu_{z\theta}$  et  $G_{\theta z}$  pour caractériser le comportement élastique du PET sachant que  $E_z$ ,  $E_\theta$ ,  $\nu_{\theta z}$  et  $\nu_{z\theta}$  sont liés par une relation de symétrie : au final, ce sont donc quatre paramètres indépendants qui sont recherchés. Jusqu'ici, l'identification de ces paramètres nécessitent plusieurs essais. En effet, il est très difficile d'identifier tous ces paramètres en un seul essai de traction uni-axial.

Une première méthode classique pour réaliser l'identification élastique consiste à découper trois échantillons d'une bouteille dans les trois directions différentes à savoir  $0^\circ$ ,  $45^\circ$  et  $90^\circ$  qui représentent respectivement la direction circonférentielle, la direction orientée de  $45^\circ$  et la direction longitudinale (Figure 58). Puis, de réaliser un essai de traction uni-axial sur ces trois échantillons permet d'obtenir six informations et une méthode des moindres carrés [71] permet l'identification de quatre paramètres élastiques indépendants.

En fin de compte, trois essais uni-axiaux sont nécessaires à l'établissement complet de cette loi de comportement. Il est indispensable de disposer de trois éprouvettes différentes pour cette méthode, et si le matériau présente de la dispersion d'une éprouvette à l'autre, il est impossible de quantifier cette dispersion.

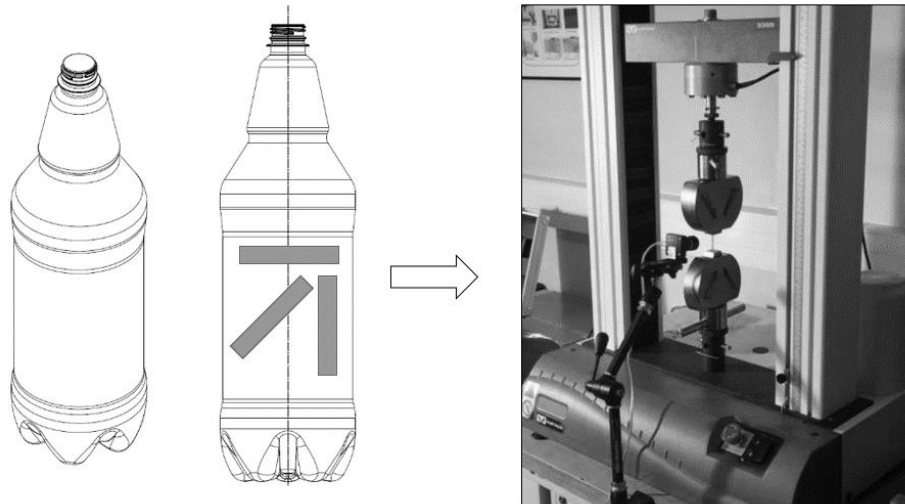


Figure 58 - Forme de la bouteille et approche classique d'identification à partir de trois échantillons de traction uni-axiale coupés dans les directions 0, 90 et 45° (à gauche) ; échantillon transversal pour l'essai de tension bi-axiale (à droite).

Une autre méthode d'identification, développée par Thanh Tung Nguyen durant sa thèse [13] ne nécessite que deux essais. Un premier essai de traction uni-axial hétérogène est réalisé sur une éprouvette percée en son centre et prélevé dans le sens longitudinal ou circonférentiel pour obtenir les coefficients de Poisson  $\nu_{\theta z}$  ou  $\nu_{z\theta}$ . Mais cet essai ne permet pas de déterminer les modules  $E_z$ ,  $E_\theta$  et  $G_\theta$  (Figure 59).

Pour obtenir les modules d'élongation, un essai de soufflage est réalisé sur une bouteille. Il consiste à déformer une bouteille sous pression. Le champ de déplacement 3D permet de déterminer les deux modules d'Young dans les directions orthotropes si le coefficient de Poisson est connu à cette étape.

Cette méthode d'identification des propriétés mécaniques est basée sur la corrélation d'images numériques en 3D et la méthode du champ virtuel [72]. Avec l'essai de traction hétérogène et la détermination des modules d'Young, on peut revenir sur l'essai uni-axial avec une éprouvette trouée afin d'obtenir le module de cisaillement de la loi de comportement orthotrope. Ce processus d'identification nécessite d'effectuer deux essais différents.

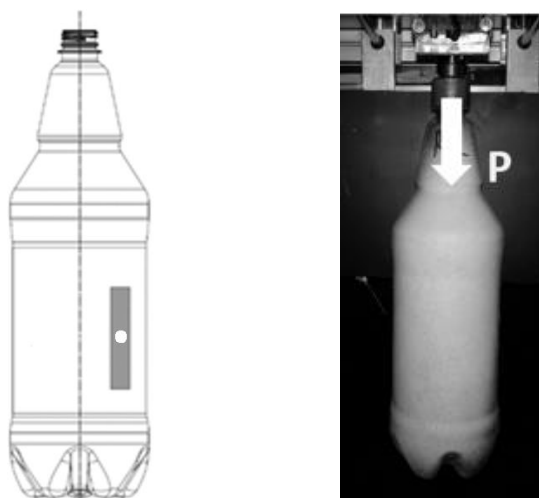


Figure 59 - Identification à partir d'un essai uniaxial avec trou et d'une bouteille déformée sous pression.

Les deux méthodes d'identification présentée ici nécessitent plusieurs essais. Cette multiplicité des échantillons ou d'essais engendre des erreurs supplémentaires sur les valeurs des caractéristiques mécaniques. A l'aide du banc bi-axial développé dans Figure 60, il est possible d'effectuer cette identification sur une éprouvette unique (Figure 60). C'est ce que nous présenterons dans les sections qui suivent.

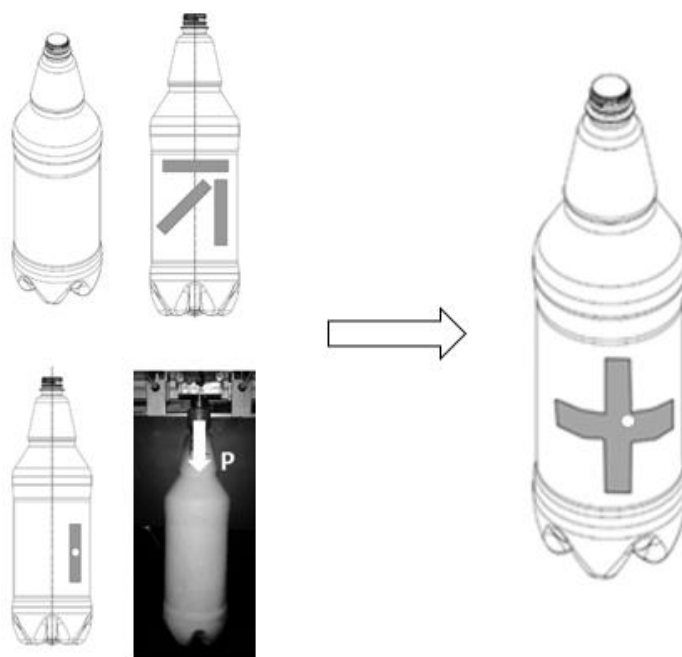


Figure 60 - Essai de traction bi-axial

## IV.2 Méthode des champs virtuels appliquée à une géométrie carrée hétérogène sous sollicitation de traction bi-axiale

Notre objectif est d'exploiter un essai de traction bi-axial sur une éprouvette cruciforme. En utilisant la corrélation d'images numériques (DIC), nous suivons le champ de déplacement sur toute la surface de l'éprouvette. Utilisée conjointement avec la méthode des champs virtuels, elle permet d'identifier les propriétés élastiques.

Il est important avant d'effectuer les essais, de discuter du choix des champs virtuels. Avec un champ de déformation homogène l'identification semble difficile du fait que les équations du système obtenu ne sont pas indépendantes. Pour éviter ce cas de figure, il est nécessaire que le champ de déformation soit hétérogène. Pour ce faire, on place un trou dans le domaine d'étude de l'échantillon. La position du trou sur l'éprouvette sera étudiée dans cette section.

### IV.2.1 Optimisation de la position du trou

Dans ce qui suit, nous présentons la méthode numérique suivie pour optimiser la position du trou définie par les coordonnées du centre  $x_c$  et  $y_c$ , en utilisant la méthode des champs virtuels avec le choix des champs de déplacement virtuel qui sera discuté.

## IV.2.2 Choix des champs de déplacement virtuel pour la simulation numérique

Rappelons les bases de la méthode des champs virtuels (VFM). En l'absence de force de volume, le principe des travaux virtuels s'écrit :

$$\int_{\partial\Omega} \vec{F}_s \cdot \vec{u}^* dS = \int_{\Omega} \boldsymbol{\sigma} : \boldsymbol{\varepsilon}(\vec{u}^*) dV \quad \forall \vec{u}^* \quad \text{IV.1}$$

Avec  $\Omega$  le domaine d'étude de l'éprouvette et  $\partial\Omega$  la frontière du domaine ;  $\boldsymbol{\sigma}$  est le tenseur des contraintes de Cauchy et  $\boldsymbol{\varepsilon}^*$  le tenseur des déformations virtuelles obtenu à partir du déplacement virtuel  $\vec{u}^*$ .

Dans le cas d'un matériau élastique orthotrope sous l'hypothèse de petites perturbations (HPP), la loi de comportement s'écrit :

$$\boldsymbol{\sigma} = \mathbb{K} : \boldsymbol{\varepsilon} \quad \text{IV.2a}$$

avec

$$[\mathbb{K}] = \begin{bmatrix} K_{xx} & K_{xy} & 0 \\ K_{xy} & K_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & G_{xy} \end{bmatrix} \quad \text{IV.2b}$$

Avec  $x$  l'axe longitudinal et  $y$  l'axe circonférentiel. Il y a donc 4 termes  $K_{ij}$  à déterminer et compte tenu de leurs expressions en fonction des modules et coefficients de Poisson, on peut remarquer que :

$$K_{xy} = \nu_{xy} \cdot K_{yy} = \nu_{yx} \cdot K_{xx} \quad \text{IV.3}$$

Commençons par exposer les difficultés que l'on rencontre pour déterminer les propriétés élastiques à partir d'un essai de traction uni-axial. Si nous effectuons un essai de traction uni-axial dans la direction  $X$  sur une éprouvette rectangulaire (longueur  $L \times$  largeur  $b \times$  épaisseur  $e$ ) et si nous utilisons deux champs de déplacements virtuels simples comme :

$$\vec{u}_1^* = x\vec{x} \Rightarrow \underline{\underline{\boldsymbol{\varepsilon}}}_1^* = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \quad \text{IV.4}$$

$$\vec{u}_2^* = y\vec{y} \Rightarrow \underline{\underline{\boldsymbol{\varepsilon}}}_2^* = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix}$$

Le principe des travaux virtuels conduit à deux relations :

$$\begin{aligned} \int_{\partial\Omega} \vec{F}_s \cdot \vec{x} \cdot x ds &= \int_{\Omega} \sigma_{xx} dS = \int_{\Omega} (K_{xx} \varepsilon_{xx} + K_{xy} \varepsilon_{yy}) dS \Rightarrow \left| \frac{FL}{V_{\Omega}} = K_{xx} \overline{\varepsilon_{xx}} + K_{xy} \overline{\varepsilon_{yy}} \right. \\ \int_{\partial\Omega} \vec{F}_s \cdot \vec{y} \cdot y ds &= \int_{\Omega} \sigma_{yy} dS = \int_{\Omega} (K_{xy} \varepsilon_{xx} + K_{yy} \varepsilon_{yy}) dS \Rightarrow \left| 0 = K_{xy} \overline{\varepsilon_{xx}} + K_{yy} \overline{\varepsilon_{yy}} \right. \end{aligned} \quad \text{IV.5}$$

Où  $\overline{\varepsilon_{xx}}$  et  $\overline{\varepsilon_{yy}}$  sont respectivement les valeurs moyennes des déformations  $\varepsilon_{xx}$  et  $\varepsilon_{yy}$ , sur l'ensemble du domaine étudié.  $V_{\Omega}$  est le volume de l'éprouvette (c'est-à-dire ici  $V_{\Omega}=L \times b \times e$ ). Et  $F$  représente la force de traction appliquée sur l'éprouvette.

Compte tenu de la remarque précédente sur le coefficient  $K_{xy}$ , la deuxième équation peut donner explicitement le coefficient de Poisson  $\nu_{xy}$ . Quel que soit le champ de déformation réel, homogène ou non, on peut évaluer le coefficient de Poisson comme le rapport des déformations moyennes :

$$\nu_{xy} = -\frac{\overline{\varepsilon_{yy}}}{\overline{\varepsilon_{xx}}} \quad \text{IV.6}$$

Cependant, cette approche ne permet pas d'obtenir les deux paramètres  $K_{xx}$  et  $K_{yy}$  dans le cas de matériaux orthotropes. Un troisième champ de déplacement virtuel doit être considéré pour fournir une troisième équation indépendante des deux précédentes. Ceci est impossible à partir d'un essai de traction homogène et reste très difficile pour un champ de déformation hétérogène donné en utilisant un trou central dans l'échantillon à cause des symétries qui conduisent à  $0=0$  pour la plupart des idées simples qu'on pourrait avoir pour ce troisième champ. Dans ces conditions, obtenir aussi une quatrième équation afin d'identifier tous les paramètres sur un seul essai de traction semble être « mission impossible ».

Dans le cas d'un essai de traction bi-axial, on peut bénéficier de deux mesures de force  $F_x$  et  $F_y$  et choisir une forme optimisée pour qu'un champ de déplacement virtuel suffise à donner des équations indépendantes afin d'identifier les 5 paramètres en un seul essai.

Pour réaliser une simulation qui nous permettrait de trouver la meilleure position du trou, nous proposons une géométrie carrée pour l'éprouvette (côté  $a$  x épaisseur  $e$ ) avec un trou circulaire (rayon  $R$ ) à des positions aléatoires (Figure 61a).

Pour identifier les cinq modules élastiques ( $E_z$ ,  $E_{\theta}$ ,  $\nu_{\theta z}$ ,  $\nu_{z\theta}$  et  $G_{\theta z}$ ), il nous faut quatre équations indépendantes. Sur un échantillon homogène ou présentant des symétries, nous retrouvons des symétries sur les champs de déformations et le risque d'avoir une relation qui est une combinaison linéaire des autres, autrement dit, d'avoir des équations dépendantes entre elles voire trivialement vérifiées, est grand. Placer un trou dans l'échantillon, hors des axes de symétrie, nous permet d'éviter cette dépendance et d'avoir un système d'équations bien posé.

Dans le cadre de la simulation numérique, on va se limiter à l'identification des deux modules  $E_z$ ,  $E_{\theta}$  et aux coefficients  $\nu_{\theta z}$ ,  $\nu_{z\theta}$  : nous traiterons le cas de  $G_{xy}$  plus loin. L'objectif est donc de trouver un 3<sup>ème</sup> champ complémentaire aux deux champs virtuels déjà présentés dans l'équation IV.4 et qui conduisent aux deux relations :

$$\frac{F_x a}{V_{\Omega}} = K_{xx} \overline{\varepsilon_{xx}} + K_{xy} \overline{\varepsilon_{yy}}$$

$$\frac{F_y a}{V_{\Omega}} = K_{xy} \overline{\varepsilon_{xx}} + K_{yy} \overline{\varepsilon_{yy}} \quad \text{IV.7}$$

Aucune de ces deux relations ne donne le coefficient de Poisson mais il est facile d'ajouter un troisième champ de déplacement virtuel pour compléter le système de trois équations pour les trois paramètres :

$$\overline{u_3^*} = x(x-a)\overline{x} + y(y-a)\overline{y} \Rightarrow \underline{\underline{\varepsilon_3^*}} = \begin{pmatrix} 2x-a & 0 \\ 0 & 2y-a \end{pmatrix} \quad \text{IV.8}$$

Dans ce cas, le déplacement est nul sur les bords de l'éprouvette, donc les charges externes n'apparaissent pas. Les valeurs moyennes des déformations virtuelles  $\varepsilon_{xx}^*$  et  $\varepsilon_{yy}^*$  sont nulles sur l'éprouvette. Par conséquent, les déformations réelles mesurées doivent être hétérogènes sinon ce champ donnera l'équation triviale 0=0 ! De plus, elles ne doivent pas être symétriques par rapport à l'axe du carré, sinon les produits de (2x-a) ou (2y-a) avec  $\varepsilon_{xx}$  ou  $\varepsilon_{yy}$  seront également nuls. Ceci peut être obtenu en plaçant un trou dans l'éprouvette. Dans ce cas, la VFM donne cette troisième relation :

$$K_{xx} \overline{(2x-a)\varepsilon_{xx}} + K_{yy} \overline{(2y-a)\varepsilon_{yy}} + (2x-a)\overline{\varepsilon_{xx}} + K_{yy} \overline{(2y-a)\varepsilon_{yy}} = 0 \quad \text{IV.9}$$

Cette dernière équation est indépendante des deux premières relations et le triplet  $K_{xx}$ ,  $K_{yy}$  et  $K_{xy}$  peut être déterminé.

#### IV.2.2.1 Influence du bruit de mesure

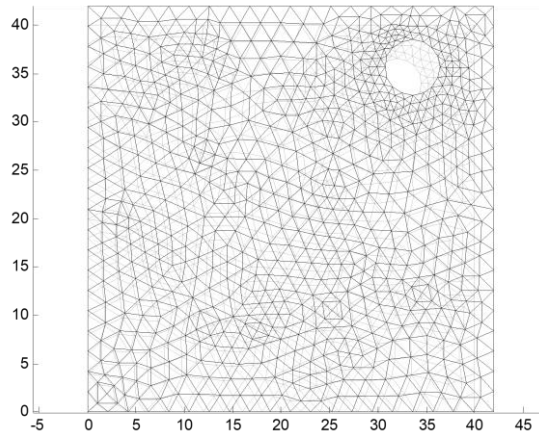
Tout d'abord, on simule par éléments finis orthotropes, l'essai bi-axial avec un trou situé aléatoirement dans l'éprouvette. On considère les paramètres suivants :  $E_1=3000\text{MPa}$  ;  $E_2=6000\text{MPa}$  ;  $\nu_{12}=0,2$  ;  $\nu_{21}=0,4$  ; on obtient ainsi une solution éléments finis de référence  $U_{EF}$ . La *Figure 61-a* montre le maillage et le déplacement imposé sur les bords. En utilisant la méthode des champs virtuels avec les 3 champs virtuels précédemment présentés pour des déformations réelles correspondant à ce déplacement  $U_{EF}$ , le système d'équations obtenu permet d'identifier parfaitement, c'est-à-dire de retrouver, les paramètres utilisés pour cette simulation sans aucun écart.

