

long

Cahiers  
du  
Groupe Français de Rhéologie

---

N° 3 - Tome I

NOVEMBRE 1966

---

ÉDITÉ  
PAR LE SERVICE DE DOCUMENTATION SCIENTIFIQUE ET TECHNIQUE  
DE L'ARMEMENT

MAGASIN DE VENTE : 2, AVENUE DE LA PORTE-D'ISSY, PARIS (15<sup>e</sup>)

1966

N° 3

Cahiers  
du  
Groupe Français de Rhéologie

---

N° 3 - Tome I

*NOVEMBRE 1966*

---

## SOMMAIRE

---

	PAGES
A. POPOFF et R. CAZE. — Application d'un microtest de torsion à l'étude de la caractérisation d'un alliage à base de magnésium soumis à des contraintes alternées .....	101
A. KOVACS. — Phénoménologie du fluage et de la recouvrance de volume des systèmes vitreux .....	123
J.-C. ROBINET et R. BUVET. — Comportement mécanique de volume des polymères solides amorphes au voisinage de leur température de transition vitreuse .....	131
F. LAGARDE. — Comportement des lubrifiants soumis à des chocs et à des taux de cisaillement élevés .....	143
J. WEBER. — Recherches concernant les contraintes intergranulaires dans les milieux pulvérulents. Application à la rhéologie de ces milieux .....	161

---

**APPLICATION D'UN MICROTEST DE TORSION  
A L'ÉTUDE  
DE LA CARACTÉRISATION D'UN ALLIAGE A BASE DE MAGNÉSIUM  
SOU MIS A DES CONTRAINTES ALTERNÉES**

par Anatole POPOFF et René CAZE

OFFICE NATIONAL D'ÉTUDES ET DE RECHERCHES AÉROSPATIALES

**RÉSUMÉ**

Des barreaux cylindriques de l'alliage ZT 1 (Mg, Th, Zn, Zr), usinés à partir de pièces coulées, sont soumis à des contraintes de torsion statiques faibles répétées ou alternées, à l'aide d'une méthode d'essai sensible.

On constate, d'une sollicitation répétée à la suivante, une variation des caractéristiques mécaniques avec tendance à la stabilisation lorsqu'on effectue plusieurs cycles. Après vieillissement sans charge, cette variation se manifeste à nouveau. Cependant, lorsque les contraintes sont alternées, on n'obtient pas de stabilisation même après un nombre élevé de cycles.

Les essais font fréquemment ressortir une absence de proportionnalité contrainte-déformation et l'importance de l'hystérésis plastique sous faible contrainte. Sous contrainte plus importante, la plasticité est fonction linéaire de la température dans le domaine exploré, où la structure est considérée comme stable.

L'application d'un modèle rhéologique aux courbes expérimentales et des examens complémentaires permettent de préciser le mécanisme, lié à la structure, où s'amorce et se développe l'hystérésis plastique.

On attire l'attention sur la signification du coefficient de rigidité lorsqu'il s'agit d'efforts alternés accompagnés d'hystérésis plastique.

1

**INTRODUCTION**

De nombreux alliages de magnésium doivent leur intérêt à l'amélioration de leur tenue en température par rapport au magnésium, amélioration qui résulte des additions opérées.

Les mécanismes de cette consolidation sont bien connus et ont donné lieu à de nombreuses publications [1], [2], [3], [4]. Il s'agit de l'affinage du grain dans les alliages binaires et de la présence simultanée de précipités intermétalliques aux joints des grains dans les alliages ternaires ou quaternaires comportant deux phases.

Il est indispensable de bien connaître le comportement de ces alliages utilisés en aéronautique en tant que pièces de fonderie : carters de compresseurs, éléments de train d'atterrissage, etc.

L'alliage ZT 1 (Th 3 %, Zn 2 %, Zr 0,76 %) mis au point par la Société Magnésium Electron est à deux phases. Il a fait l'objet d'une étude très poussée par BRONOËL [5]. Cependant, ses essais mécaniques ayant été effectués uniquement par traction, il a paru utile d'en étudier le comportement en torsion statique, particulièrement sous faibles contraintes en régime cyclique.

Les essais ont eu pour but de mesurer avec précision les caractéristiques mécaniques et de déterminer le comportement rhéologique du ZT 1 dans un domaine de température inférieur à la limite au-delà de laquelle se produit une évolution structurale de l'alliage, soit entre 20° et 350° C.

Les résultats ont confirmé le bien-fondé de ces investigations complémentaires en mettant en évidence le rôle des microglissements sur l'évolution des caractéristiques mécaniques de l'alliage.

2

## DÉFINITION DES CONDITIONS D'ESSAIS

Il est indispensable de préciser la place qu'occupent les conditions de nos essais en ce qui concerne les contraintes, fréquences ou autres facteurs.

En effet, les phénomènes d'hystérésis mécanique, auxquels l'alliage ZT 1 est particulièrement sensible, ont donné lieu, suivant les modalités des expériences (notamment en ce qui concerne l'importance des contraintes périodiquement appliquées, leur alternance de signe, la nature du mode de sollicitation, etc.), à des explications diverses, [6] à [11], mettant en évidence la complexité des facteurs mis en jeu et l'influence des divers paramètres.

Les expériences de torsion et l'étude des cycles d'hystérésis exposées ci-après ont été réalisées dans le domaine des contraintes moyennes que l'on retrouve dans les nombreuses applications courantes.

Ainsi, les cycles répétés, par application du couple de torsion dans un seul sens, ont été effectués entre 0 et 3,89 hb; les cycles alternés (torsions successives dans deux sens) entre  $-3,89$  et  $+3,89$  hb (par convention le signe positif a été attribué au sens de la torsion lors de la première mise en charge). Dans cette gamme des contraintes, les phénomènes élasto-plastiques deviennent nettement prépondérants.

Les expériences de torsion ont été effectuées quasi statiquement afin de permettre au métal de reprendre sensiblement, après chaque nouvelle charge, l'état d'équilibre mécanique. Dans ces conditions, l'étude des boucles d'hystérésis plastique, anélastique en tout cas, se trouve dans un domaine nettement en dehors de celui des études dynamiques d'amortissement par frottement interne ou de celui de l'hystérésis par élasticité retardée.

Cette étude se place également en dehors du domaine de fatigue où le métal peut subir des détériorations par fissurations sans déformations plastiques macroscopiquement décelables [12]. Les essais ont été effectués à des températures variant entre l'ambiante (l'étude des cycles d'hystérésis proprement dits) et  $350^{\circ}$  C.

La structure de cet alliage après coulée suivie d'un recuit de 16 h à  $310^{\circ}$  C, se présente sous la forme de grains de forme hexagonale au centre desquels le zirconium, soluté de façon irrégulière, révèle des formes homothétiques sous l'attaque de  $\text{NO}_3\text{H}$  à 1 %, réactif utilisé pour l'examen micrographique. Un précipité intermétallique de forme tabulaire avec contours aciculaires, riche en thorium et stable jusqu'à  $350^{\circ}$ , est situé aux joints des grains (*fig. 1*).

Les essais de microdureté et de radiocristallographie ont donné des résultats comparables aux valeurs publiées sur cet alliage [5].

D'importantes porosités et inclusions ont été observées.

Les micrographies effectuées sur éprouvettes rompues après les essais à  $350^{\circ}$  ne révèlent pas de modification de structure (exemple *fig. 2*).

Les caractéristiques mécaniques en traction publiées dans la littérature présentant certaines dispersions, il a paru prudent d'effectuer quelques essais de traction à l'ambiante sur éprouvettes de 6 mm de diamètre. Les valeurs relevées sont égales ou légèrement inférieures (voir tabl. I, p. 105) à celles qui ont été publiées par ailleurs [13].

4

## EXÉCUTION DES ESSAIS

Les éprouvettes utilisées pour les essais de torsion sont des barres cylindriques de 100 mm de longueur et de 11,3 mm de diamètre. Elles ont été usinées, à partir de parallélépipèdes coulés, avec une précision sur le diamètre de  $-0,007$  à  $-0,014$  mm. Certaines de ces éprouvettes avaient subi soit un mordantage neutre, soit une attaque cathodique, soit une attaque anodique selon la méthode Higgins [14].

On a noté l'effet de ces traitements sur les caractéristiques mécaniques apparentes de l'alliage.

Les essais de torsion alternée ou répétée ont été effectués sur la machine de torsion en appliquant la méthode des miroirs de Poggendorff [15].

Les essais sont effectués par charges successives déterminant chacune une contrainte de 0,259 hb. La conception de la machine élimine toute introduction d'effort axial secondaire qui pourrait résulter d'une variation de longueur de l'éprouvette



Fig. 1



Fig. 2

sous l'effet de la dilatation thermique ou des déformations dues aux contraintes, l'encastrement étant réalisé par une lame souple laissant toute liberté de translation axiale aux mors de fixation.

Trois miroirs sont fixés sur l'éprouvette par l'intermédiaire de colliers solidaires de l'éprouvette par trois vis pointeau. La position de ces colliers est déterminée avec précision par un garabit et l'ensemble lunettes-miroirs-réglottes placé de telle sorte que l'angle d'incidence et l'angle de réflexion ont leur côté commun rigoureusement perpendiculaire à l'axe de l'éprouvette.

Les essais à chaud ont été réalisés par enroulement d'un fil résistant autour de l'éprouvette, la température étant relevée par un thermocouple de chrome-alumel étroitement lié à l'éprouvette. Un bobinage externe de cordon d'amiante évitait les pertes par convection; la montée en température s'effectuait à la vitesse de 2° C par minute et l'essai commençait 30 mn après que la température désirée ait été atteinte.

## 5 CALCUL DES CONTRAINTES, MODULES ET HYSTÉRÉSIS

Dans la gamme des contraintes utilisées, les déformations plastiques restent suffisamment petites par rapport à la déformation élastique. Les contraintes correspondant aux couples de torsion appliquées, calculées par la formule habituelle

$$(1) \quad \tau = \frac{16 M}{\pi d^3},$$

$\tau$ , contrainte de cisaillement;

$M$ , moment du couple de torsion;

$d$ , diamètre de l'éprouvette,

sont exactes seulement dans le domaine parfaitement élastique. Il en résulte que les contraintes calculées par la formule (1) doivent être considérées comme approchées ou nominales. Les contraintes réelles sont plus faibles et peuvent être évaluées d'après la formule de LUDWIK [16].

$$(2) \quad \tau = \frac{4}{\pi d^3} \left( 3 M + \theta \frac{dM}{d\theta} \right),$$

$\theta$ , angle de torsion unitaire rd/mm.

Cependant, cette formule, ainsi que celles proposées par NORITZYN et KISLY [17], DE

FOUQUET [18], n'est valable que dans le cas de l'essai de torsion amenant la rupture en une seule mise en charge progressive. La formule (1) donne dans le cas du premier cycle, la contrainte maximale de 3,89 hb au lieu de 3,60 avec la formule (2). Une correction de cette nature n'intervenant pas dans l'interprétation des résultats, il a été jugé suffisant de se contenter de l'usage de la formule (1).