Dans la réalité les mesures ne sont jamais parfaites et pour simuler les incertitudes expérimentales, nous perturbons la solution éléments finis  $U_{EF}$  en ajoutant un bruit aléatoire:

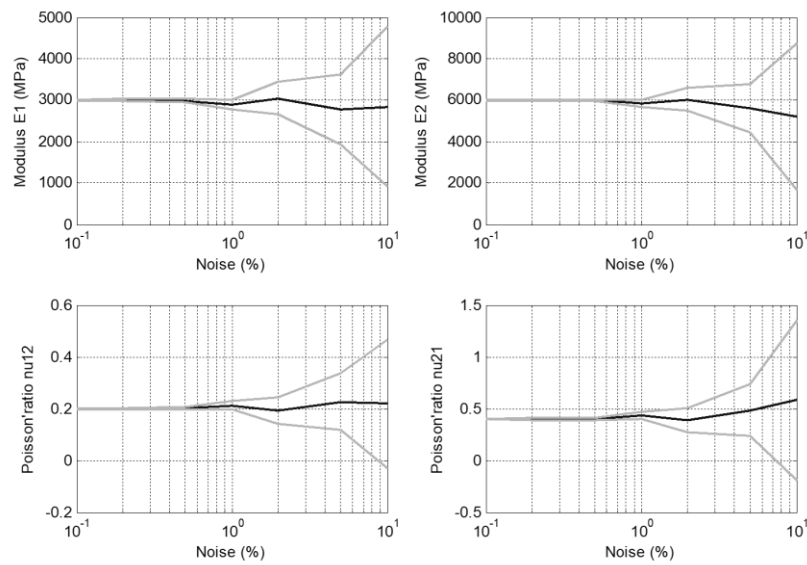
$$U_{DIC} = U_{FE} + U_{\max} \left( \text{rand} - \frac{1}{2} \right) \text{noise}\% \quad \text{IV.10}$$

Où  $U_{\max}$  est la valeur maximale des composantes du déplacement, *rand* est un champ aléatoire uniforme variant de 0 à 1 et *noise%* est le pourcentage de  $U_{\max}$  utilisé pour générer les incertitudes expérimentales. Comme la perturbation est aléatoire, l'analyse nécessite 30 réalisations pour chaque pourcentage de bruit. La valeur moyenne des paramètres modules et coefficients de Poisson ainsi que l'écart-type de chaque paramètre sont calculés et les graphiques de la *Figure 61-b* montrent l'évolution de la qualité de l'identification des paramètres du matériau en fonction du pourcentage de bruit. La moyenne est en ligne noire et la valeur moyenne plus ou moins l'écart-type, pour caractériser la dispersion de l'identification, sont représentées en lignes grisées.

On peut voir sur la *Figure 61-b* que la valeur moyenne reste acceptable même lorsque le bruit atteint 10% mais la dispersion sur les 30 identifications augmente rapidement et n'est plus acceptable après 2% de bruit aléatoire. Dans la suite, nous allons retenir la valeur de 2% pour le bruit pour l'optimisation de la position du trou dans la géométrie de l'échantillon.



(a)



(b)

Figure 61- Échantillon hétérogène bi-axial : (a) maillage initial et déformé et (b) influence du pourcentage de bruit sur la précision de l'identification

#### IV.2.2.2 Optimisation de la position du trou à partir de la méthode de Monte Carlo

Nous cherchons la meilleure position du centre du trou, caractérisée par les coordonnées  $x_c$  et  $y_c$ . Pour réaliser cette investigation, nous avons reproduit la même procédure que précédemment mais au lieu de faire varier le pourcentage de bruit, nous l'avons fixé à 2% et nous avons fait varier les coordonnées  $x_c$  et  $y_c$  du centre.

Pour un matériau isotrope, afin de briser la symétrie, on sait qu'il faut éviter de placer un trou suivant les axes de symétrie, les axes horizontaux et verticaux ainsi que les deux diagonales de l'échantillon. Dans le cas d'un matériau anisotrope avec un axe plus rigide que l'autre, il est nécessaire de faire une simulation numérique pour déterminer la zone à éviter pour la position du trou.

Nous avons déjà dit que le champ de déformation  $\varepsilon_{xx}$  et  $\varepsilon_{yy}$  ne devait pas présenter de symétrie et il est certain que placer le trou au centre du carré est une mauvaise idée avec le troisième champ de déplacement virtuel que nous avons choisi

Sur la Figure 62 nous traçons la valeur moyenne du paramètre (point noir) plus ou moins l'écart-type du paramètre (point gris). Chaque point est situé à l'emplacement  $x_c$ ,  $y_c$  du trou. 1000 réalisations de l'emplacement du trou ont été générées et en regardant les nuages de points, un point de vue spécifique

met en évidence une "vallée" où la dispersion est très élevée et les valeurs des paramètres mal estimées. Cette "vallée interdite" peut être caractérisée par l'équation  $y_c = -1.23 x_c + 44.60$  où  $x_c$  et  $y_c$  sont en mm. On peut voir que le centre du domaine carré,  $x_c = y_c = 20\text{mm}$ , se trouve sur cette ligne mais ce n'est pas le seul endroit « interdit ».

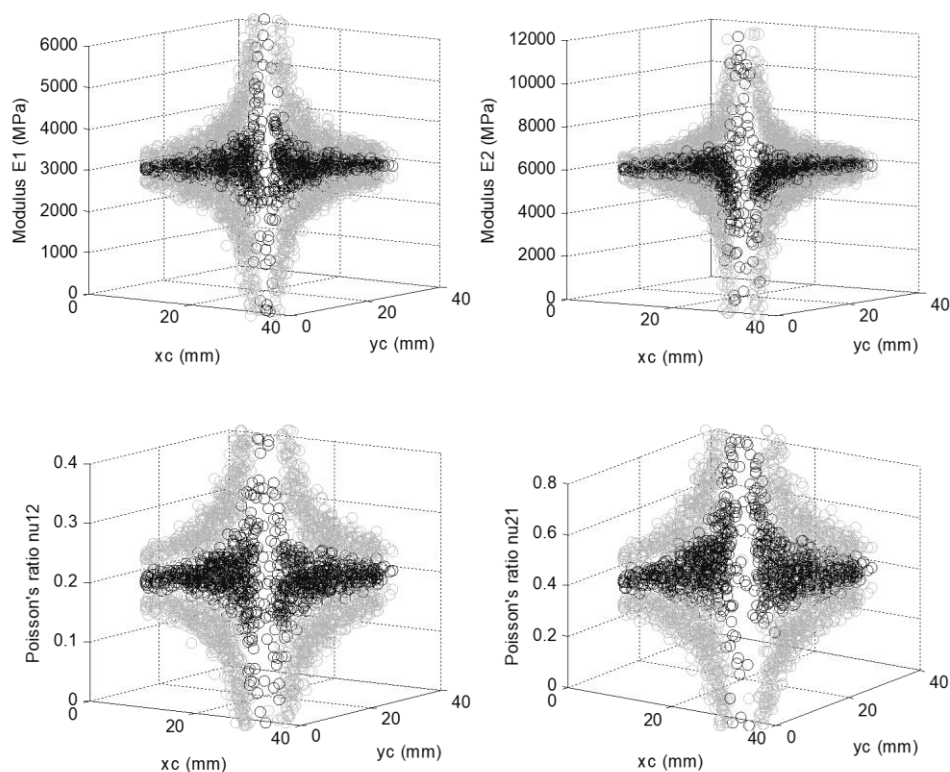


Figure 62 - Éprouvette hétérogène bi-axiale avec un trou : incertitudes en fonction de la position du trou  $x_c$  et  $y_c$ .

On peut s'étonner d'un tel résultat, si certaines positions du trou conduisent à un problème mal posé pourquoi sur cette presque diagonale ? Pourquoi une seule diagonale ? La réponse à ces questions se trouve dans l'anisotropie du matériau et dans le champ virtuel choisi.

Pour le champ virtuel choisi, l'équation (9) donne :

$$\overline{(2x-a)\sigma_{xx}} + \overline{(2y-a)\sigma_{yy}} = 0 \quad \text{IV. 11}$$

Des déplacements équi-biaxiaux sont imposés sur le bord du carré, par conséquent, les déformations  $\varepsilon_{xx}$  et  $\varepsilon_{yy}$  ont une distribution presque identique autour du trou mais les contraintes  $\sigma_{yy}$  sont certainement supérieures à  $\sigma_{xx}$  car  $E_1$  est inférieure à  $E_2$ . Dans le coin supérieur gauche ainsi que dans le coin inférieur droit du carré, les deux expressions  $(2x-a)$  et  $(2y-a)$  sont de signes opposés. Par conséquent, les deux termes du côté gauche de l'équation (9) peuvent être opposés. Ceci conduit à  $0=0$  et ne peut fournir la détermination des trois paramètres.

On note  $\alpha$  la pente de la droite, la valeur de  $\alpha$  dans le cas où  $E_1=3000\text{MPa}$ ,  $E_2=6000\text{MPa}$ , c'est-à-dire avec  $E_2=2E_1$  vaut  $\alpha = 1,23$ . Bien sûr, si le matériau est isotrope avec  $E_1=E_2$ , la pente vaut 1. Notre cas



( $E_2=2E_1$ ) est représentatif du PET étiré-soufflé et nous avons également effectué des simulations avec  $E_2/E_1 = 4$  et  $10$  (ces valeurs sont représentatives de la forte anisotropie du bois par exemple). Dans ces cas, la ligne « interdite » devient de plus en plus verticale.

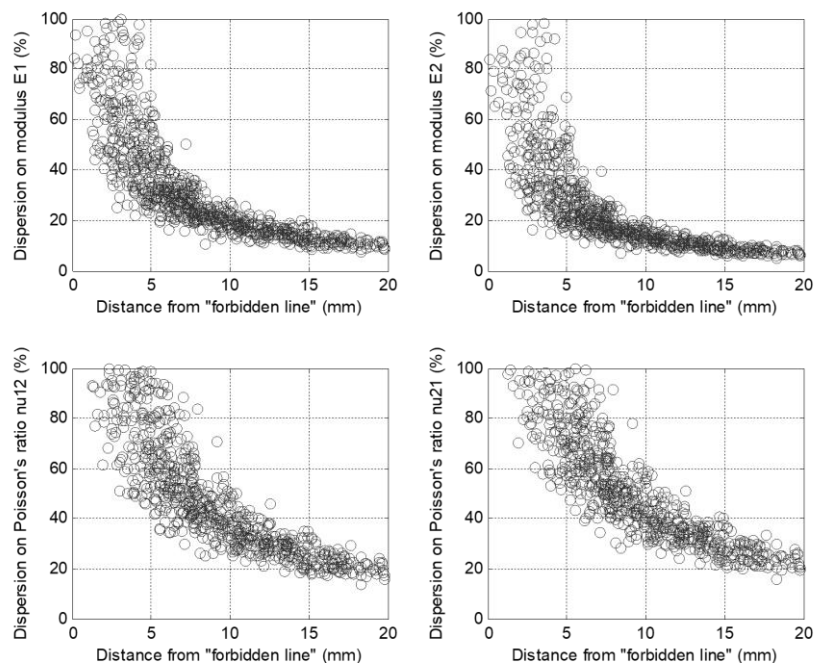


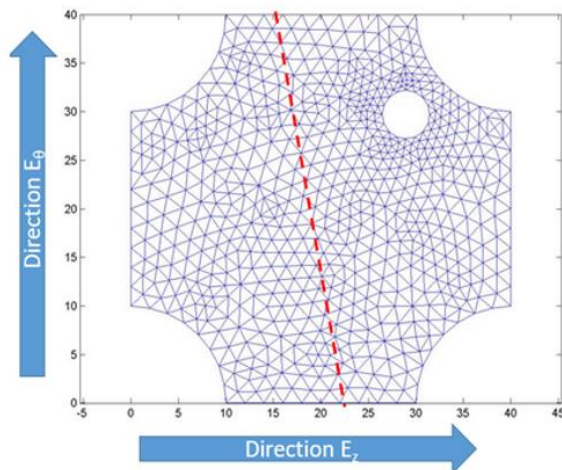
Figure 63 - Dispersion sur les 30 réalisations de l'identification pour un trou donné en fonction de la distance entre le centre du trou et la "ligne interdite".

En considérant la forme décroissante de la dispersion Figure 63 lorsque le centre du trou est loin de la "vallée interdite", on peut suggérer qu'un bon critère pour une identification précise est la distance entre le centre du trou et la droite d'équation  $y_c = -1.23 x_c + 44$ .

### IV.2.3 Géométrie réelle de l'échantillon

Dans cette section, nous présentons les essais de traction bi-axiaux réalisés sur des échantillons de PET. Pour éviter la singularité aux coins d'une éprouvette carrée, la géométrie réelle est découpée avec des quarts de cercles à chaque coin. Cette forme spécifique génère des hétérogénéités qui pourraient être suffisantes pour identifier tous les paramètres mais qui conduiront certainement à un système singulier si on ne place pas de trou afin de casser les symétries. Le trou est généré dans la région supérieure droite de l'échantillon lorsque l'axe circonférentiel correspond à l'axe vertical, pour être sûr que l'identification puisse réussir. En raison de l'orientation de l'échantillon choisi pour l'étude expérimentale, la ligne interdite va de la partie supérieure gauche à la partie inférieure droite. C'est une conséquence de la valeur plus élevée du module circonférentiel par rapport au module longitudinal.

Encore une fois, nous avons procédé à de nombreuses simulations avec un seul trou et la meilleure identification est présentée sur la Figure 64. Elle conduit au module  $E_1=3024\text{MPa}$ ,  $E_2=6009\text{MPa}$  et au coefficient de Poisson  $\nu_{12}=0,197$ ,  $\nu_{21}=0,397$  soit moins de 1% d'écart par rapport aux valeurs utilisées pour la simulation.



Légende:

--- Zone « interdite » pour la position du trou

Axe  $E_z$   $\Rightarrow$  axe X ou axe 1  
 Axe  $E_\theta$   $\Rightarrow$  axe Y ou axe 2

Z, X ou 1 : direction longitudinale de la bouteille  
 $\theta$ , Y ou 2 : direction circconférentielle de la bouteille

Figure 64 - Meilleur échantillon avec un trou. La ligne interdite a une pente plus élevée que le spécimen carré pour la même anisotropie.

### IV.3 Essai de traction bi-axiale sur éprouvette hétérogène

Dans cette section, nous présentons la campagne d'essais de traction bi-axiale sur éprouvettes hétérogènes pour déterminer les propriétés élastiques du PET.

#### IV.3.1 Préparation de l'échantillon

Les éprouvettes qui ont servi à réaliser la campagne d'essai sont des éprouvettes prélevées de bouteilles soufflées par SIDEL. Ces bouteilles ont été obtenues depuis des préformes injectées dans des conditions similaires, ce qui signifie que toutes les préformes sont réputées posséder la même épaisseur et les mêmes dimensions. De plus, les conditions de température et de vitesse sont identiques pour chaque mise en forme de bouteille (Figure 65). Par conséquent, toutes les éprouvettes sont découpées à partir de bouteilles qui sont supposées avoir la même répartition d'épaisseur et les mêmes propriétés mécaniques. En effet, pour des préformes réputées identiques, c'est le procédé qui induit la distribution de matières et les taux d'élongations donc la répartition d'épaisseur et les propriétés mécaniques peuvent ainsi présenter une dispersion.

Une modélisation CAO de l'éprouvette de dimension 90 x 90 mm<sup>2</sup> avec des bras de 20 mm d'épaisseur a été réalisée. Le rayon des quarts de cercle des coins de l'éprouvette est de 3,5mm. Et enfin, le trou qui génère de l'hétérogénéité du champ de déformation a pour diamètre 5 mm Figure 66a. La dimension de la zone utile de l'échantillon est de 55x55 mm<sup>2</sup>, après installation de l'éprouvette dans le dispositif de traction.

Seule la partie cylindrique de la bouteille nous intéresse Figure 66c. Après avoir recouvert les bouteilles de peinture blanche et d'un mouchetis noir qui sert à l'analyse de la déformation par corrélation d'images, on isole et on déroule cette partie cylindrique pour qu'elle soit plane. La forme finale est obtenue par découpe jet d'eau à partir du modèle CAO Figure 66b. Dans une bouteille, nous pouvons découper 3 éprouvettes.



Figure 65- Soufflage des bouteilles SIDEL

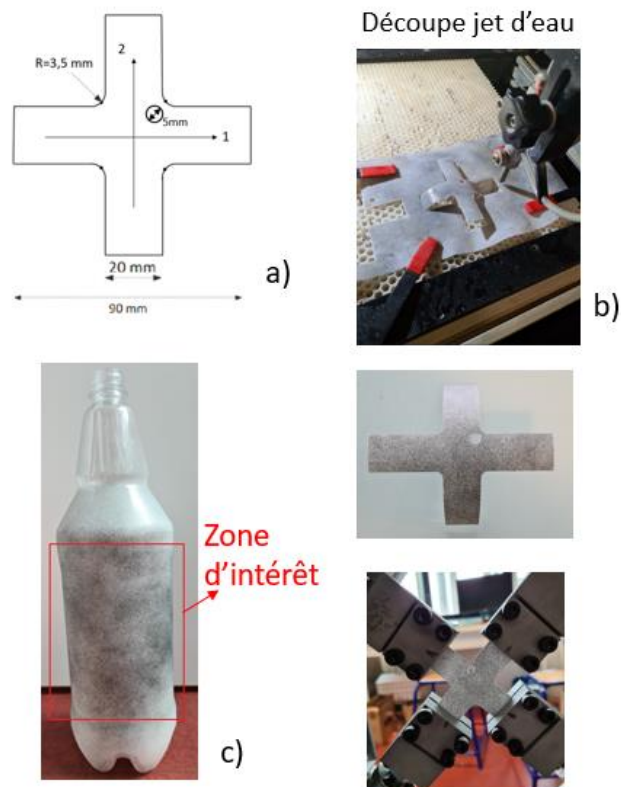


Figure 66 - Procédure de découpe des éprouvettes bi-axiales a) Schéma de l'éprouvette, b) Eprouvette découpée par jet d'eau et installation de l'éprouvette sur le banc de traction bi-axial, c) Zone de prélèvement de l'éprouvette d'une bouteille

### IV.3.2 Essai de traction bi-axiale

Les essais ont été réalisés sur la machine de traction bi-axiale présentée dans le Chapitre II . Un équipement complémentaire est installé composé d'une caméra pour capturer des images pendant l'étirement Figure 67 et d'un système d'éclairage à LED.

La caméra située devant l'échantillon, permet de capturer des images pendant la déformation du matériau. Les images sont analysées avec le logiciel VIC2D pour déterminer les champs de déplacement et de déformation par corrélation d'images. Dans la présente étude, un essai équi-bi-axial a été réalisé sur une éprouvette découpée dans des bouteilles en PET.

Le dispositif de traction est piloté en déplacement. Les déplacements des quatre actionneurs sont égaux et ont été réglés à des pas de 0,01mm avec une vitesse de 0,001mm/sec. Des images de la surface de l'éprouvette à des étirements croissants ont été enregistrées à chaque déplacement de 0,02mm par direction.

Pour supprimer la courbure de l'échantillon dû à la forme initiale de la bouteille, on impose une pré-étirement de 0,02mm avant le début de l'essai.