Les mesures des déformations ont été faites sur deux tronçons d'une même éprouvette, cela moins par souci d'avoir une valeur moyenne qu'en raison de l'hétérogénéité des faibles déformations plastiques dont l'existence a été signalée et observée aussi bien en torsion qu'en traction [19], [20], [21]. La précision de nos mesures permet de confirmer ce fait.

Le module de rigidité en chaque point de la courbe contrainte-déformation du cycle étant défini par la formule :

$$G = \frac{d\tau}{d\gamma},$$

où :

$$\gamma = \frac{1}{2} \theta d \quad (\text{déformation de cisaillement}),$$

sa détermination a été faite graphiquement dans la plupart des cas et, si une légère dispersion des points expérimentaux rendait cette opération incertaine, on procédait alors par la méthode des moindres carrés, comme cela a été décrit dans [15].

Le calcul de l'énergie absorbée irréversiblement et dissipée sous forme de chaleur, s'est effectué par le planimétrage des boucles tracées à grande échelle.

Les améliorations apportées à l'ensemble de lecture des déformations angulaires (regroupement des lunettes de visée, réduction du nombre de réglottes) ont diminué les erreurs systématiques analysées dans [15]. L'utilisation d'un gabarit de fixation des colliers et la cote entre miroirs portée de 14,8 à 25 mm ont abaissé très sensiblement l'erreur possible sur  $G$ , qui passe de 1,7 à 1,2 %.

## 6 RÉSULTATS

1 Quelques essais de traction simple ou répétée à température ambiante ont tout d'abord été effectués. Ces essais ont permis de relever la résistance, la plasticité à rupture et l'hystérésis sous cette sollicitation (*fig. 3* et tabl. I) : les essais de torsion

TABLEAU I

*Essais de traction sur alliage Z T 1*  
*Éprouvette cylindrique = 6 mm*

	ÉPROUVETTES ONERA			D'APRÈS METALS-HANDBOOK
	N° 1	N° 2	N° 3	
Charge de rupture .....	14,2	17	15,9	19
Limite élastique apparente .....	9,2	8,8	8,7	9
Allongement % sur $l = 5$ diam. ....	6,7	7,7	5,4	6
Module de Young (dynamique) .....	4 500	4 528	4 501	4 570
Module de Young (statique) .....	4 210			

TABLEAU II

*Résistance à la rupture par la torsion*

T	RÉSISTANCE A LA RUPTURE	PLASTICITÉ MAXIMALE	A % CORRESPONDANT DÉDUIT	ÉTAT DE SURFACE
(°C)	(hb)	$\gamma$ (rd)		
20	15,35	0,231	15,4	Sans traitement
20	17,43	0,254	16,9	Sans traitement
20	16,21	—	—	Sans traitement
350	8,29	0,396	26,4	Mordançage
350	11,82	0,662	44	Mordançage

TABLEAU III

*Variation du module de rigidité G en fonction de la température*

Température (°C) .....	25	35	100	150	200	250	300	350
Module de rigidité G (hb) .....	1 851	1 836	1 808	1 740	1 713	1 639	1 583	1 540



ont alors été effectués. Après quelques essais à rupture en torsion à 20° C et à 350° C (tabl. II), on a mesuré l'évolution du module de rigidité en fonction du nombre des cycles répétés ou alternés,

Les essais se sont poursuivis en cycles alternés de + 3,89 à - 3,89 hb et furent arrêtés au douzième cycle (fig. 5). Repris après un vieillissement de 39 jours sous contrainte nulle, ils ont accusé alors

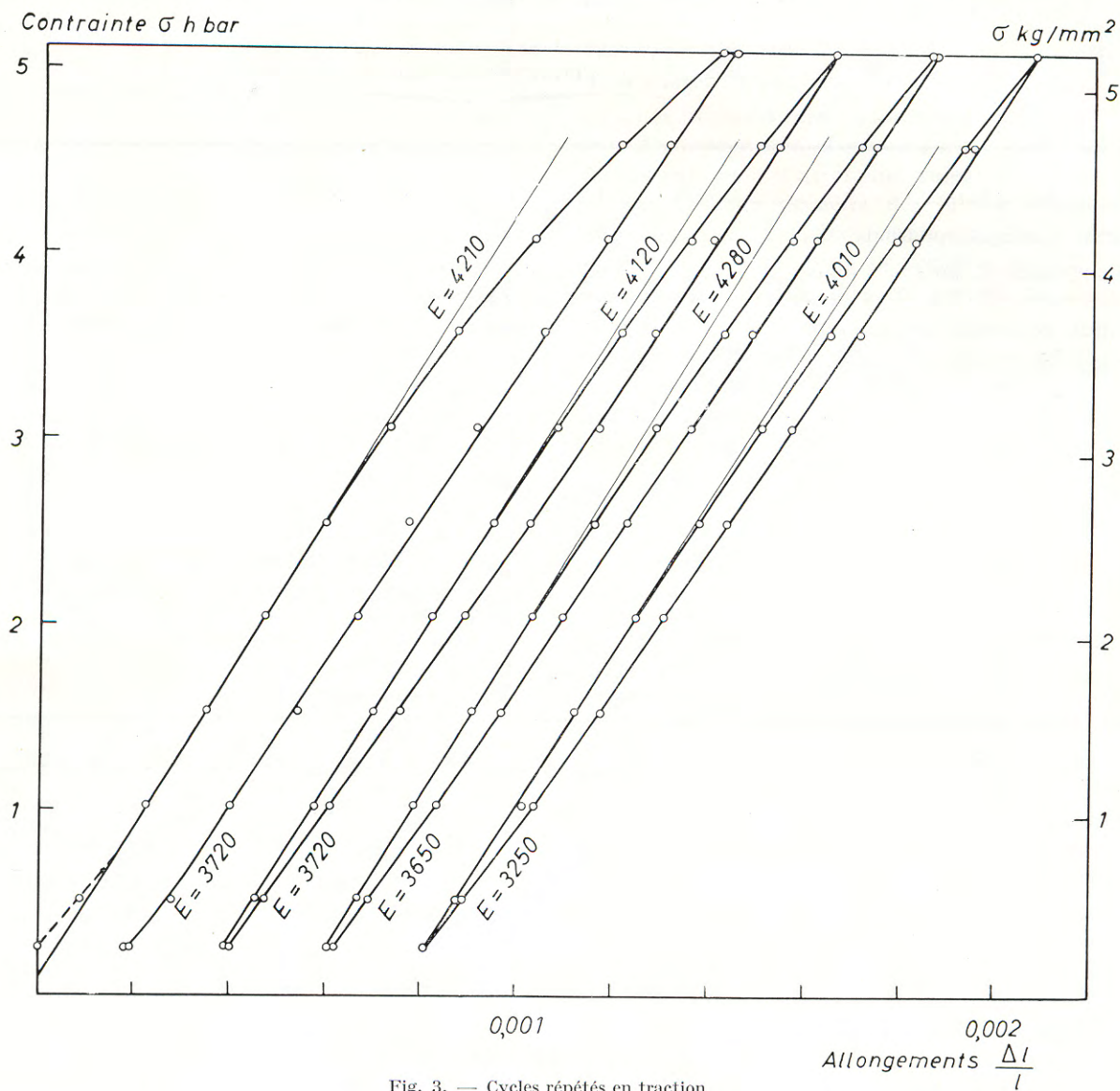


Fig. 3. — Cycles répétés en traction

ainsi que l'évolution du module  $G$  en fonction de la température (tabl. III).

La figure 4 représente les cinq premiers cycles répétés, de l'amplitude de contrainte de 0 à + 3,89 hb, effectués sur une éprouvette non protégée et dégraissée, les mesures ayant été faites sur deux tronçons de cette éprouvette.

un relèvement de  $G$  approchant sa valeur initiale. Les figures 6 et 7 présentent les variations du module  $G$  en fonction du nombre de cycles.

Sur la figure 6 ont été ajoutés les résultats des essais effectués sur des éprouvettes ayant subi préalablement un mordantage ou une attaque électrolytique.