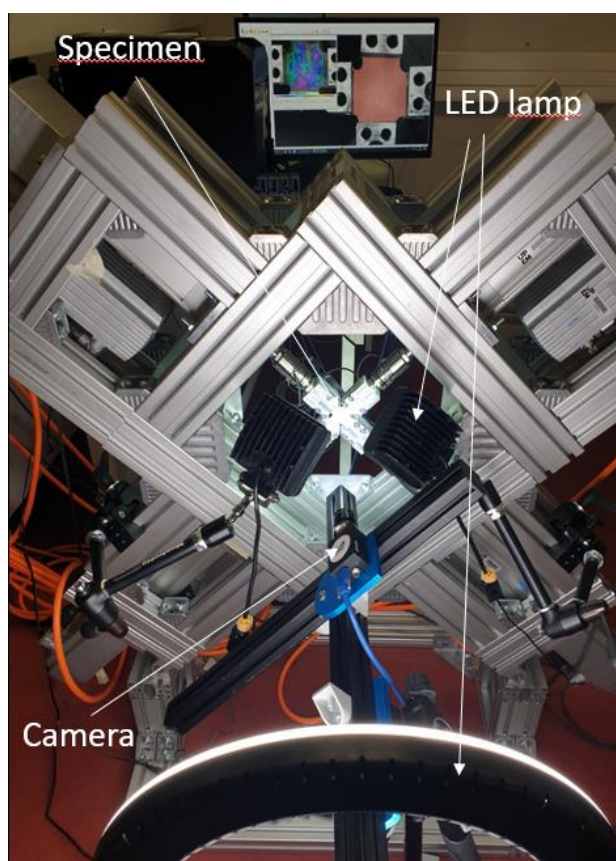


Figure 67 - Machine d'essai bi-axial et équipement d'acquisition d'image

La valeur de la force est relevée à chaque pas de déplacement. On constate que la force dans la direction X est inférieure à la force en direction Y Figure 68. En effet, l'axe X correspond à l'axe longitudinal de la bouteille avec un module d'Young plus petit que pour l'axe circonférentiel.

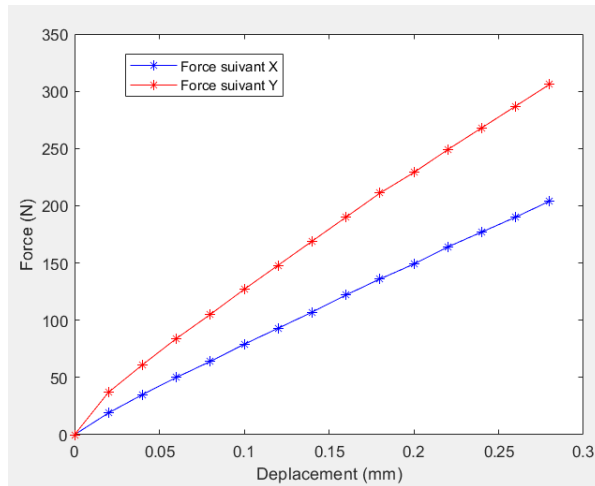


Figure 68 - Forces à chaque pas de déplacements

### IV.3.3 Système de corrélation d'images numériques (DIC)

Les échantillons sont tout d'abord recouvert d'une peinture blanche marqué de motif en peinture noire appelé mouchetis. Cela conduit à un champ gris aléatoire. Le système de corrélation consiste à faire correspondre les niveaux de gris entre deux images différentes d'une zone donnée. Chaque image correspondant à différents niveaux de déformation. La taille des mouchetis doit être inférieure à la taille du pixel de l'image afin d'améliorer le contraste de l'image. L'éclairage uniforme de la surface de l'échantillon est assuré par des lampes LED. La caméra est fixée sur un support réglable, incliné d'un angle de 45° pour avoir une vue de l'échantillon dans une position plus naturelle avec un axe horizontal et un axe vertical. Le logiciel VIC-2D est ensuite utilisé pour le processus de corrélation. Le logiciel traite les images et nous permet d'extraire un fichier Excel avec les coordonnées et les déplacements pour chaque image.

Avec le fichier Excel généré par VIC-2D, on peut obtenir un quadrillage régulier. Un remaillage est nécessaire à partir du quadrillage VIC-2D, qui sera plus exploitable pour l'utilisation de la méthode des champs virtuels Figure 69. Une interpolation du champ de déplacement sur le nouveau maillage est nécessaire.

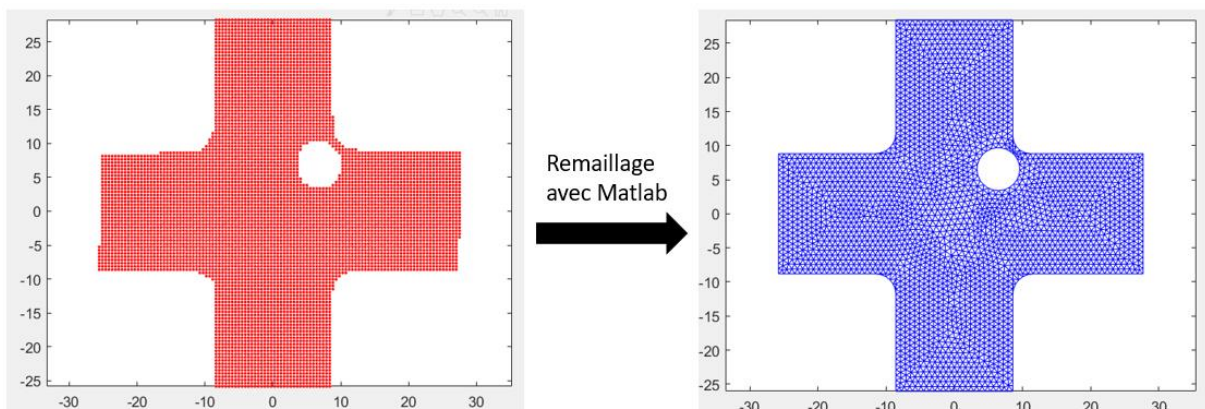


Figure 69 - Remaillage sur MATLAB du maillage VIC-2D

La Figure 70 montre les composantes typiques du champ de déplacement, les composantes U et V sont égales à 0 au centre de l'échantillon. On peut voir que dans les deux bras horizontaux U est négatif à gauche et positif à droite alors que c'est dans le bras inférieur que V est négatif et le bras supérieur positif. Ceci est

typique d'un étirement bi-axial. De plus, ces deux composantes deviennent irrégulières près du trou qui génère un cisaillement et brise la symétrie. Il est donc également possible d'utiliser un quatrième champ de déplacement virtuel au voisinage de ce trou afin d'identifier le module de cisaillement  $G_{xy}$  et de compléter les caractéristiques du matériau.

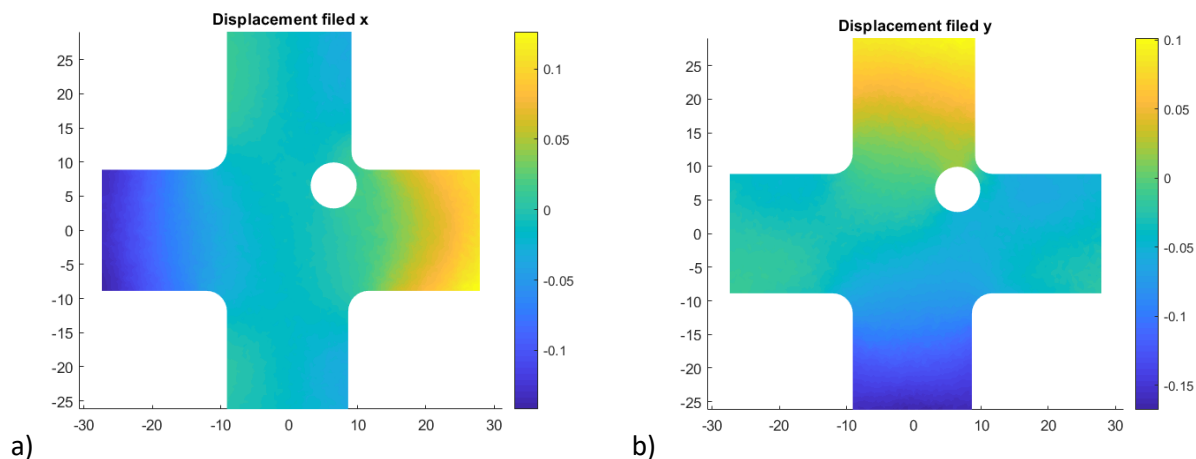


Figure 70 - Champ de déplacement bi-axial issu de VIC-2D (a) déplacement horizontal  $U$  et (b) déplacement vertical  $V$

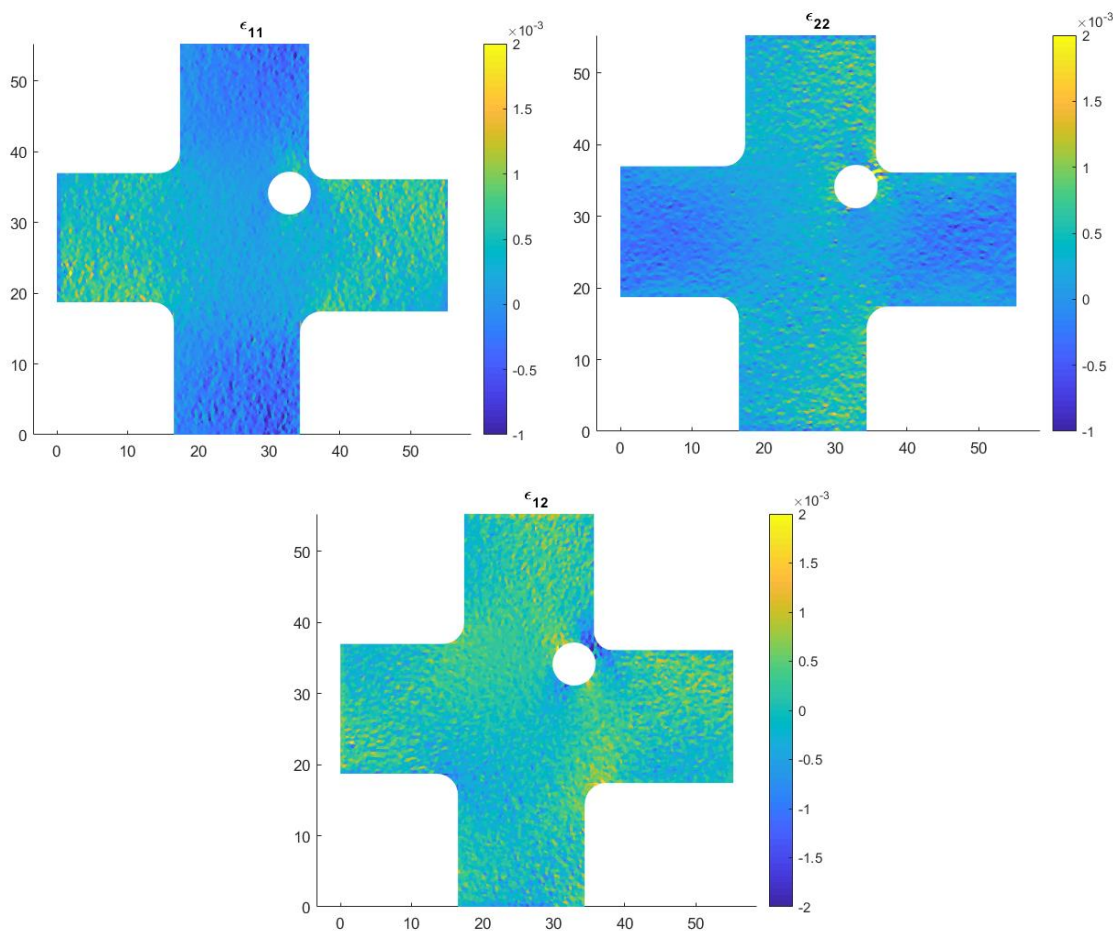


Figure 71 - Champ de déformation bi-axial à partir des données expérimentales VIC-2D

A partir du champ de déformation en cisaillement de la Figure 71, on peut voir que la déformation  $\varepsilon_{xy}$  n'est pas partout égale à 0. On constate que le cisaillement est localisé sur les coins arrondis de la géométrie de l'éprouvette et autour du trou. On peut également remarquer que la déformation  $\varepsilon_{xx}$  est élevée dans les bras horizontaux tandis que  $\varepsilon_{yy}$  est élevée dans les bras verticaux : ces champs de déformation permettront d'identifier tous les modules  $E_x$ ,  $E_y$  et les coefficients de Poisson mais la détermination de  $G_{xy}$  peut être difficile en raison de la petite taille de la région où le cisaillement se produit.

Avec les valeurs expérimentales de la force obtenues avec LabVIEW et la déformation obtenue à partir du champ de déplacement interpolé, utilisé dans la méthode des champs virtuels, on obtient les valeurs des propriétés recherchées.

#### IV.3.4 Choix des champs de déplacements virtuels pour l'identification

Pour identifier les cinq paramètres élastiques (dont 4 seulement sont indépendants), on a besoin de quatre champs de déplacements virtuels. Les trois premiers champs choisis sont ceux présentés en section IV.2, qui sont pour rappel :

$$\vec{u}_1^* = x\vec{x} \Rightarrow \underline{\underline{\varepsilon}}_1^* = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \quad \text{IV.12}$$

$$\vec{u}_2^* = y\vec{y} \Rightarrow \underline{\underline{\varepsilon}}_2^* = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad \text{IV.13}$$

$$\vec{u}_3^* = x(x-a)\vec{x} + y(y-x)\vec{y} \Rightarrow \varepsilon_3^* = \begin{pmatrix} 2x-a & 0 \\ 0 & 2y-a \end{pmatrix} \quad \text{IV.14}$$

Pour le choix des champs  $\vec{u}_4^*$  nous présentons deux idées pour augmenter l'effet du cisaillement. En effet, il faut noter que le trou génère des hétérogénéités de contraintes dans une petite région autour du trou et ailleurs dans l'éprouvette, les contraintes sont quasi constantes.

- La première idée d'avoir non pas un seul trou mais plusieurs trous sur l'éprouvette carrée pour s'assurer d'avoir plus de zones cisillées a été écartée car la multitude de trous dans une éprouvette semble compliquée pour l'exploitation des résultats et l'utilisation du logiciel de corrélation d'image VIC-2D. En effet, plus il y a de trous moins il y a de zones mouchetées sur l'échantillon pour étudier le déplacement. La présence de trous induit un manque d'information.
- La seconde idée est de profiter de la présence du trou pour choisir un champ de déplacement virtuel  $\vec{u}_4^*$  situé autour du trou pour déterminer le module de cisaillement  $G_{xy}$ . Plusieurs positions  $x_o$ ,  $y_o$  du centre de cette zone ont été testées et les meilleurs résultats sont obtenus en localisant le champ dans la zone entre le coin arrondi de la géométrie et le trou.

Afin d'équilibrer la contribution des deux composantes  $\varepsilon_{xx}$  et  $\varepsilon_{yy}$  par rapport à la composante  $\varepsilon_{xy}$ , nous choisissons un quatrième champ de déplacement qui se concentrera près du trou et qui est défini comme suit :

$$\varepsilon_{xy}^* = 1 \quad \text{if } 1 - \frac{(x-x_o)^2 + (y-y_o)^2}{d^2} \geq 0$$

$$\varepsilon_{xy}^* = 0 \quad \text{if } 1 - \frac{(x-x_o)^2 + (y-y_o)^2}{d^2} < 0 \quad \text{IV.15}$$

$x_o$  et  $y_o$  sont les coordonnées du centre du domaine circulaire où nous appliquons la VFM et  $d$  est la distance entre le centre du cercle qui délimite cette région (voir Figure 72). Afin de déterminer les champs de déformation virtuels  $\varepsilon_{xx}^*$  et  $\varepsilon_{yy}^*$ , nous devons intégrer ce champ, ce qui conduit à une forme générale :

$u^* = Cy + A$  et  $v^* = (2 - C)x + B$ . Le choix des constantes A, B et C donne plusieurs solutions pour u et v. On retient  $A = -x_0$ ,  $B = -y_0$  et  $C = 1$  ce qui donne :

$$\left. \begin{aligned} u^* &= y - y_0 \\ v^* &= x - x_0 \end{aligned} \right| \text{ si } \varepsilon_{xy} > 0 \text{ et } u^* = v^* = 0 \text{ hors du domaine} \quad \text{IV.16}$$

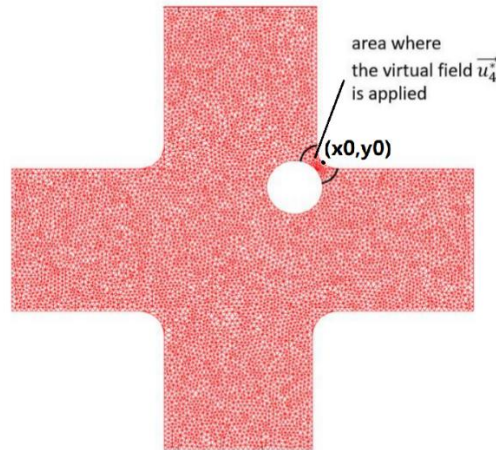


Figure 72 - localisation du 4ème champ, il faut éviter de centrer la zone sur le trou au risque d'obtenir une 4ème équation triviale  $0=0$

Il faut noter que le champ de déplacement virtuel est discontinu à la limite de la zone sélectionnée et que des valeurs positives ou négatives élevées de déformations virtuelles apparaîtront sur le cercle qui limite la zone (distribution de Dirac). Néanmoins, ce champ de déplacement peut être utilisé pour obtenir la quatrième équation nécessaire.

On peut aussi considérer que le principe des travaux virtuels est appliqué au disque de rayon  $d$  autour de  $x_0, y_0$ .  $\Omega$  est donc le disque et  $\partial\Omega$  le cercle de rayon  $d$ . Dans ce cas, le terme des travaux virtuels des efforts internes s'écrit :  $\int_{\Omega} \underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\varepsilon}}^* dV = \int_{\Omega} 2\sigma_{xy} \varepsilon_{xy}^* dV = 2V_{\Omega} G_{xy} \overline{\varepsilon_{xy}}$  où  $\overline{\varepsilon_{xy}}$  représente la moyenne des déformations réelles dans le cercle. Le 2<sup>nd</sup> terme, le travail virtuel des forces de bord fait apparaître :

$$\int_{\partial\Omega} \overline{F_s} \cdot \vec{u}^* dA = \int_{\partial\Omega} (\underline{\underline{\sigma}} \vec{n}) \cdot \vec{u}^* dA \quad \text{IV.17}$$

Où la normale au cercle s'écrit avec des composantes :

$$\left. \begin{aligned} n_x &= \frac{x - x_0}{d} \\ n_y &= \frac{y - y_0}{d} \end{aligned} \right| \Rightarrow (\underline{\underline{\sigma}} \vec{n}) \cdot \vec{u}^* = \frac{(x - x_0)(y - y_0)(\sigma_{xx} + \sigma_{yy}) + d^2 \sigma_{xy}}{d} \quad \text{IV.18}$$

Ainsi on voit que l'intégrale sur le contour du disque fait intervenir  $\sigma_{xy}$  et donc  $G_{xy}$  mais aussi  $\sigma_{xx}$  et  $\sigma_{yy}$  et donc les modules  $E_x$  et  $E_y$  et les coefficients de Poisson.