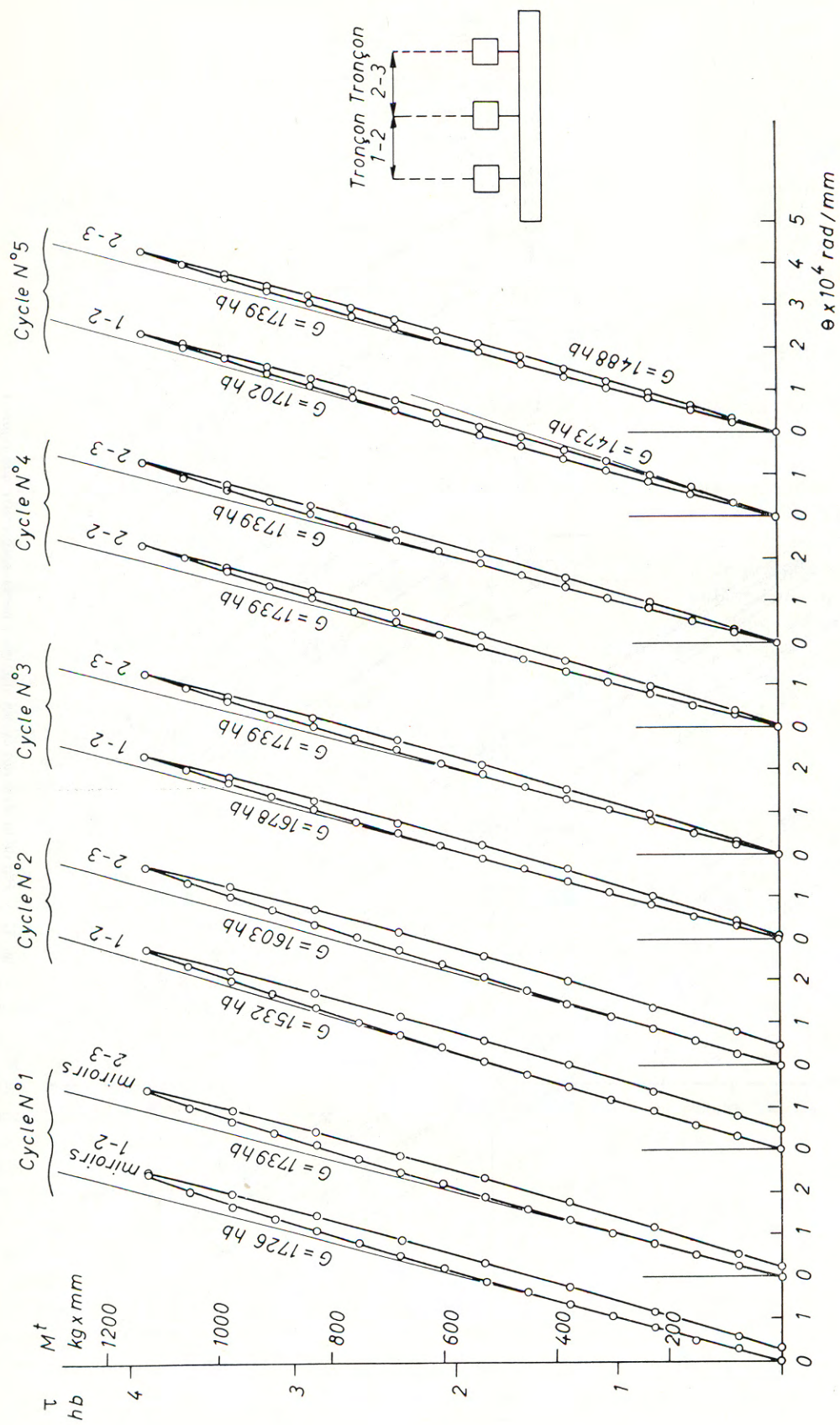


Fig. 4. — Cycles répétés en torsion. Mesures relevées sur deux tronçons d'une même éprouvette; surface non protégée et dégraissée