## IV.4 Résultats et discussion

### IV.4.1 Résultats

Une quarantaine d'essais biaxiaux ont été réalisés afin d'identifier avec précision les paramètres du matériau. Les modules d'élasticité, les coefficients de Poisson et le module de cisaillement sont résumés dans la Figure 73.

Les valeurs moyennes des paramètres sont données dans le Tableau 1 et on peut voir que le module d'Young longitudinal  $E_z = 3250\text{MPa}$ , est presque la moitié du module circonférentiel  $E_\theta$ . Des proportions inverses sont identifiées pour les coefficients de Poisson correspondants.

Les dispersions d'un échantillon à l'autre pour les paramètres  $E_z$ ,  $E_\theta$ ,  $\nu_{\theta z}$ ,  $\nu_{z\theta}$  et  $G_{z\theta}$  sont respectivement : 8%, 12%, 24%, 18% et 55%. Une discussion plus détaillée sur la forte dispersion des mesures du module de cisaillement  $G_{z\theta}$  est présentée dans une prochaine sous-section.

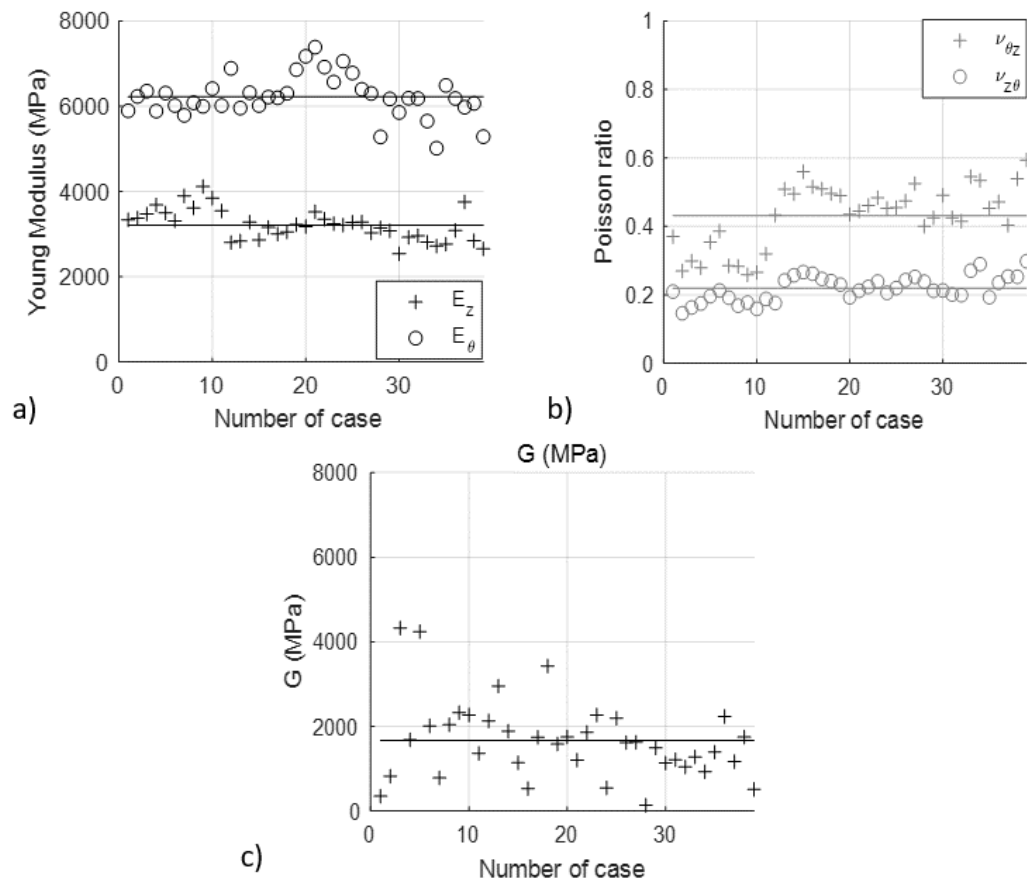


Figure 73 a) Module d'Young ; b) Coefficients de Poisson ; c) Module de cisaillement.

### IV.4.2 Discussion sur les modules d'Young et les coefficients de Poisson

La dispersion sur  $E_z$  est plus faible que celle sur  $E_\theta$  : ceci a déjà été remarqué dans [73]. La raison en est que la vitesse de déformation dans la direction longitudinale, pendant le processus industriel de l'ISBM, est donnée par la tige d'allongement. Sa vitesse est mieux contrôlée que l'effet de la pression de l'air sur la vitesse de déformation. Par conséquent, les variations du module longitudinal induites d'une bouteille à l'autre sont plus faibles que les variations du module circonférentiel.

Le Tableau 4 donne également les valeurs moyennes de ces deux modules obtenus par différentes méthodes. Dans la méthode 1, nous réalisons l'approche classique en coupant trois éprouvettes à 0°, 45° et 90° de la bouteille pour réaliser des essais de traction uni-axiaux. La méthode 2 est présentée dans [16]. Dans cette méthode, tout d'abord, l'un des rapports de Poisson est identifié à partir d'un essai de traction uni-axial sur une éprouvette plane avec un trou. Ensuite, les modules sont mesurés à l'aide d'une corrélation d'images numériques 3D de bouteilles soufflées avec une pression interne. Ces deux étapes donnent  $E_z$ ,  $E_\theta$ ,  $\nu_{\theta z}$  et  $\nu_{z\theta}$ . Enfin, en revenant sur l'essai de traction avec le trou, on peut évaluer le module de cisaillement à partir de l'hétérogénéité autour du trou. En comparant les valeurs moyennes des modules  $E_z$  et  $E_\theta$ , on peut voir que notre méthode fournit des résultats qui se situent entre les méthodes 1 et 2. C'est également le cas pour les coefficients de Poisson.

Les paramètres de notre méthode sont identiques aux valeurs identifiées par les méthodes classiques : les différences entre les méthodes sont inférieures à la dispersion de chaque méthode. Par exemple, la différence maximale sur  $E_z$  est de 4,7% alors que la dispersion entre les échantillons de notre méthode est de 8%.

*Tableau 4 Comparaison des propriétés orthotropes à partir de différentes méthodes*

	$E_z$ (MPa)	$E_\theta$ (MPa)	$\nu_{\theta z}$	$\nu_{z\theta}$	$G_{z\theta}$ (MPa)
Méthode 1	3150	5900	0.41	0.22	1250
Méthode 2	3480	6340	0.42	0.23	1500
Notre méthode	3250	6200	0.42	0.22	1660

#### IV.4.3 Discussion sur le module de cisaillement

En considérant le cas particulier du module de cisaillement, on peut remarquer que sa valeur varie d'une méthode à l'autre (32% de différence entre la méthode 1 et notre méthode). Le module de cisaillement met également en évidence une très grande dispersion (jusqu'à 55%) dans notre méthode. Ceci est certainement dû à la combinaison de deux raisons.

Tout d'abord, une raison matérielle : la rigidité au cisaillement est fortement liée à la façon dont les chaînes macromoléculaires du PET s'étirent dans les directions longitudinale et circonférentielle pour générer une sorte de réseau rectangulaire. La microstructure pourrait être modélisée comme un matériau orthotrope tressé à fibres longues, où le module de cisaillement dépend de la friction entre les fibres et des propriétés de la matrice.

Deuxièmement, l'impact de la méthode : la zone où le cisaillement se produit est petite (autour du trou et dans le coin) et la mesure DIC ne fournit pas assez de données pour réduire les incertitudes expérimentales. De plus, les déformations  $\varepsilon_{xx}$  et  $\varepsilon_{yy}$  qui interviennent dans le calcul de  $G_{xy}$  ne sont pas très bien représentées dans le voisinage du cercle et finalement, cela conduit à une grande dispersion du comportement sur la rigidité cisaillement obtenue par la 4<sup>ème</sup> équation qui fait intervenir les modules  $E_z$  et  $E_\theta$  et les coefficients de Poisson obtenus par les 3 premières équations de la VFM. Améliorer cette détermination est une des perspectives de ce travail.

Néanmoins, cette méthode permet de déterminer l'ensemble des paramètres élastiques d'un matériau supposé orthotrope. Dans une suite à cette étude, nous de nombreux essais peuvent conduire à la validation de la récente modélisation stochastique du tenseur élastique [74] [75].

## IV.5 Microstructure des bouteilles de l'étude

Un échantillon de bouteille placé sur le dispositif de traction sans chargement imposé, a été étudié par diffraction aux rayons X. Sur la Figure 74-a on peut observer la faible épaisseur du plus grand cercle qui met en évidence la cristallisation du PET lors du procédé ISBM. Sur la Figure 74-b Une bosse de diffusion/diffraction est visible pour un angle d'environ 4.2°.

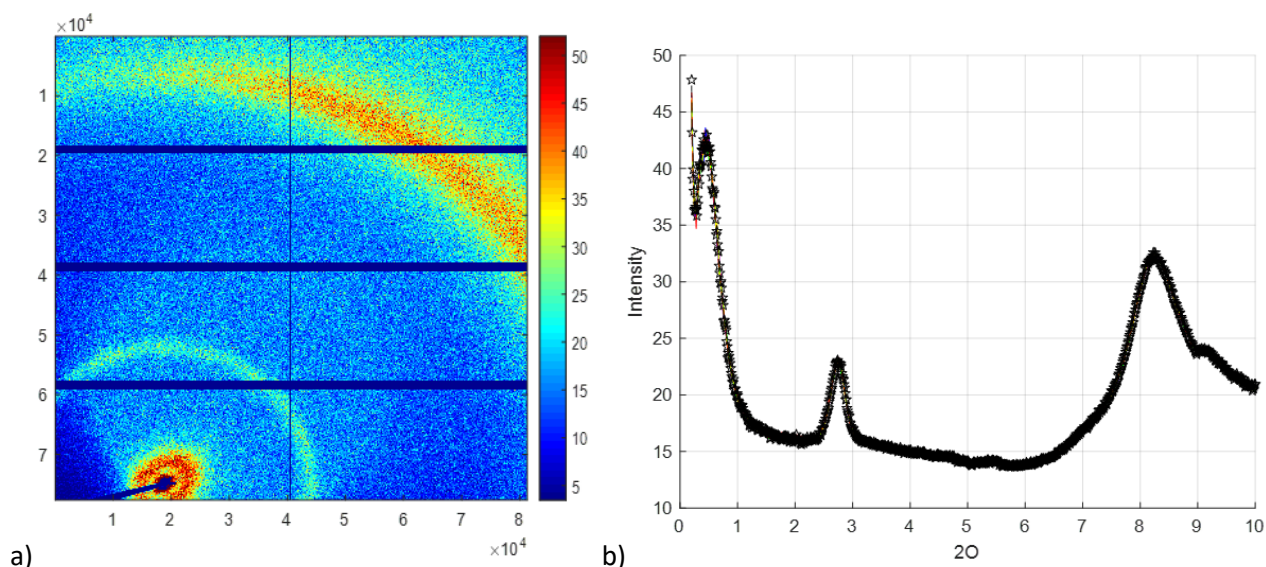


Figure 74 – a ) Cliché SAXS de la microstructure d'un échantillon de bouteille, b) Courbe de diffusion

On peut aussi noter que le petit « cercle » au voisinage du passage du faisceau est légèrement elliptique ce qui semble dire qu'une orientation préférentielle des macromolécules est présente. Ce qui est confirmé par le plus grand cercle qui n'est pas de même intensité sur toute la périphérie.

Cette orientation est à rapprocher de l'anisotropie du matériau de la bouteille dont le rapport des modules est de l'ordre de 2.

## IV.6 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons présenté une méthode pour identifier l'ensemble des propriétés dans le plan d'un modèle élastique orthotrope à partir d'un essai unique réalisé sur une machine d'essai de traction bi-axiale. Ceci est nécessaire, en cas de dispersion des propriétés du matériau, si l'on veut construire un tenseur élastique stochastique prenant en compte les corrélations entre les paramètres.

Pour mener à bien cette approche, des essais de traction bi-axiale hétérogènes ont été réalisés sur des éprouvettes cruciformes avec un trou. Les éprouvettes cruciformes sont découpées dans la partie cylindrique des bouteilles PET dans une région supposée orthotrope. Pour renforcer l'hétérogénéité et briser la symétrie, un trou est placé sur l'éprouvette.

L'emplacement du trou a été choisi à partir d'une analyse numérique de la sensibilité de l'identification en fonction de la position du trou. La méthode des champs virtuels a été appliquée pour procéder à l'identification des propriétés mécaniques orthotropes. Le conditionnement du système a été discuté et la position du trou optimisée par la méthode de Monte Carlo.

Quarante essais bi-axiaux ont été réalisés pour quantifier la dispersion des paramètres du matériau. Le choix des trois premiers champs de déplacement virtuels a conduit à un système bien conditionné qui permet d'identifier les propriétés élastiques des bouteilles, comme dans le travail [75]. En comparant les valeurs identifiées avec des approches plus classiques, cette méthode avec un seul essai fournit les mêmes résultats pour chaque paramètre : la différence entre les approches est inférieure à la dispersion de chaque approche. Ceci valide la méthode.

Le choix du quatrième champ de déplacement virtuel nécessaire à l'identification du module de cisaillement est spécifique en raison de la petite zone où se produit le cisaillement pour un tel essai. Une forme originale située dans la région environnante a été choisie et validée par comparaison avec les valeurs du module de cisaillement identifiées à partir d'essais de traction avec un échantillon coupé à 45° des directions orthotropes. Compte tenu de l'importante dispersion sur ce module, il y a un bon accord entre les deux méthodes.

Dans les travaux futurs, puisque toutes les propriétés mécaniques induites présentent une certaine dispersion, une description probabiliste de la loi de comportement orthotrope sera étudiée. Comme tous les paramètres sont identifiés à partir du même échantillon, il est possible d'étudier s'ils sont ou non corrélés comme le montrent certains travaux théoriques.

# Conclusion et perspectives

Les travaux menés ont eu pour objectif de contribuer à la compréhension du comportement mécanique et microstructural du PET durant le processus de fabrication des bouteilles afin de parvenir à terme, à prédire les caractéristiques mécaniques et géométriques finales de la bouteille soufflée. Pour arriver à cet objectif, nous devons maîtriser les relations entre les paramètres du procédé versus la microstructure et de la microstructure versus les propriétés mécaniques. Cette maîtrise nécessite de réaliser des essais de caractérisation mécanique et microstructurale durant la phase d'étirage. Un banc de traction bi-axiale a été conçu pour reproduire des sollicitations variées représentatives du procédé de soufflage. Ce dispositif a dû répondre à plusieurs exigences pour reproduire les conditions industrielles à l'échelle du laboratoire. Tout d'abord, le banc permet d'atteindre des vitesses de déformation de l'ordre de  $10s^{-1}$  pour des déformations supérieures à 200%. Un système de chauffe peut être intégré pour élever la température de l'éprouvette jusqu'à 150°C. Ce banc a aussi et surtout été pensé pour la caractérisation microstructurale du PET durant la phase d'étirage. Une attention particulière a été apportée sur le dimensionnement du banc pour s'intégrer sur la ligne SWING du synchrotron. Ce dispositif peut être utilisé dans plusieurs domaines du fait de ces caractéristiques, avec son système de chauffe modulable et la possibilité de concevoir de nouveaux mors en fonction de l'utilisation souhaitée.

Le banc de traction bi-axiale a été utilisé pour l'étude de plaque en PET. Ces dernières ont été obtenues à partir de granulés injectés sur la presse à injection du PIMM. Ces plaques sont découpées en forme d'éprouvettes en croix et optimisées afin d'atteindre le niveau de déformation nécessaire pour que l'étape d'identification soit caractéristique du procédé. Les éprouvettes ont servi, d'une part à une caractérisation mécanique en appliquant une traction bi-axiale non équilibrée (NEB) et une déformation plane (constant width CW) afin d'identifier le modèle visco-hyperélastique développé par Luo [63] en minimisant l'écart entre les courbes expérimentales et celles obtenues par simulation numérique. Un jeu de paramètres du modèle capable de reproduire le comportement mécanique du PET en prenant en compte les différentes sollicitations bi-axiales a été déterminé, qui nous permet d'avoir une bonne représentation des résultats des essais. Avec ces paramètres on arrive à un écart moyen entre les courbes expérimentales et numériques inférieures à 10%.

Cette étude ne prend pas en compte la variation de température durant la déformation de l'éprouvette. Il apparaît clair que la variation de température dans l'éprouvette est non négligeable pour des déformations élevées. Cette augmentation de température doit être prise en compte dans le processus d'identification qui doit être couplé à la résolution du problème thermique d'auto-échauffement de l'éprouvette.

De plus, l'hypothèse sur la contrainte  $\sigma_{nn}$  supposée constante le long de la diagonale de l'éprouvette doit être validée. Par exemple, en utilisant ce modèle pour une simulation éléments finis des essais EB, CW et NEB afin de comparer directement avec les grandeurs mesurées  $F_x$ ,  $F_y$ ,  $U_x$  et  $U_y$  et surtout pour vérifier l'homogénéité des contraintes sur la diagonale.

D'autre part, les éprouvettes ont servi à la caractérisation microstructurale en appliquant une traction équi-bi-axiale (EQ) et une déformation plane (CW) afin de suivre l'évolution de la microstructure par rayonnement X sur la ligne SWING du synchrotron. Cette étude a été entreprise pour comprendre le lien entre les paramètres de procédé et la microstructure. Autrement dit, comprendre l'influence des différents

paramètres du procédé (vitesse de déformation, température ...) sur l'organisation microstructurale. Le nombre de tests réalisés ne nous permet pas de conclure là-dessus. La durée de l'installation du dispositif de traction sur la ligne SWING et le réglage des paramètres a été allongée à cause des difficultés techniques rencontrées. Ces essais nous apportent des éléments de réponse sur le moment où a lieu la cristallisation. Sur les clichés SAXS d'un essai CW, on voit apparaître une orientation durant la période de déformation. Cette étude doit être complétée par une analyse WAXS pour mieux observer l'orientation des chaînes durant la phase de déformation. Une réflexion sur l'encombrement du banc est en cours afin de trouver des astuces pour rapprocher l'éprouvette au plus près du récepteur pour permettre des essais WAXS.

Actuellement, on dispose d'un modèle VHE qui permet de bien représenter le comportement mécanique du PET. A plus long terme, il est envisagé de coupler ce modèle avec une cinétique de cristallisation afin de prédire les propriétés de la bouteille finale.

Dans la dernière partie, on a utilisé un modèle élastique orthotrope pour identifier les propriétés macroscopiques de la bouteille soufflée. L'enjeu de cette étude a été de trouver un moyen d'identifier toutes les propriétés à partir d'un essai unique pour limiter les dispersions liées à l'utilisation de plusieurs éprouvettes. Des essais de traction bi-axiale hétérogènes ont été réalisés sur des éprouvettes cruciformes avec un trou. La position du trou a fait l'objet d'une analyse numérique afin de localiser l'emplacement idéal pour éviter une symétrie géométrique, afin d'utiliser la méthode des champs virtuels de manière optimale. Quatre champs de déplacement virtuels sont nécessaires pour obtenir les quatre paramètres du tenseur d'élasticité. La détermination du module de cisaillement a fait l'objet d'une analyse plus approfondie. Les zones de l'éprouvette où se situe le cisaillement est assez maigre, on a alors localisé le champ virtuel dans la zone la plus cisailée.