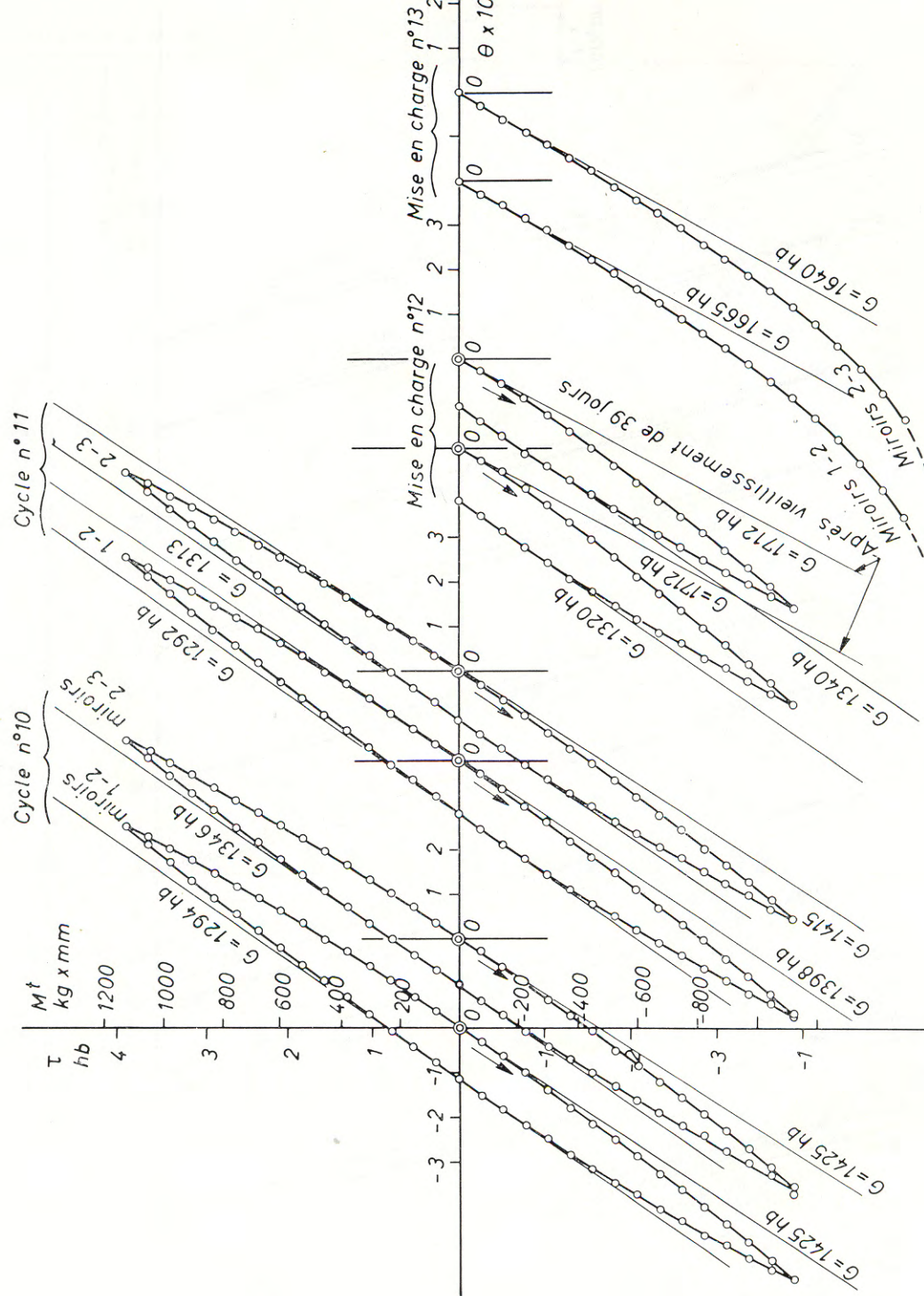


Fig. 5. — Fin de la série des cycles alternés : même éprouvette que figure 4

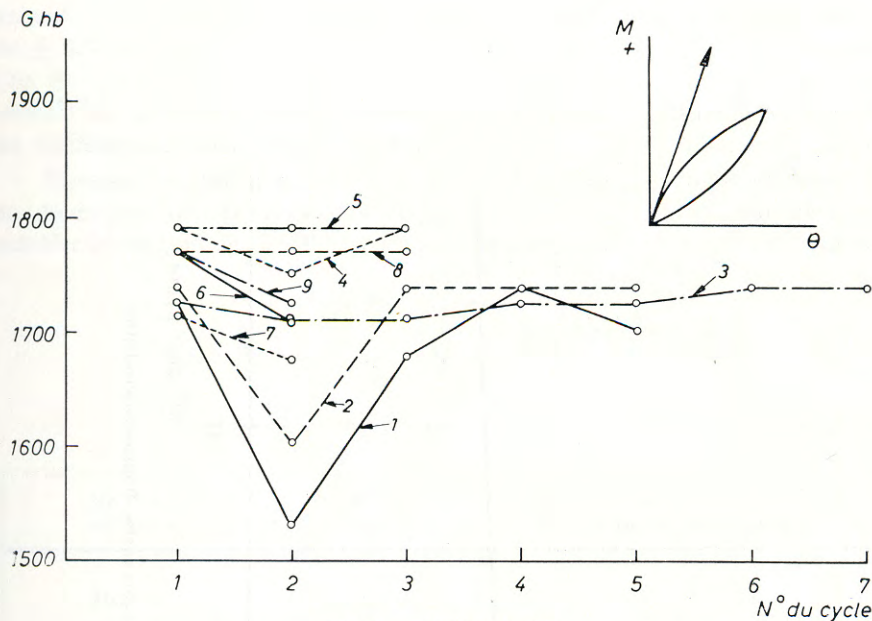


Fig. 6. — Cycles répétés  
Variation du module de rigidité d'éprouvettes ayant divers états de surface :  
1, 2 : non protégées et dégraissées; 3 : non protégée; 4, 5, 6 : mordancées;  
7 : non protégée et enduite de lanoline; 8 : traitement anodique; 9 : traitement cathodique

On remarque, figure 5, courbe 12, que le module à la décharge correspondant à la contrainte nulle n'a pas été sensiblement altéré. Par contre, il tend à retrouver sa valeur primitive à la mise en charge (courbe 13) effectuée 28 jours plus tard et passe de 1398-1415 (courbe 11) à 1665-1640 hb.

Les déterminations de  $G$  ont été effectuées sur éprouvettes mordancées : ces résultats sont portés sur la figure 6 pour comparaison lorsqu'il s'agit de cycles répétés. Avec cet état de surface, la stabilisation (accommodation) des cycles est effective dès la troisième mise en charge. Des essais effectués sur cycles complets — 3,89 + 3,89 hb avec l'une de ces éprouvettes montrent qu'après un recuit de 24 h à 400° la valeur de  $G$  (au départ du cycle) est du même ordre de grandeur (1820 contre 1792 hb) que lors de la première mise en charge.

On peut noter que le module de rigidité des éprouvettes ayant

subi une attaque électrolytique ou un mordantage, garde une valeur élevée (de l'ordre de 1770 hb, fig. 6, courbes 4, 5, 6, 8 et 9) tandis que l'éprouvette enduite de lanoline, à l'origine du premier cycle, présente le module le plus bas parmi toutes celles qui ont été utilisées dans ce travail (fig. 6, courbe 7).

La courbe 3 de la figure 6 indique l'évolution de  $G$  lorsque l'éprouvette, non protégée, est soumise d'abord à quatre cycles répétés de contrainte faible de 2,08 hb, sans hystérésis appréciable, puis à trois cycles de 3,89 hb. Cette courbe est à rapprocher des courbes 1 et 2 (fig. 6); elle montre que l'évolution de la valeur de  $G$  est sujette à de grandes dispersions (particulièrement au deuxième cycle) et peut n'être que faiblement

marquée lorsqu'on a commencé par appliquer de faibles contraintes.

Des essais effectués sur une nouvelle série d'éprouvettes n'ayant pas subi de contrainte

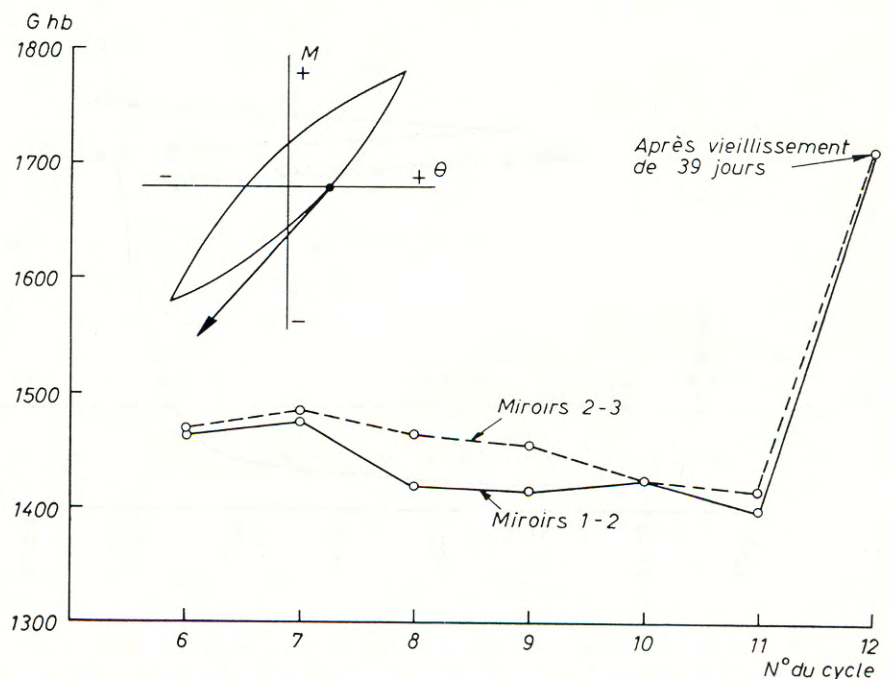


Fig. 7. — Cycles alternés. Variation du module de rigidité à l'origine; charge négative