Une étude probabiliste sur les propriétés est à envisager afin de déterminer si oui ou non ces quatre propriétés sont corrélées. La littérature récente sur la modélisation stochastique des tenseurs d'élasticité présente une argumentation très mathématique pour justifier que les termes  $K_{11}$ ,  $K_{12}$  et  $K_{22}$  serait couplés alors que  $K_{33}$  (ou  $G_{xy}$ ) serait statistiquement indépendant des 3 autres. Nos résultats d'essais ne vont pas vers cette conclusion.

# Bibliographie

- [1] «<https://www.spa.be/fr/inspiration-conseils/histoire-de-spa>,» [En ligne].
- [2] Y. R. Bowden P.B., Deformation mechanisms in crystalline polymers, *Journal of material sciences*, 9, (1974),2034-2051..
- [3] Auriemma F. Corradini P., De Rosa C., Guerra G., Patraccone V., Di Dino G., «On the mesomorphic form of poly (ethyleneterephthalate),» *Macromolecules*, vol. 25, pp. 2490-2497, 1992.
- [4] Geil P. H. , «Crystal Structure, Morphology, and Orientation of Polyester, Handbook of Thermoplastic Polyesters, Chapter 3, Edited by Stoyko Fakirov, Volume 1,» 2002.
- [5] Daubeny, R. D. P., Bunn, C. W., & Brown, C. J., «The crystal structure of polyethylene terephthalate. Proceedings of the royal society of London. Series A.,» *Mathematical and Physical Sciences*, vol. 226:1167, pp. 531-542, 1954.
- [6] Baranov, V. G., Kenarov, A. V., & Volkov, T. I., «Morphology and kinetics studies of spherulitization of polyethylene terephthalate.,» *In Journal of Polymer Science Part C: Polymer Symposia*, vol. 30:1, pp. 271-281, 1970.
- [7] Ball, R. C., Doi, M., Edwards, S. F., & Warner, M, «Elasticity of entangled networks,» *Polymer*, vol. 22:8, pp. 1010-1018, 1981 .
- [8] ComBette P., Ernoult I.,, *Physique des polymères*, Paris: Herman, 2005.
- [9] Gorlier E., «Caractérisation rhéologique et structurale d'un pet. application au procédé de bi-étirage soufflage de bouteilles,» *Thèse de doctorat, ENSMP*, 2001.
- [10] Alvarado Chacon, F., Brouwer, M. T., & Thoden van Velzen, «Effect of recycled content and rPET quality on the properties of PET bottles, part I: Optical and mechanical properties,» *Packaging Technology and Science*, vol. 33:9, p. 347–357, 2020.
- [11] Malhab, N. B., & Régnier, G, «Influence of the microinjection moulding process on the crystalline orientation and morphology of semicrystalline polymers,» *In AIP Conference Proceedings. American Institute of Physics*, vol. 1353:1, pp. 820-825, 211.
- [12] Chevalier, L., Luo, Y. M., Monteiro, E., & Plantamura, B., «Strain field measurement on 3D surfaces: Application to petaloid base of PET bottles under pressure.,» *International Polymer Processing*, vol. 25:2, pp. 93-108, 2010.
- [13] Chevalier, L., Luo, Y. M., & Monteiro, E., «Strain Field Measurement on 3D Surfaces.».
- [14] Grédiac M., Pierron F., *The Virtual Fields Method*, 2012.

- [15] Grédiac, M., Toussaint, E., & Pierron, F. , «Special virtual fields for the direct determination of material parameters with the virtual fields method. 2—Application to in-plane properties,» *International Journal of Solids and Structures*, Vols. %1 sur %22707-2730, p. 39:10, 2002.
- [16] Grédiac, M., Toussaint, E., & Pierron, F., «Special virtual fields for the direct determination of material parameters with the virtual fields method. 3. Application to the bending rigidities of anisotropic plates,» *International Journal of Solids and Structures*, Vols. %1 sur %22401-2419, p. 40:10, 2003.
- [17] Grédiac, M., Toussaint, E., & Pierron, F., «Special virtual fields for the direct determination of material parameters with the virtual fields method. 1—Principle and definition,» *International Journal of Solids and Structures*, vol. 39:10, pp. 2691-2705, 2002.
- [18] Anumula, N., Menary, G., Yan, S., Nixon, J., & Martin, P., «Processing-property relations from biaxial deformation of PET (polyethylene terephthalate),» *In AIP Conference Proceedings*, vol. 1896:1, 2017.
- [19] Anumula, V. S. N., «Prediction of Process-induced Mechanical Properties for Stretch Blow Moulding of PET Bottles,» Queen's University Belfast. Faculty of Engineering and Physical Sciences, 2018.
- [20] Gorlier, E., Haudin, J. M., & Billon, N. , «Strain-induced crystallisation in bulk amorphous PET under uni-axial loading,» *Polymer*, vol. 42:23, pp. 9541-9549, 2001.
- [21] Picard, M., «Évolution de la microstructure d'un PET lors du bi-étirage soufflage; corrélation au durcissement structural,» Doctoral dissertation, École Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2008.
- [22] Marco Y., «Caractérisation Multi-Axiale du Comportement et de la Micro-Structure d'un Semi-Cristallin: Application au Cas du P.E.T.,» 2003.
- [23] Quandalle, G., «Étude et modélisation mécanique de la cristallisation induite par la déformation des polymères: caoutchouc naturel réticulé et PET,» Doctoral dissertation, Paris Sciences et Lettres (ComUE), 2017.
- [24] Piorkowska, E., & Rutledge, G. C., *Handbook of polymer crystallization*, John Wiley & Sons, 2013.
- [25] Halary, J. L., «Les mouvements moléculaires dans le PET,» *Matériaux & Techniques*, vol. 99:4, pp. 417-426, 2011.
- [26] Cherri, A., Iliopoulos, I., Régnier, G., Brulé, B., Lé, G., & Tencé-Girault, S., «Thermal and Crystallization Properties of the Alternated Tere/Iso PEKK Copolymer: Importance in High-Temperature Laser Sintering,» *ACS Applied Polymer Materials*, vol. 4:4, 2022.
- [27] Menager, C., Guigo, N., Martino, L., Sbirrazzuoli, N., Visser, H., Boyer, S. A., ... & Combeaud, C. , «Strain induced crystallization in biobased Poly (ethylene 2, 5-furandicarboxylate)(PEF); conditions for appearance and microstructure analysis,» *Polymer*, vol. 158, pp. 364-371, 2018.



- [28] Buffeteau, T., Desbat, B., Pézolet, M., & Turllet, J. M, «Mesure de l'orientation des polymères en dichroïsme linéaire infrarouge par modulation de polarisation: procédure expérimentale et analyse quantitative,» *Journal de chimie physique*, vol. 90, pp. 1467-1489, 1993.
- [29] Stribeck, N., X-ray scattering of soft matter, Springer Science & Business Media, 2007.
- [30] Chevalier L., Marco Y., Regnier G., «Modification des propriétés durant le soufflage des bouteilles plastiques en PET,» *Mécanique & Industries*, vol. 2, n° 13, pp. 229-248, 2001.
- [31] Macro Y. , L. Chevalier and M. Chaouche,, «WAXD study of induced crystallization and orientation in poly(ethylene terephthalate) during biaxial elongation,» *Polymer*, vol. 43, pp. 6569-6574, 2002.
- [32] LeBourvellec, G., Monnerie, L., & Jarry, J. P., «Amorphous orientation and induced crystallization in uniaxially stretched poly (ethylene terephthalate glycol),» *Polymer*, vol. 27:6, pp. 856-860, 1986.
- [33] Vigny, M., Tassin, J. F., Gibaud, A., & Lorentz, G., «Study of the molecular structure of PET films obtained by an inverse stretching process. Part I: Constant speed drawing of amorphous films,» *Polymer Engineering & Science*, vol. 37:11, pp. 1785-1794, 1997.
- [34] Salem, D. R., «Microstructure development during constant-force drawing of poly (ethylene terephthalate) film,» *Polymer*, vol. 39:26, pp. 7067-7077, 1998.
- [35] Chevalier L., Linhone C., Regnier G., «Induced crystallinity during stretch-blow moulding process and its influence on mechanical streng of poly (ethylene terephthalate) bottles,» *Plastics, Rubber and Composites*, vol. 28:8, pp. 393-400, 1999.
- [36] Blundell, D. J., MacKerron, D. H., Fuller, W., Mahendrasingam, A., Martin, C., Oldman, R. J., ... & Riekkel, C, «Characterization of strain-induced crystallization of poly (ethylene terephthalate) at fast draw rates using synchrotron radiation.,» *Polymer*, vol. 37:15, pp. 3303-3311, 1996.
- [37] Picard, M., & Billon, N. , «Microstructural evolution of PET under stretching and during stretch blow moulding,» *American Institute of Physics*, vol. 907:1, pp. 801-806, 2007.
- [38] Salem, D. R. , «Crystallization kinetics during hot-drawing of poly (ethylene terephthalate) film: strain-rate/draw-time superposition,» *Polymer*, vol. 33:15, pp. 3189-3192, 1992.
- [39] Mahendrasingam, A., et al. , «Observation of a transient structure prior to strain-induced crystallization in poly (ethylene terephthalate),» *Polymer*, vol. 41:3, pp. 1217-1221, 2000.
- [40] Pinnock, P. R., & Ward, I. M., «Stress-optical properties of amorphous polyethylene terephthalate fibres,» *Transactions of the Faraday Society*, vol. 62, pp. 1308-1320, 1966.
- [41] Marckmann, G., Verron, E., & Peseux, B. , «Finite element analysis of blow molding and thermoforming using a dynamic explicit procedure,» *Polymer Engineering & Science*, vol. 41:3, pp. 426-439, 2001.

- [42] LUO, Yun Mei, «Modélisation thermo-visco-hyperélastique du comportement du PET dans les conditions de vitesse et de température du procédé de soufflage,» Thèse de doctorat. Université Paris-Est, 2012.
- [43] Chevalier L., Luo Y. M., Monteiro E., and Menary G., «On visco-elastic modelling of polyethylene terephthalate behaviour during multiaxial elongations slightly over the glass transition temperature,» *Mechanics of Materials*, vol. 52, pp. 103-116, 2012.
- [44] Luo, Y. M., Chevalier, L., & Monteiro, E., «Numerical Simulation of the Viscohyperelastic Behaviour of PET near the Glass Transition Temperature.,» *In Key Engineering Materials*, vol. 504, pp. 1139-1144, 2012.
- [45] Chevalier L. and Marco Y., «Identification of a Strain Induced Crystallization Model for PET Under Uni- and Bi-Axial Loading: Influence of Temperature Dispersion,» *Mechanical Matter*, vol. 39, pp. 596-609, 2006.
- [46] Lin, S. B., & Ding, J. L., «Experimental study of the plastic yielding of rolled sheet metals with the cruciform plate specimen,» *International Journal of Plasticity*, vol. 11, n° 15, p. 583–604, janv 1995.
- [47] Chandran, P., & Jabarin, S., «Biaxial orientation of poly (ethylene terephthalate). Part II: The strain–hardening parameter,» *Adv Polym. Technol*, vol. 12:2, p. 119–132, 1993.
- [48] Chandran, P., & Jabarin, S., «Biaxial orientation of poly(ethylene terephthalate). Part I: Nature of the stress—strain curves,» *Adv Polym. Technol*, vol. 12:2, p. 133–151, 1993.
- [49] Buckley, C. P., Jones, D. C., «Hot-drawing of poly(ethylene terephthalate) under biaxial stress: application of a three-dimensional glass—rubber constitutive model,» *Polymer*, vol. 37, pp. 2403-2414, 1996.
- [50] Menary, G. H., et al. , «Biaxial deformation and experimental study of PET at conditions applicable to stretch blow molding. Rubber and Composites,» *Processing and Applications*, vol. 29, pp. 360-370, 2000.
- [51] Doudard C., M. Poncelet, S. Calloch, C. Boue, F. Hild, A. Galtier, «Determination of an HCF criterion by thermal measurements under biaxial cyclic loading,» *International Journal of Fatigue*, vol. 29, pp. 748-757, 2007.
- [52] Doudard, C., «Détermination rapide des propriétés en fatigue à grand nombre de cycles à partir d’essais d’échauffement,» PhD thesis, ENS Cachan, 2004.
- [53] Martin, P. J., et al., «Biaxial Characterisation of Materials for Thermoforming and Blow Moulding,» *Plastics, rubber and composites*, vol. 34:5, pp. 276-282, 2005.
- [54] G.H. Menary, C.W. Tan, E.M.A. Harkin-Jones, C.G. Armstrong, P.J. Martin, «Biaxial Deformation of PET at Conditions Applicable to the Stretch Blow Molding Process.,» *Polymer Engineering & Science*, vol. 52:3, pp. 671-688, 2012.

- [55] Tshai, K. Y., Harkin-Jones, E. M. A., & Martin, P. J. , «Performance of Hyperelastic Material Laws in Simulating Biaxial Deformation Response of Polypropylene and High Impact Polystyrene,» *Numerical Modeling of Materials Under Extreme Conditions*, pp. 199-230, 2014.
- [56] Charlès, S., & Le Cam, J. B., «Inverse identification of constitutive parameters from heat source fields: A local approach applied to hyperelasticity,» *Strain*, vol. 56:2, p. e12334, 2020.
- [57] Ferron, Gérard, «Dispositif perfectionne d'essais de traction biaxiale,» 1985.
- [58] Makinde, A., & Ferron, G. , «Makinde, A., & Ferron, G. (1988). Strain-hardening characteristics of aluminum-1050A,  $\alpha$ -(70/30) brass, and austenitic stainless steel under biaxial loading,» *Journal of testing and evaluation*, vol. 16:5, pp. 461-469, 1988.
- [59] MAKINDE, Adegboyega, «Mise au point d'un dispositif original de traction biaxiale. Applications à l'étude expérimentale de l'érouissage des métaux sous différents chemins de déformation,» Thèse de doctorat. Poitiers, 1986.
- [60] Luo, Y. M., Nguyen, T. T., Attar, H., Chevalier, L., et al., «A new biaxial apparatus for tensile tests on Poly Ethylene Terephthalate optimized specimen at stretch blow molding conditions Polymer Testing, Elsevier, 2022, pp.107676,» *Polymer Testing*, vol. 113, p. 107676., 2022.
- [61] Luo, Y. M., Nguyen, T. T., Attar, H., Chevalier, L., & Lesueur, F, «A new biaxial apparatus for tensile tests on Poly Ethylene Terephthalate optimized specimen at stretch blow molding conditions,» *Polymer Testing*, vol. 113, p. 107676, 2022.
- [62] T. T. Nguyen, «Simulation du soufflage : prédiction, par la simulation numérique, de la géométrie et des propriétés mécaniques induites par le procédé de soufflage des bouteilles en PET,» 2022.
- [63] Luo Y-M. , Chevalier L. , Monteiro E. , Yan S. , Menary G., «Simulation of the Injection Stretch Blow Molding Process: An Anisotropic Visco-Hyperelastic Model for Polyethylene Terephthalate Behavior,» *Polymer Engineering and Science, Wiley Blackwell*, vol. 60(4), pp. 823-831, 2020.
- [64] Hart-Smith, L. J. , «Elasticity parameters for finite deformations of rubber-like materials,» *Zeitschrift für angewandte Mathematik und Physik ZAMP*, vol. 17:5, pp. 608-626, 1966.
- [65] Nixon, J., Menary, G. H., & Yan, S, «Finite element simulations of stretch-blow moulding with experimental validation over a broad process window,» *International Journal of Material Forming*, vol. 10:5, pp. 793-809, 2017.
- [66] MENARY, G. H., TAN, C. W., HARKIN-JONES, E. M. A., et al. , «Biaxial Deformation of PET at Conditions Applicable to the Stretch Blow Molding Process.,» *Polymer Engineering & Science*, vol. 52:3, pp. 671-688, 2012.
- [67] MICHAELI, W., & PAPST, W., «FE-Analysis of the Two-Step Stretch Blow Molding Process,» *Society of Plastics Engineers*, vol. 1, pp. 7-11, 2004.
- [68] Martin, L., et al., «Modeling and experimental validation of the stretch blow molding of PET,» *SPE ANTEC Technical Papers, New York.*, 1999.

- [69] Schmidt, F. M., Agassant, J. F., & Bellet, M., «Experimental study and numerical simulation of the injection stretch/blow molding process,» *Polymer Engineering & Science*, vol. 38:9, pp. 1399-1412, 1998.
- [70] Chevalier, L., Linhone C., Regnier G., «Induced crystallinity during stretch-blow moulding process and its influence on mechanical strength of poly(ethylene terephthalate) bottles, Plastics rubber and composites,» *Plastics rubber and composites*, vol. 28:8, pp. 393-401, 1999.
- [71] Nguyen T. H. X., «Caractérisation de la cristallisation du PET en relation avec les propriétés mécaniques,» *Rapport de stage M2, Laboratoire MSME, Université Gustave Eiffel*, 2021.
- [72] Grédiac M. , «Comptes rendus de l'Académie des sciences. Série 2, Mécanique, Physique, Chimie, Sciences de l'univers, Sciences de la Terre, 1989,309(1)».
- [73] Nguyen T-T., Luo Y.M. , Chevalier L., Lesueur F. , «Stochastic simulation of top load test on poly(ethylene terephthalate) bottles: An experimental study on dispersion of elastic properties,» *Journal of Applied Polymer Science*, p. 50837, 2021.
- [74] Guilleminot J. and SoizeC. , «Generalized stochastic approach for constitutive equation in linear elasticity: a random matrix model,» *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, vol. 90:5, pp. 1097-0207, 2012.
- [75] Guilleminot J. and C. Soize., «On the Statistical Dependence for the Components of Random Elasticity Tensors Exhibiting Material Symmetry Properties,» *Journal of Elasticity,,* vol. 111:2, p. 109–130, 2013.
- [76] Salem, D. R, «Development of crystalline order during hot-drawing of poly (ethylene terephthalate) film: influence of strain rate,» *Polymer*, vol. 33:15, pp. 3182-3188, 1992.
- [77] Gorlier E., Agassant J.F. , Haudin J.M. ,Billon N. , «Experimental and theoretical study of uniaxial deformation of amorphous poly(ethylene terephthalate) above glass transition temperature,» *Plast. Rubber Compos*, vol. 30, pp. 48-55, 2001.
- [78] Schmidt F. M., Agassant J. F. and Bellet M., «Experimental study and numerical simulation of the injection stretch/blow moulding process, *Polymer Engineering & Science*, vol. 38, no. 9, , Sept .,» 1998.

# Annexes

## 1. Assemblage matériel Festo

### 1.1 Assemblage du vérin au moteur

Les vérins sont reliés aux moteurs via deux kits axiaux différents suivant la position du vérin dans la configuration de notre banc. Deux vérins, placés dans la partie inférieure du banc, sont reliés aux moteurs par un kit axial simple (Figure 75-a). Tandis que, les deux vérins placés dans la partie supérieure, sont reliés par un kit axial parallèle (Figure 75-b).

Le choix d'avoir deux kits différents n'a pas été fait par hasard. Dans un premier temps, la conception prévoyait quatre vérins reliés aux moteurs avec le kit axial simple. Pour des raisons d'encombrement qui seront détaillées dans la section 1.5.1, nous avons choisi de modifier la configuration en fonction des d'encombrement pour placer la machine sur la ligne SWING du synchrotron Soleil.

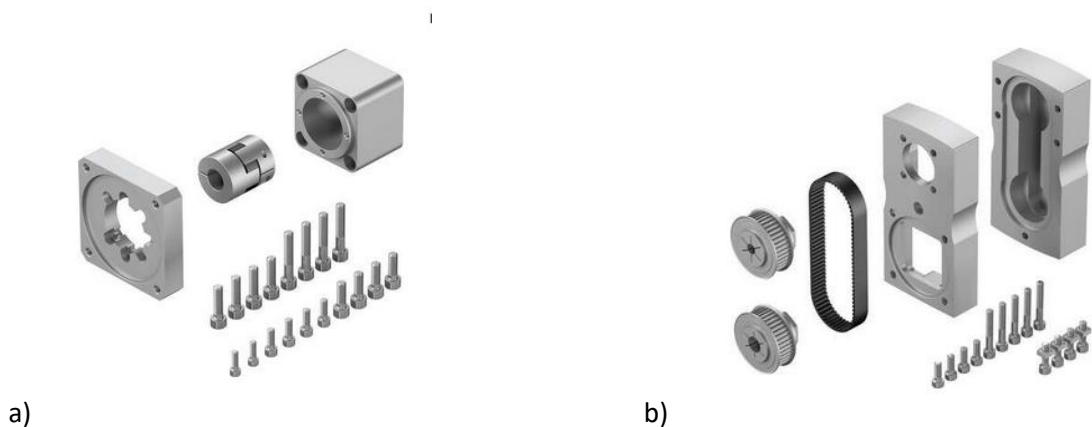


Figure 75 - a) Vue éclatée du kit axial simple ; b) Vue éclatée du kit axial parallèle

### 1.2 Branchement des variateurs (contrôleur moteur) aux moteurs

Les variateurs CMMP-AS de chez Festo peuvent piloter différents types de moteurs. Suivant le modèle de moteur relié au variateur, le branchement diffère. De plus, suivant la manière d'envoyer les commandes de déplacement aux variateurs, les raccords changent. La Figure 76 présente une vue générale des différents ports ainsi que le branchement général du variateur. Dans cette partie, nous détaillerons les branchements de chaque port du variateur.

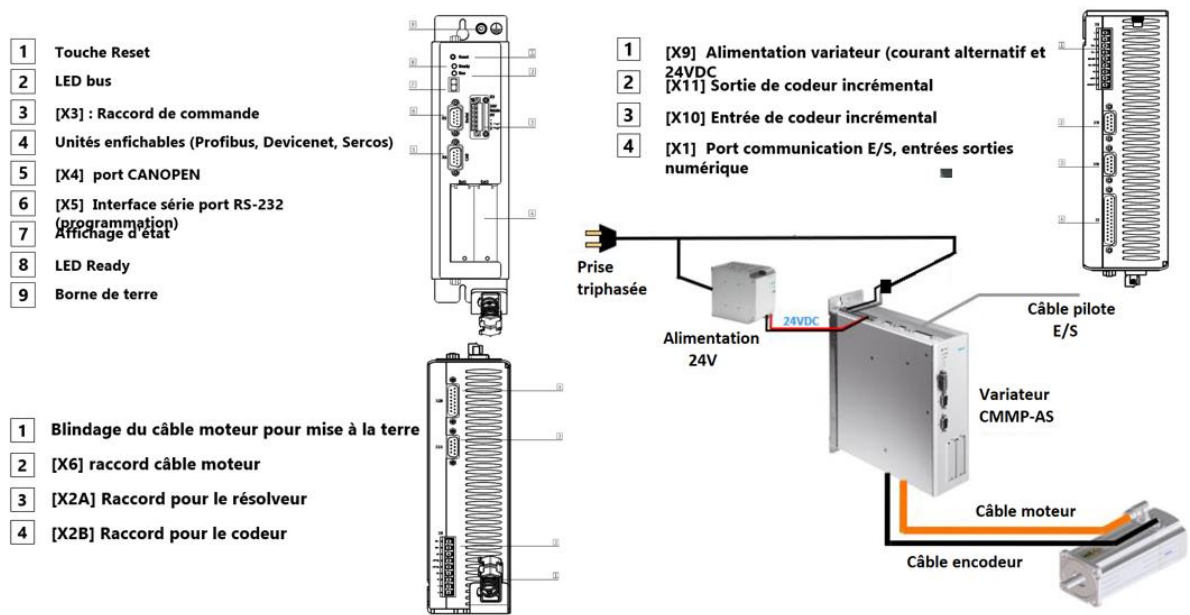


Figure 76 - Description générale du variateur CMMP-AS et Schéma du branchement général du variateur

- Étape 1 : Raccorder le câble d'alimentation/moteur

Le câble d'alimentation relie le moteur au port X6 du variateur. L'extrémité qui se branche du côté variateur est composée de plusieurs pins. Chacun des pins de couleur ce raccorde au variateur comme indiqué dans la Figure 77. Ce câble permet d'alimenter le moteur.

- Étape 2 : Raccorder le câble encodeur/résolveur

Un second câble relie le moteur au variateur au port X2. Ce câble est un encodeur/résolveur, c'est ce qui permet de changer le mouvement mécanique en un signal électronique (Figure 78-b).

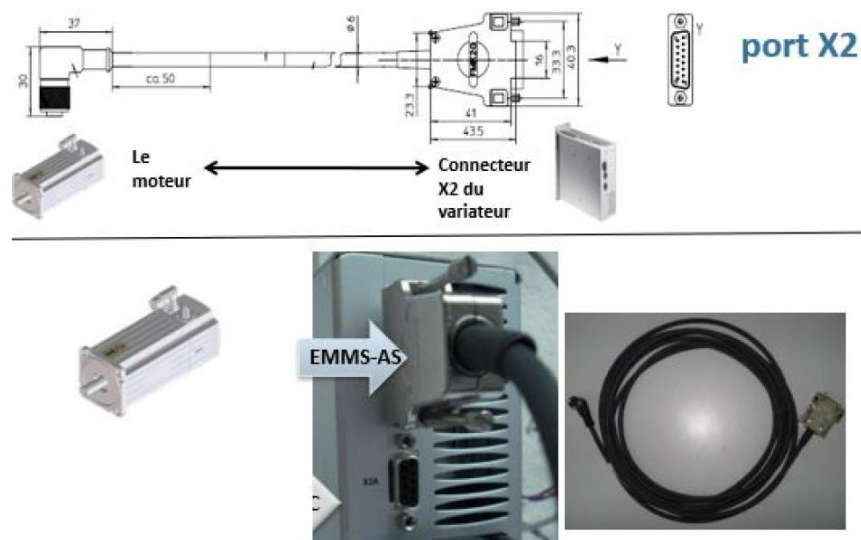


Figure 77 - Raccord câble d'alimentation/moteur

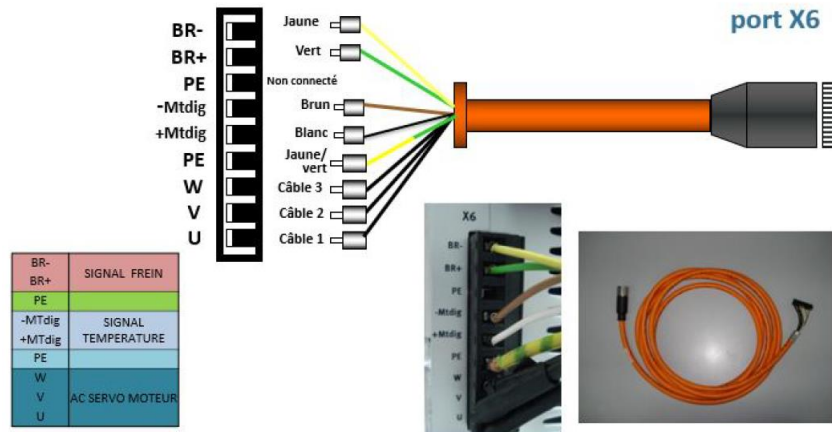


Figure 78 - Raccord câble encodeur/résolveur

- Étape 3 : Raccorder la tension d'alimentation

Les variateurs ont besoin d'être alimentés en 24V pour fonctionner. Au port X9 de chaque variateur ont été installés des câbles en respectant la documentation de la Figure 79. Les quatre variateurs sont reliés les uns aux autres, et le tout est relié à un boîtier d'alimentation 24V.

De plus, aucune résistance de freinage n'est utilisée, on doit donc relier un shunt entre les pins BR-INT et BR-CH pour que le circuit intermédiaire ait une décharge rapide.

DESIGNATION	VALEUR	SPECIFICATION
L	100.../230 VAC +/- 10%	PHASE RESEAU
N	50..60Hz	CONDUCTEUR NEUTRE RESEAU
ZK+	< 400 VDC	TENSION CIRCUIT INTERMEDIAIRE POS.
ZK-	GND_ZK	TENSION CIRCUIT INTERMEDIAIRE NEG.
BR-INT	< 460 VDC	RACCORD DE LA RESISTANCE DE FREINAGE INTERNE (POINT VERS BR-CH SI LA RESISTANCE INTERNE EST UTILISE)
BR-CH	< 460 VDC	RACCORD HACHEUR DE FREINAGE POUR RESISTANCE DE FREINAGE INTERNE CONTRE BR-INT ET RESISTANCE DE FREINAGE EXTERNE CONTRE ZK+
PE	PE	TERRE
+24V	+24 V (+6% -10%) /2.5A	ALIMENTATION 24 V POUR PARTIE COMMANDE + FREIN DE MAINTIEN + E/S
GND 24V	0V	POTENTIEL DE REFERENCE ALIMENTATION 0 V



Figure 79 - Raccord du câble d'alimentation 24V

- Étape 4 : Connexion signal commande E/S

Le câble « ligne de commande » est à relier au port X1 du variateur, c'est un connecteur multipolaire. À l'extrémité du câble, on retrouve 25 pins. Plusieurs connexions sont possibles suivant l'application.

Pour notre application, on doit relier le pin 9 et le pin 21 qui représentent respectivement la commande d'entrée et de sortie du signal au pin 18 qui permet l'alimentation en 24V.

Grâce à cette connexion, on peut envoyer des commandes aux variateurs car ceux-ci sont bien alimentés en tension.

PIN	COULEUR	DESIGNATION	VALEUR	SPECIFICATION
2	RED	Ain 0		Entrée de valeur de consigne 0, différentiel, tension d'entrée 30 V max.
15	RED/BLACK	#Ain 0	$V_{on} = \pm 10V$ $R > 30K\Omega$	
3	ORANGE	Ain1 / Din12		Entrées de valeurs de consigne 1 et 2, extrémités simples, tension d'entrée 30 V max.
16	ORANGE/BLACK	Ain2 / Din13	$V_{on} = \pm 10V$ $R > 30K\Omega$	
4	PINK	+VREF	+10V	Sortie de référence pour potentiomètre de valeur de consigne
1	BROWN	AGND	0V	Blindage pour signaux analogiques, AGND
17	PINK/BLACK	Amon 0	$\pm 10V$	Sortie de contrôle analogique 0
5	YELLOW	Amon 1	$\pm 10V$	Sortie de contrôle analogique 1
14	BROWN/BLACK	AGND	0V	Potentiel de référence pour signaux analogiques
18	YELLOW/BLACK	+24VDC	24V / 100mA	Alimentation 24 V sortie
19	GREEN/BLACK	Din 0	POS Bit 0	Sélection position Bit 0
7	LIGHT GREEN	Din 1	POS Bit 1	Sélection position Bit 1
20	LIGHT GREEN/BLACK	Din 2	POS Bit 2	Sélection position Bit 2
8	BLUE	Din 3	POS Bit 3	Sélection position Bit 3
21	BLUE/BLACK	Din 4	FG_E	Validation de l'étage de sortie
9	LIGHT BLUE	Din 5	FG_R	Entrée validation régulateur
22	LIGHT BLUE/BLACK	Din 6	END 0	Entrée capteur de fin de course 0
10	PURPLE	Din 7	END 1	Entrée capteur de fin de course 1
23	PURPLE/BLACK	Din 8	Start	Démarrer de l'opération de positionnement
11	GREY	Din 9	SAMP	Entrée grande vitesse
24	GREY/BLACK	Dout 0	24V / 100mA (READY)	Sortie ordre de marche
12	WHITE	Dout 1	24V / 100mA	Sortie à programmation libre
25	WHITE/BLACK	Dout 2	24V / 100mA	Sortie à programmation libre
13	BLACK	Dout 3	24V / 100mA	Sortie à programmation libre
6	GREEN	GND	0V	Potentiel de référence pour E/S numériques

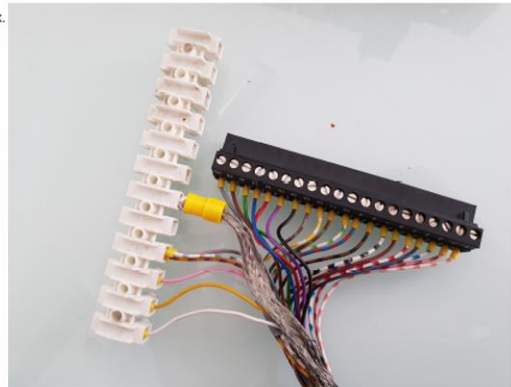


Figure 80 - Raccord de la ligne de commande

- Raccord de la borne sécurité

On a effectué un câblage sans l'utilisation de la fonction de sécurité STO « Safe Torque Off » (Figure 81) car la fonction de sécurité intégrée n'est pas requise dans nos applications

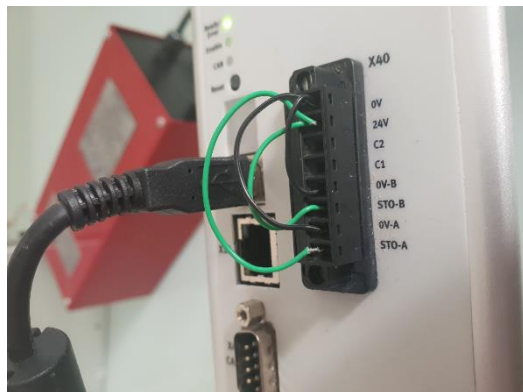


Figure 81 - Branchement borne X40 : Sécurité

Le branchement et le raccord du matériel Festo ont nécessité une longue étude de la documentation de chaque produit.



## 2. Etude paramétrique

Tableau 5 – Identification des paramètres à partir des 3 types d'essais (CW, NEB, EB) et l'ensemble de ces 3 essais

		CW	NEB	EB	CW+NEB+EB
1	$G_1$ (MPa)	0.45	3.43	3.21	0.43
2	$\Lambda_1$	1.1	1.04	1.02	1.1
3	$G_2$ (MPa)	4.15	6.37	5.56	3.03
4	$\Lambda_2$	1.42	0.85	1.02	1.5
5	$\eta_0$ (MPa.s)	0.99	0.96	0.89	1.05
6	K	4.43	4.67	4.66	4.34
7	$\alpha_1$	21.19	16.5	15.74	19.04
8	$\alpha_2$	-1.67	-1.95	-2.11	-2.4
9	$\lambda$	12.1	10.3	10.69	12.7
10	a	12.6	10.6	10.58	12.2
11	m	1.58	1.47	1.56	1.36

Identification des paramètres à partir des 3 types d'essais :

Erreur CW = 4,4% ; Erreur NEB = 3,8% ; Erreur EB = 1,4%

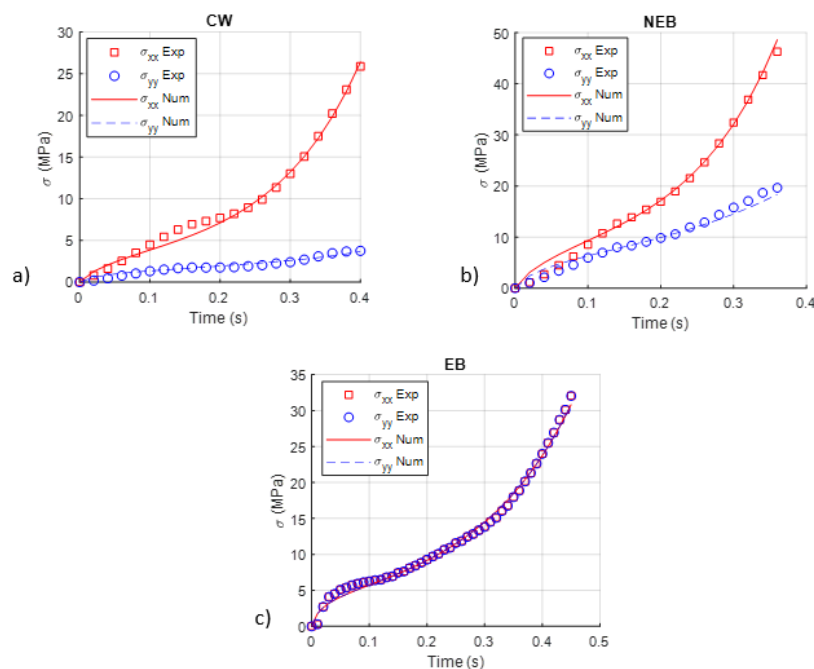


Figure 82 - Optimisation de l'identification des paramètres pour chaque essai indépendamment (CW, EB, NEB)

Identification des paramètres à partir de l'ensemble de ces 3 essais CW + NEB + EB :

Erreur CW = 7,31% ; Erreur NEB = 18,24% ; Erreur EB = 12,22%

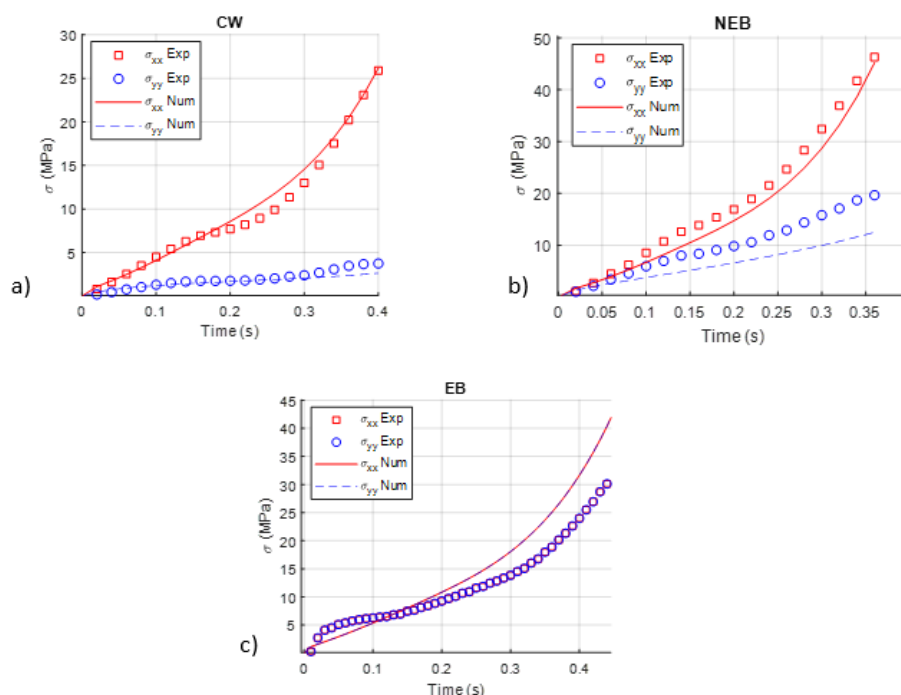


Figure 83 – Optimisation de l'identification des paramètres à partir de l'ensemble des 3 essais (CW, EB, NEB)