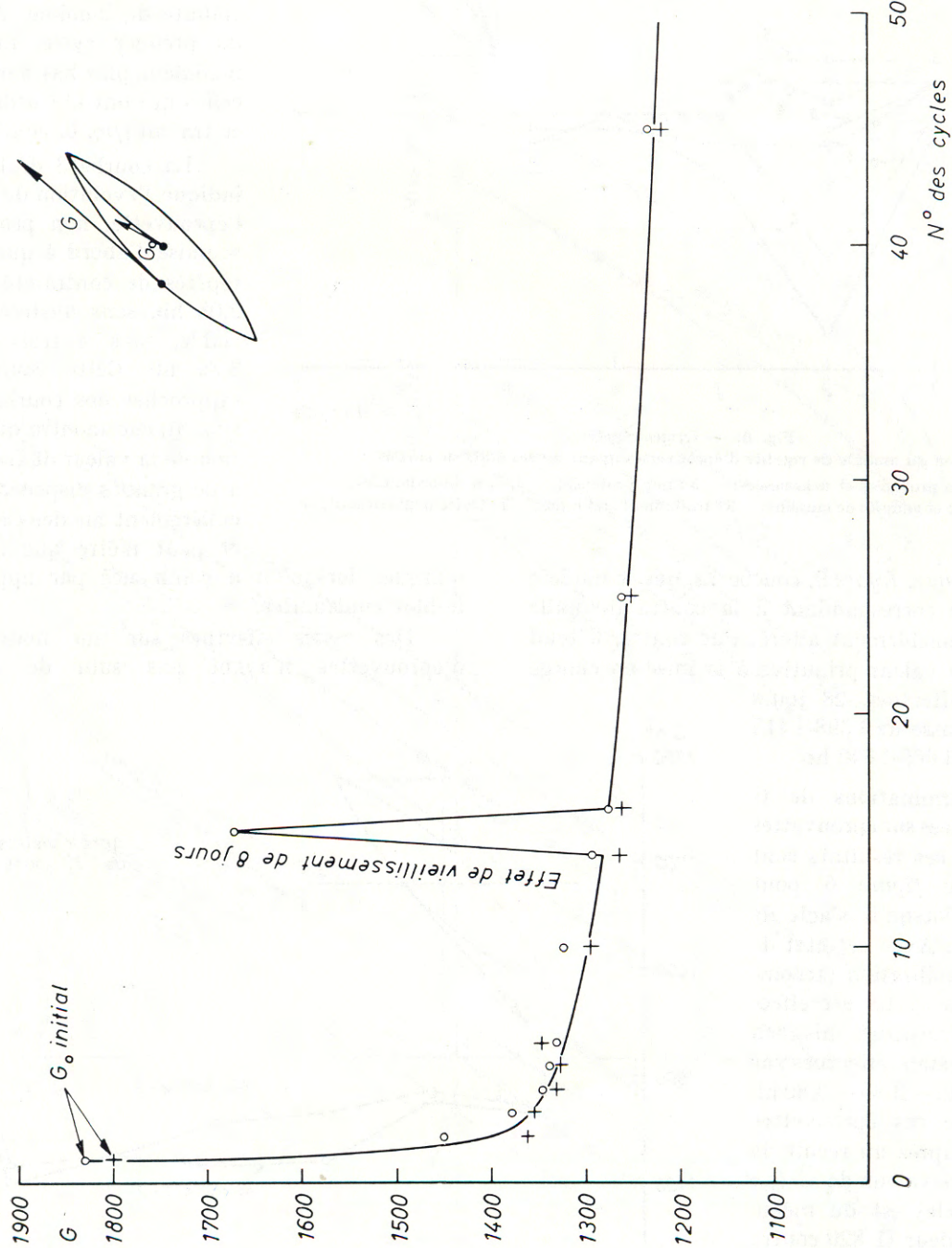


Fig. 8. — Cycles alternés. Variation du module de rigidité en fonction du nombre de cycles. Branches ascendantes

préalable et soumises à cinquante cycles alternés de  $\pm 3,89$  hb ont permis de mesurer l'évolution de G (fig. 8). On remarquera l'évolution de la valeur du module au quinzième cycle, mesure effectuée après un vieillissement sans charge de 8 jours.

Devant l'importance des irrégularités observées au cours des nombreux essais et la nécessité de calculer le module de rigidité en prenant la tangente

à l'origine de la courbe contrainte-déformation, il était nécessaire d'avoir confirmation de la validité des mesures effectuées. C'est pourquoi on a effectué sur le même alliage, des mesures du module de Young E et du coefficient de Poisson selon la méthode basée sur les fréquences fondamentales des vibrations [22]. Les valeurs trouvées étaient 4 528 hb pour le module de Young et  $0,296 \pm 0,02$

TABLEAU IV

*Énergie dissipée par cycle et par millimètre de longueur de l'éprouvette, en kcal  $\times 10^5$*

NATURE DU CYCLE	NUMÉRO DU CYCLE	ÉPROUVETTE 1 NON PROTÉGÉE, DÉGRAISSÉE	ÉPROUVETTE 2 MORDANCÉE
Répétée	1	7,90- 7,55	6,67
Répétée	2	9,65-10,00	1,75
Répétée	3	4,74- 4,04	1,75
Répétée	4	4,39- 3,86	
Répétée	5	3,51- 3,16	
Alternée	6	35,45-35,45	
Alternée	7	36,50-35,10	
Alternée	8	39,31-35,45	
Alternée	9	40,01-36,53	
Alternée	10	41,77-36,50	
Alternée	11	41,07-36,85	