## Etude paramétrique

Tableau 6 – Etude paramétrique avec paramètres CW comme références (valeur augmentée)

	Erreur CW (%)	Erreur NEB (%)	Erreur EB (%)
Ref	4.40	14.26	6.20
$G_1$ (MPa) $\rightarrow$ 1.2 $G_1$	4.47	14.10	6.35
$\Lambda_1 \rightarrow$ 1.2 $\Lambda_1$	4.39	14.19	6.39
$G_2$ (MPa) $\rightarrow$ 1.2 $G_2$	7.02	1934.79	8.88
$\Lambda_2 \rightarrow$ 1.2 $\Lambda_2$	5.00	175.78	9.07
$\eta_0$ (MPa.s) $\rightarrow$ 1.2 $\eta_0$	5.82	11.76	9.61
$K \rightarrow$ 1.2 $K$	128.70	203.26	7.21
$\alpha_1 \rightarrow$ 1.2 $\alpha_1$	6.70	13.91	13.07
$\alpha_2 \rightarrow$ 1.2 $\alpha_2$	5.04	14.81	4.69
$\lambda \rightarrow$ 1.2 $\lambda$	5.24	15.48	4.79
$a \rightarrow$ 1.2a	4.40	14.26	6.20
$m \rightarrow$ 1.2m	12.61	27.34	9.88

Tableau 7 - Etude paramétrique avec paramètres CW comme références (valeur diminuée)

	Erreur CW (%)	Erreur NEB (%)	Erreur EB (%)
Ref	4.40	14.26	6.20
$G_1$ (MPa) $\rightarrow$ 0.8 $G_1$	4.41	891.23	6.06
$\Lambda_1 \rightarrow$ 0.8 $\Lambda_1$	4.41	14.33	6.05
$G_2$ (MPa) $\rightarrow$ 0.8 $G_2$	7.24	16.52	4.22
$\Lambda_2 \rightarrow$ 0.8 $\Lambda_2$	5.35	14.98	3.73
$\eta_0$ (MPa.s) $\rightarrow$ 0.8 $\eta_0$	6.58	17.22	4.08
$K \rightarrow$ 0.8 $K$	5.59	15.33	5.08
$\alpha_1 \rightarrow$ 0.8 $\alpha_1$	7.51	17.55	3.08
$\alpha_2 \rightarrow$ 0.8 $\alpha_2$	4.62	26.02	7.94
$\lambda \rightarrow$ 0.8 $\lambda$	5.09	13.01	8.54
$a \rightarrow$ 0.8 $a$	4.40	14.26	6.20
$m \rightarrow$ 0.8 $m$	16.71	13.69	31.14

Tableau 8 - Etude paramétrique avec paramètres NEB comme références (valeur augmentée)

	Erreur CW (%)	Erreur NEB (%)	Erreur EB (%)
Ref	27.33	3.82	10.35
$G_1$ (MPa) $\rightarrow$ 1.2 $G_1$	30.27	3.88	11.41
$\Lambda_1 \rightarrow$ 1.2 $\Lambda_1$	27.50	3.67	11.00
$G_2$ (MPa) $\rightarrow$ 1.2 $G_2$	32.65	4.99	13.18
$\Lambda_2 \rightarrow$ 1.2 $\Lambda_2$	27.39	4.22	11.57
$\eta_0$ (MPa.s) $\rightarrow$ 1.2 $\eta_0$	32.74	6.22	14.96
$K \rightarrow$ 1.2 $K$	31.55	3.97	11.82
$\alpha_1 \rightarrow$ 1.2 $\alpha_1$	32.21	6.71	16.68
$\alpha_2 \rightarrow$ 1.2 $\alpha_2$	25.14	5.20	7.92
$\lambda \rightarrow$ 1.2 $\lambda$	25.10	4.82	8.38
$a \rightarrow$ 1.2 $a$	27.33	3.82	10.35
$m \rightarrow$ 1.2 $m$	18.58	19.28	4.64

Tableau 9 - Etude paramétrique avec paramètres NEB comme références (valeur diminuée)

	Erreur CW (%)	Erreur NEB (%)	Erreur EB (%)
Ref	27.33	3.82	10.35
$G_1$ (MPa) $\rightarrow$ 0.8 $G_1$	24.33	4.22	9.26
$\Lambda_1 \rightarrow$ 0.8 $\Lambda_1$	27.16	4.03	9.75
$G_2$ (MPa) $\rightarrow$ 0.8 $G_2$	22.21	5.65	7.41
$\Lambda_2 \rightarrow$ 0.8 $\Lambda_2$	27.38	4.38	9.17
$\eta_0$ (MPa.s) $\rightarrow$ 0.8 $\eta_0$	22.25	7.59	5.51
$K \rightarrow$ 0.8 $K$	24.24	4.90	8.46
$\alpha_1 \rightarrow$ 0.8 $\alpha_1$	24.09	8.34	4.94
$\alpha_2 \rightarrow$ 0.8 $\alpha_2$	29.88	4.27	12.92
$\lambda \rightarrow$ 0.8 $\lambda$	30.36	4.58	12.93
$a \rightarrow$ 0.8 $a$	27.33	3.82	10.35
$m \rightarrow$ 0.8 $m$	50.21	31.27	36.67

Tableau 10 - Etude paramétrique avec paramètres EB comme références (valeur augmentée)

	Erreur CW (%)	Erreur NEB (%)	Erreur EB (%)
Ref	18.06	13.70	1.40
$G_1$ (MPa) $\rightarrow$ 1.2 $G_1$	19.76	12.74	1.58
$\Lambda_1 \rightarrow$ 1.2 $\Lambda_1$	18.11	13.44	1.39
$G_2$ (MPa) $\rightarrow$ 1.2 $G_2$	19.85	11.19	2.57
$\Lambda_2 \rightarrow$ 1.2 $\Lambda_2$	17.23	12.82	1.62
$\eta_0$ (MPa.s) $\rightarrow$ 1.2 $\eta_0$	19.40	9.66	3.73
$K \rightarrow$ 1.2 $K$	18.90	12.34	1.75
$\alpha_1 \rightarrow$ 1.2 $\alpha_1$	18.46	8.90	5.71
$\alpha_2 \rightarrow$ 1.2 $\alpha_2$	18.02	16.03	2.70
$\lambda \rightarrow$ 1.2 $\lambda$	17.78	15.80	2.34
$a \rightarrow$ 1.2 $a$	18.06	13.70	1.40
$m \rightarrow$ 1.2 $m$	16.31	28.37	11.86

Tableau 11 - Etude paramétrique avec paramètres EB comme références (valeur diminuée)

	Erreur CW (%)	Erreur NEB (%)	Erreur EB (%)
Ref	18.05	13.70	1.40
$G_1$ (MPa) $\rightarrow$ 0.8 $G_1$	16.33	14.68	1.66
$\Lambda_1 \rightarrow$ 0.8 $\Lambda_1$	18.01	13.95	1.50
$G_2$ (MPa) $\rightarrow$ 0.8 $G_2$	16.64	16.42	2.74
$\Lambda_2 \rightarrow$ 0.8 $\Lambda_2$	18.93	14.60	1.79
$\eta_0$ (MPa.s) $\rightarrow$ 0.8 $\eta_0$	17.55	18.15	4.10
$K \rightarrow$ 0.8 $K$	17.46	15.44	2.01
$\alpha_1 \rightarrow$ 0.8 $\alpha_1$	18.67	18.91	5.73
$\alpha_2 \rightarrow$ 0.8 $\alpha_2$	18.31	11.32	2.71
$\lambda \rightarrow$ 0.8 $\lambda$	18.78	10.97	2.69
$a \rightarrow$ 0.8 $a$	18.06	13.70	1.40
$m \rightarrow$ 0.8 $m$	33.14	14.69	22.16

### 3. Comparaison de trois échantillons de PET (PET Amorphe, PET cristallisé thermiquement, PET cristallisé mécaniquement dans le cas de la fabrication de bouteille)

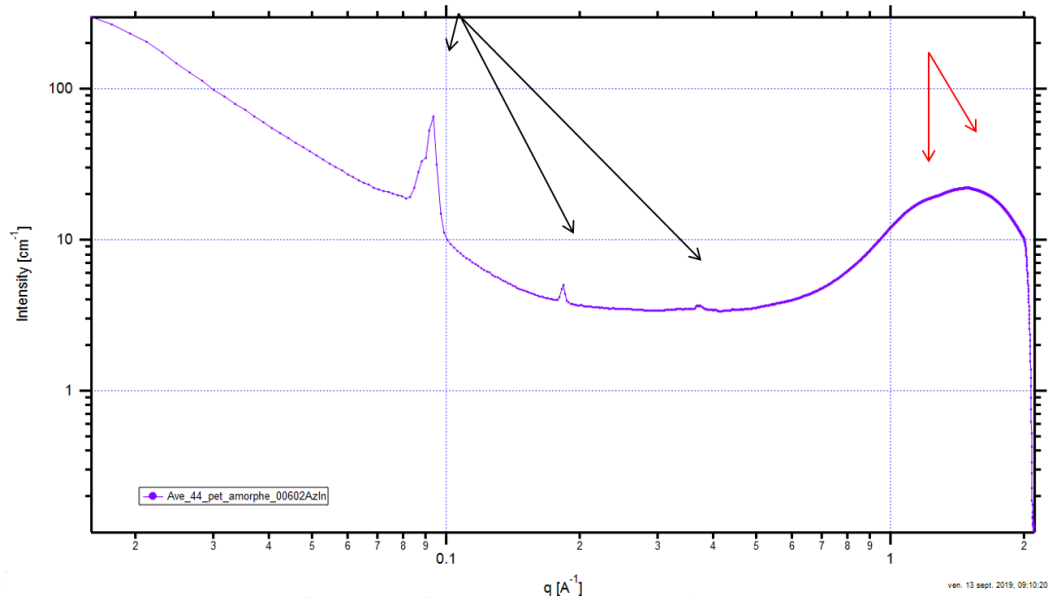


Figure 84 - PET Amorphe

On observe trois pics de diffraction (flèches noires) : structure lamellaire avec une distance de répétition de 6,98 nm théoriquement la zone est amorphe est correspond à l'organisation des domaines cristallin et amorphe du polymère. Les 2 flèches rouge montre des pics de corrélations correspondant à une distance moyenne dans les domaines cristallins du PET

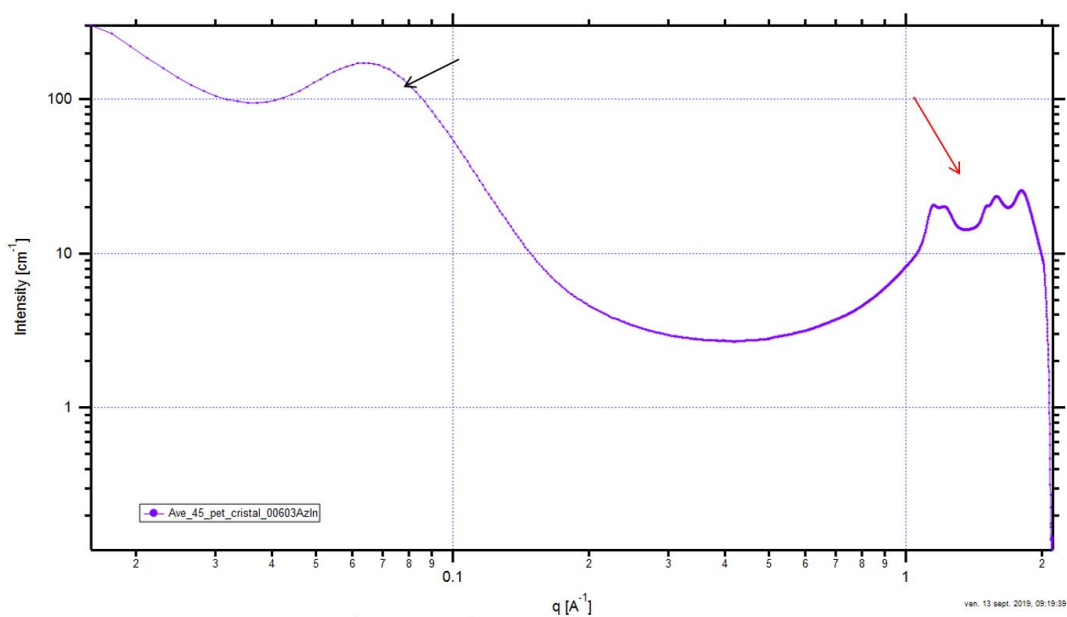


Figure 85 - PET Cristallin par chauffe

Le domaine vers 0.1 Å<sup>-1</sup> est amorphe (flèche noire) il y a une distance moyenne entre les domaines amorphes est cristallin, la flèche rouge montre une forte cristallinité des domaines « cristallin » du PET.

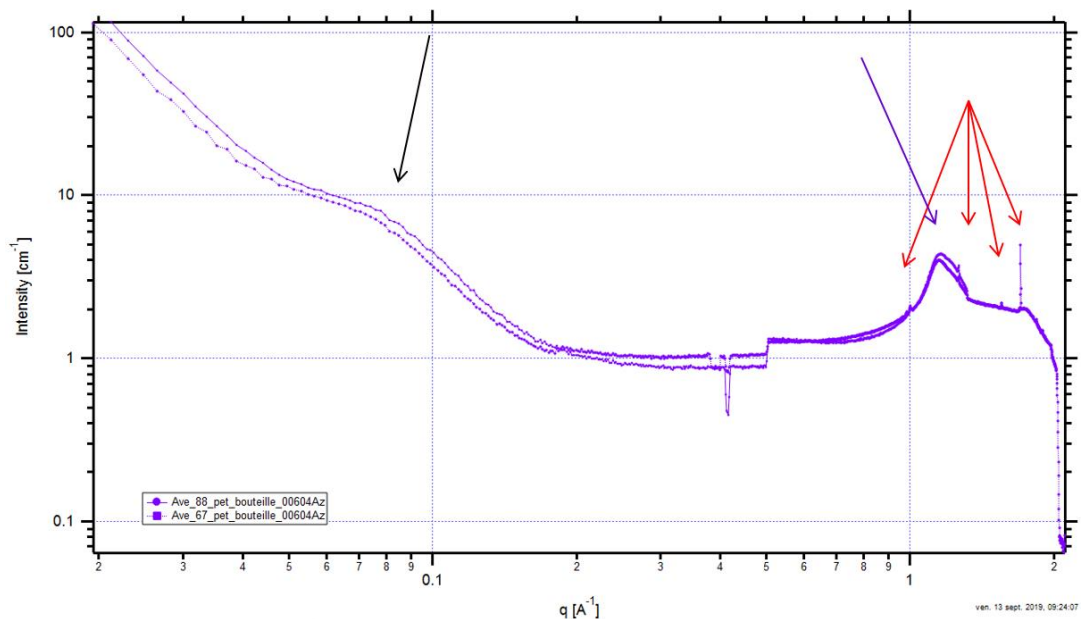


Figure 86 - PET cristallin mécaniquement

Pour le PET de la bouteille, on observe une bosse de diffusion (flèche noire) moins intense que pour le PET cristallisé par chauffe, et de façon très intéressante des pics de pur diffraction (quelques pixels sur le détecteurs) flèches rouge et toujours une bosse de diffusion/ diffraction (flèche bleu)

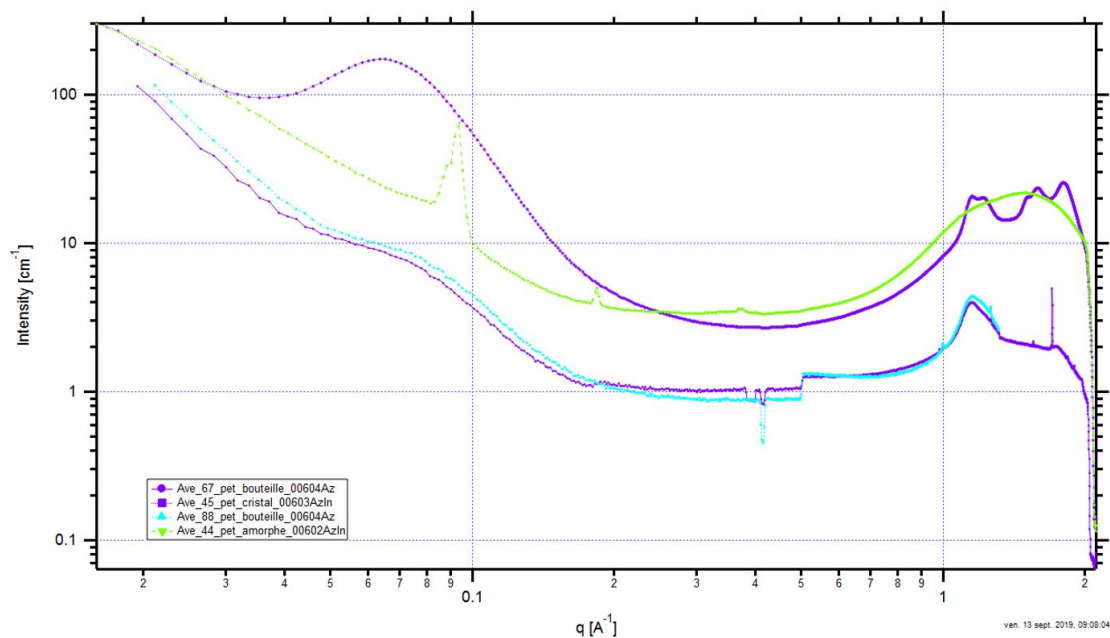


Figure 87 - Comparaison entre le PET amorphe, le cristallisé par chauffe et celui de la bouteille (cristallisé mécaniquement)

Il y a une grosse différence entre la structure du PET cristallisé par chauffe et celui de la bouteille.

## 4. Proposal synchrotron

# PET change of microstructure under high strain rate biaxial elongations

MSME UMR 8208 CNRS, Université Gustave Eiffel

### 1/ Background:

The complex mechanical behavior of polymeric materials is strongly related to the complex microstructure based on macromolecular chains configuration and interaction. Consequently, the development of model able to represent accurately the material behavior when loaded must be supported by a fine knowledge of the microstructural changes during deformation. At a macroscopic point of view, uniaxial tensile test are usually managed to follow the “stress-strain” curve but also the strain heterogeneities or defects. “Portable” versions even allow this type of testing to be carried out under an X-ray beam to monitor microstructural changes. MSME has developed a biaxial testing apparatus to enrich the database for model identification. The study is dedicated to characterization tests on polyethylene terephthalate (PET) plates. This polymer is widely used, in its semi-crystalline state, for blow molding process [1-3]. The microstructural changes experienced by the material (orientation, crystallization) improve the final product as its mechanical properties are much higher than those of the initial amorphous materials. Understanding the links between the elongation conditions of specimen (such as the strain rates, temperature and elongations) and the microstructural changes during deformation is crucial to build an accurate reliable optimization and numerical simulation of the process. It is a real industrial challenge for reduction of plastic impact.

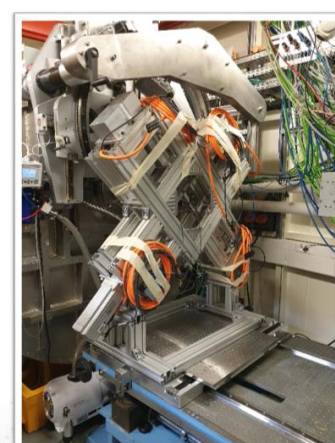
Ex-situ observations have already been achieved as well as in-situ observations for interrupted test [2-4]. The collected data helped us to develop and identify a visco-hyper-elastic model able to reproduce the mechanical behavior of PET under the processing conditions (temperature around 100°C and strain rate around 50s<sup>-1</sup>) [5-6]. However, our model does not yet predict crystallization that influences the transparency of bi-stretched PET.

### 2/ Objectives:

The experimental tests allow us to achieve the optimization and modelling of the process on several scales: at macroscopic scale, the polymer presents a thermal dependent visco-hyperelastic behavior; at microscopic scale, the polymer subjected to a complex strain field evolves in terms of its crystalline ratio, its molecular orientation and the size of its crystallites. The objective of this project is to perform in situ tests for the microstructural characterization of PET by synchrotron X radiation under multiaxial elongation tests, using several elongation speeds, draw ratios and temperatures, which are close to the blow moulding process. To achieve this purpose, we design and perform a biaxial machine to carry out the elongation tests. This machine with a small template is easily transportable and respects the dimensions of the synchrotron laboratory (see picture).

### 3/ Experimental method:

In order to get as close as possible to the blow molding process, the PET sample will be heated to a temperature higher than the glass transition temperature ( $T_g=80^\circ\text{C}$ ). Thermal conditioning will be provided by a hot air flow on the specimen. 2 thermocouples attached on each copper plate can provide the value of the heating temperature. The temperature field will be captured with a thermal camera



SOLEIL SYNCHROTRON  
Bi-axial tension test « portable »  
installed on Swing line of Soleil:  
tension managed by four mechanical  
actuators commanded with LabVIEW

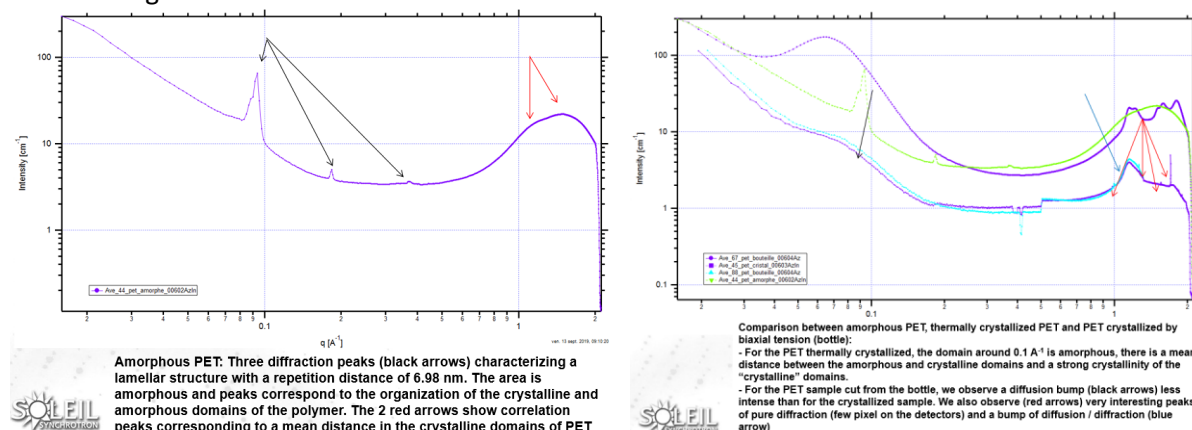


during the heating and stretching stage. Biaxial stretching of the sample is then provide at a maximum speed of  $450\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ . The force is controlled with the LabView programming software. The displacement field can be followed from a high speed camera and the strain field can be determined using the digital image correlation technique.

In this primary test campaign, we want to explore the effect of several parameters in order to identify the most relevant in a further campaign focused on these last. Consequently, we will explore only several strain rates (3 values 1, 8 and  $64\text{ s}^{-1}$ ) and several temperatures (90 to  $110^\circ\text{C}$ ). Biaxiality ratio's influence is also tested, equi-biaxiality and constant width biaxial test. Finally, each test should be repeated at least 2 or 3 time to make sure of the reproducibility.

#### **4/ Expected results:**

We plan to examine the microstructure evolution of the PET material during the deformation by means of differential WAXD (Wide Angle X-ray Diffraction) using the synchrotron Swing line. Signals are very different between amorphous PET (left figure) and crystallized one under tension or under thermal conditioning.



Therefore, the main goal is to follow the evolution of the crystallinity rate and the orientation of macromolecular chains during the stretching test under different heating temperature and strain rate. From these data, correlation between microstructure evolution and the mechanical visco-hyper-elastic behavior of PET at these close to ISBM process conditions will allow to build a new version of the VHE model coupled to the microstructure. Thanks to micromechanics, estimation of the induced final mechanical properties will then be possible.

#### **5/ Beam time requested justification:**

The primary test campaign leads from 24 to 36 biaxial elongation tests to be carried out. We estimate from 10 to 15' between 2 tests: that implies a maximum of 9h duration. About 4 or 5h to install and test the biaxial apparatus must be added. The number of beam-time requested is 2 shifts (16h).

#### **6/ References:**

##### **a/ Your publication(s) on the subject:**

- [1] L. Chevalier, C. Linhone and G. Regnier, Induced crystallinity during stretch-blow moulding process and its influence on mechanical strength of poly(ethylene terephthalate) bottles. *Plastics rubber and composites* 28, 8, 393-401, 1999.
- [2] Yann Marco, Luc Chevalier, Mohend Chaouche *Cristallisation et orientation induites du PET sous sollicitations biaxiales*, *Mechanics & Industry*, EDP Sciences, 2004, 5 (4), pp.497 - 505
- [3] Yann Marco, Luc Chevalier, Mohend Chaouche, WAXD study of induced crystallization and orientation in poly(ethylene terephthalate) during biaxial elongation, *Polymer* 43 (2002) 6569–6574
- [4] Chevalier L, Marco Y, Identification of a strain induced crystallisation model for PET under uni- and biaxial loading: influence of temperature dispersion, *Mech. of Mater.*, 39(6) 596–609, 2006.
- [5] Yun Mei Luo, Luc Chevalier, Eric Monteiro. Basis for viscoelastic modelling of polyethylene terephthalate (PET) near  $T_g$  with parameter identification from multi-axial elongation experiments. *International Journal of Material Forming*, Springer Verlag, 7, pp.359-367, 2014.

[6] Yun-Mei Luo, Luc Chevalier, Eric Monteiro, Shiyong Yan, Gary Menary, Simulation of the Injection Stretch Blow Moulding Process: an Anisotropic Visco-hyperelastic Model for PET Behavior, Polymer Engineering & Science, in press, 2020

## 5. Rapport expérimental synchrotron

**Proposal title:** PET change of microstructure under high strain rate biaxial elongations

**Proposal number:** 20201611

**Beamline:** Swing

**Shifts:** 3

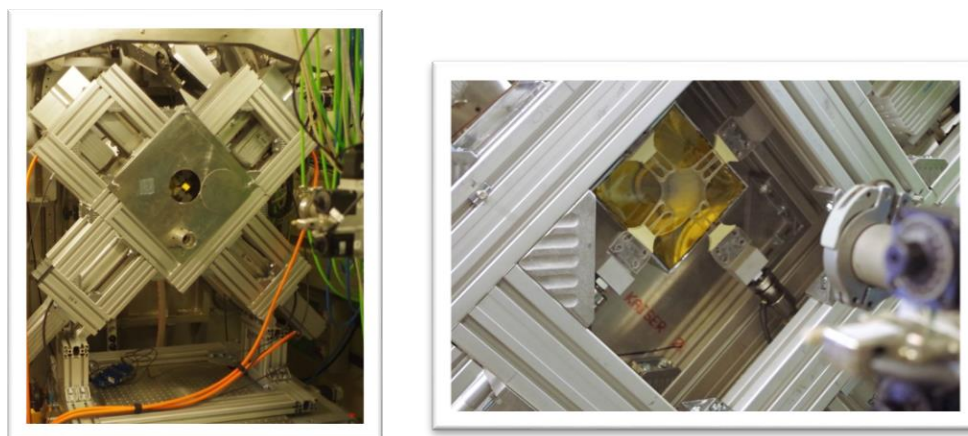
**Date(s) of experiment:** from: June 16<sup>th</sup> 2021 8:00AM to: June17<sup>th</sup> 2021 8:00 AM

**Date of report:** September 19<sup>th</sup> 2021

**- Objective & expected results (less than 10 lines): -**

MSME has developed a specific biaxial testing apparatus (figure 1) to provide finite strains on polymer under X-ray beam. The goal of these tests is to understand the orientation and crystallization kinetics during elongation at high strain rate and temperature above the glass transition in order to enrich the database for PET material near the ISBM process conditions.

The PET samples are heated at a temperature higher than the glass transition temperature ( $T_g=80^\circ\text{C}$ ). Thermal conditioning is provided by a hot air flow on the specimen. The temperature field is captured with a thermal camera during the heating and stretching stage. Forces are controlled with the LabView programming software.



*Figure 1: Transportable Biaxial testing device and biaxially stretched specimen*

**- Results and the conclusions of the study (main part): -**

We carried out elongation tests with 14 equibiaxial tests and 3 constant width tests (Table 1) in order to explore influence of strain, strain rate, temperature and shape ratio. Figure 2 shows the evolution of force and sample during an equibiaxial elongation test. The distance between two dots from initial sample is 2mm and increases until 5mm on the end of elongation tests.

For equibiaxial tension test n#19, the elongation is managed in both X and Y directions. Intensity curves of Figure 3 shows that no peak occurs during elongation but after 8.3s during the relaxation step. One can also see on the lower part of Figure 3 that no specific macromolecular orientation is noted: the largest circle reduces its thickness slightly but remain a total circle shape that is typical of no orientation in the material.

Thickness reduces during the elongation test and the mean intensity reduces also, this explain the higher level of curves at the beginning of the test... the amorphous halo may be difficult to fit.

For example for test n# 23: a constant width (CW) test is managed. The specimen is stretched along the bottom left to top right diagonal direction and remains the same length in the second diagonal direction. Figure 4 indicates that crystallization appears during the CW elongation and continues during the relaxation phase. It also indicate orientation of macromolecules in the stretched direction.

Furthermore, we also managed the crystallization observation from bottle or stretched sample (Table 2). First are stretched in industrial conditions by SIDEL and tension tests managed at ambient temperature have shown that mechanical properties of blown bottles were from 3 to 4 times higher than the amorphous PET injected in the preform.

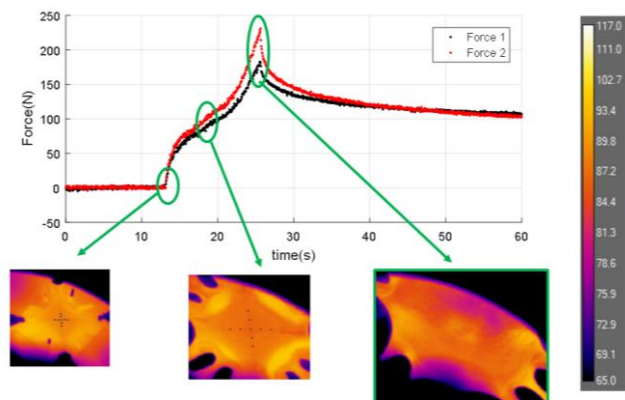


Figure 2: Evolution of force and sample temperature during equal-biaxial tensile test

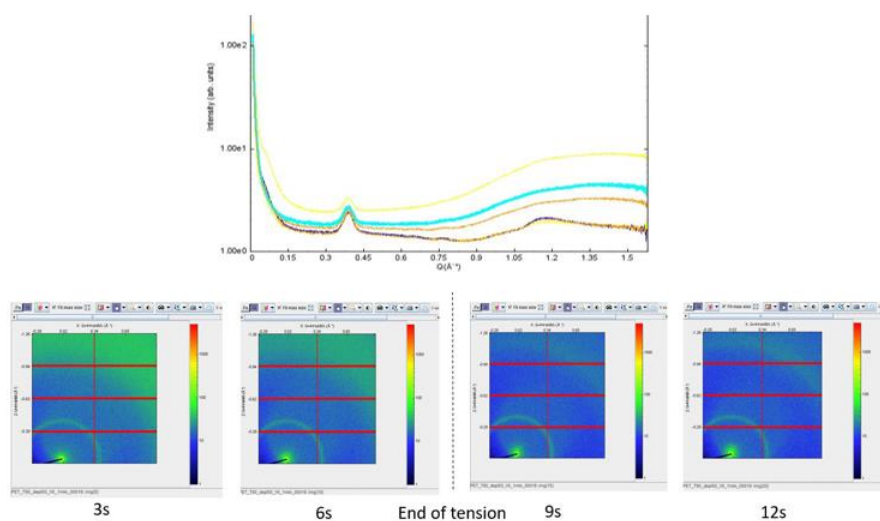


Figure 3: Peak appearing after the elongation in an equibiaxial tensile test the localization of the largest circle indicates no preferential orientation

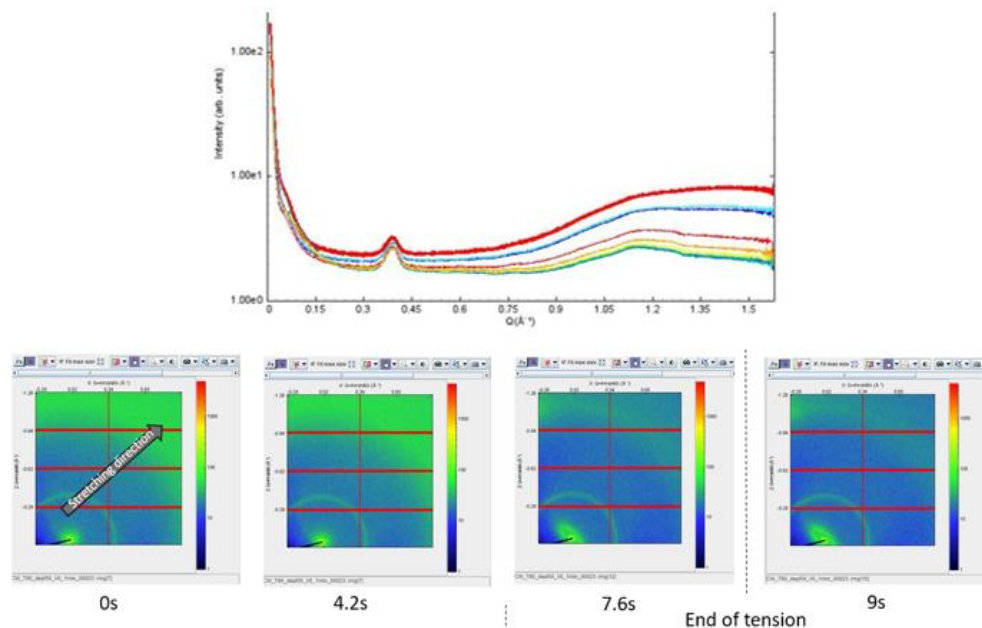


Figure 4: localization of peak and orientation of the spots are characteristic of a crystallized and oriented microstructure

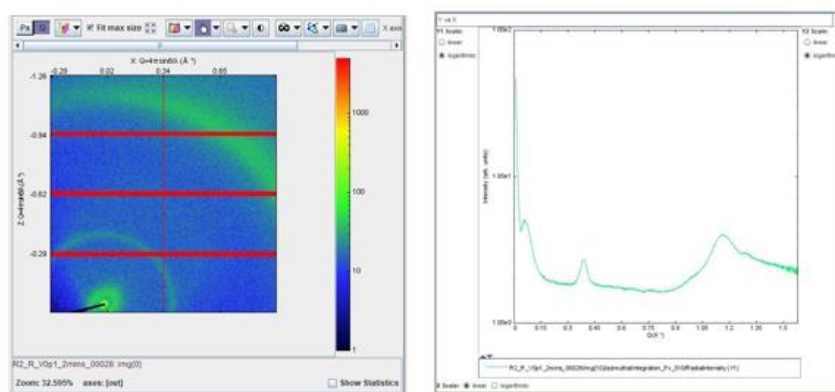


Figure 5 : Test #28 : Bottle R2

On these last figures, one can observe a more obvious peak near 1.2Å<sup>-1</sup> and the small thickness of the largest circle that highlight crystallization of PET during the ISBM process.

**- Justification and comments about the use of beam time (5 lines max.): -**

The team has appreciate the professional guidance and help provided by local contact PEREZ Javier during the experiment. Especially during the set up phase in order to optimise the angle of the observations. We regret the thunderstorm during the night that stopped the tests during several hours and we will have to send another proposal soon to complete the study.

**- Publication(s): -**

A first publication is in progress

**- Appendix: -**

Table 1: List of biaxial elongation tests

No test	Experiment type	T (°C)	Displacement (mm)	Velocity (mm/s)	Stretch time(s)	Recording time (min)
8	EB	90	30	6	5	1
9	EB	90	50	6	8.3	1
10	EB	90	50	6	8.3	3
13	EB	95	50	6	8.3	3
14	EB	90	50	4	12.5	3
15	EB	90	50	10	5	3
16	EB	90	50	10	5	3
17	EB	90	50	6	8.3	1
18	EB	90	50	6	8.3	1
19	EB	90	50	6	8.3	1
20	EB	100	50	6	8.3	1
21	EB	90	50	4	12.5	1
23	CW	90	50	6	8.3	1
24	CW	100	50	6	8.3	1
32	EB	100	50	6	8.3	1
33	EB	90	50	4	12.5	1
34	CW	90	50	10	5	1

Table 2: Observations from PET bottle or sample stretched

No test	Experiment type
22	Sample from test no 10 (EB), Velocity 0.1mm/s, time 200s, distance = 20mm
25	Bottle R1 (L), Velocity 0.1mm/s, time 200s, distance = 20mm
26	Bottle R1 (R), Velocity 0.1mm/s, time 200s, distance = 20mm
27	Bottle R2 (L), Velocity 0.1mm/s, time 200s, distance = 20mm
28	Bottle R2 (R), Velocity 0.1mm/s, time 200s, distance = 20mm
29	Bottle R3 (L), Velocity 0.1mm/s, time 200s, distance = 20mm
30	Bottle R3 (R), Velocity 0.1mm/s, time 200s, distance = 20mm
31	Sample from test no 23 (CW), Velocity 0.1mm/s, time 200s, distance = 20mm