TABLEAU V

*Énergie dissipée par cycle et par millimètre de longueur de l'éprouvette, en kcal  $\times 10^5$*

*Traitements de surface divers*

NUMÉRO DU CYCLE	MORDANÇAGE	TRAITEMENT CATHODIQUE	TRAITEMENT ANODIQUE	ENDUIT DE LANOLINE
1	15,79	10,35	14,04	12,99
	20,18			
2	6,14	4,04	3,69	3,86
	7,90			
3	5,44	6,14		
	6,14			

pour le coefficient de Poisson. On en a déduit, par la formule connue de la théorie d'élasticité, la valeur :

$$G = \frac{E}{2(1 + \nu)} = 1747 \text{ hb}$$

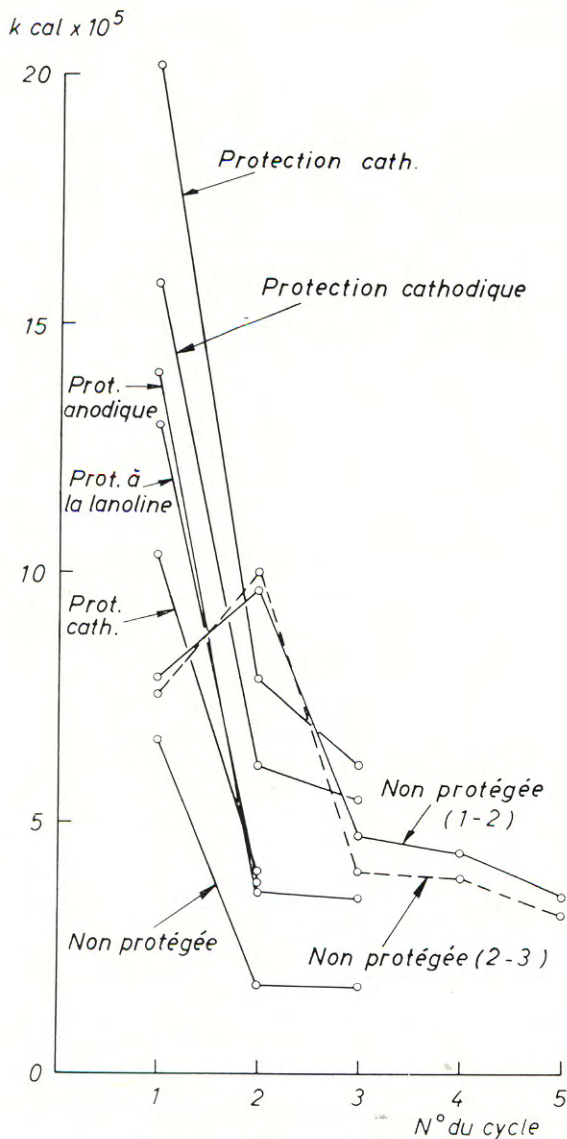


Fig. 9. — Cycles répétés. Énergie dissipée par cycle

et, après cinquante cycles alternés :

$$G = 1740 \text{ hb}$$

2 L'étude des boucles d'hystérésis effectuées dans les conditions statiques a été complétée par les

mesures de l'aire comprise entre les branches ascendantes et descendantes des boucles, donnant ainsi la quantité d'énergie dissipée par cycle. Les tableaux IV et V et la figure 9 donnent l'équivalent énergétique des mesures effectuées. La comparaison des graphiques fait ressortir le fait que si pour les cycles répétés  $0 + 3,89$  hb l'énergie dissipée par cycle a une nette tendance à la stabilisation ou même à une diminution, il n'en est pas de même pour les cycles alternés  $- 3,89, + 3,89$  hb. On se trouve donc au-delà de la limite de réversibilité. Des essais effectués sur éprouvette n'ayant pas subi de contrainte préalable et à laquelle on a imposé cinquante cycles alternés, font apparaître une seconde phase de caractère quasi stationnaire (fig. 10). La mesure de la largeur des boucles (fig. 11) présente une évolution similaire et met en évidence les discontinuités dues aux périodes d'arrêt de quelques heures.

3 Le tableau III présente l'évolution sensiblement linéaire des valeurs de  $G$  déduites des essais sur éprouvettes mordancées à température croissante de  $25^\circ \text{C}$  à  $350^\circ \text{C}$ , sous des contraintes de  $2,08$  hb.

On constate la bonne tenue à chaud de l'alliage dont les caractéristiques s'altèrent, mais ne s'effondrent pas dans cette gamme de température.

On peut, en particulier, noter la constance de la limite de proportionnalité, de l'ordre de  $2$  hb dans ce domaine.

La figure 12 (éprouvette mordancée) donne le faisceau des courbes de fluage à  $350^\circ$  pour les contraintes appliquées par paliers, pendant  $10$  mn chacune.

## 7 DISCUSSION DES RÉSULTATS

L'alliage ZT 1 se prête particulièrement aux déformations plastiques, réversibles, formant ainsi des boucles d'hystérésis fermées; le module de rigidité, défini comme la tangente à la courbe contrainte déformation lorsque la contrainte  $\tau = 0$ , varie en fonction du nombre des cycles décrits préalablement.

Ces boucles d'hystérésis plastique sont symétriques : l'évolution de leur largeur est d'une remarquable régularité et différencie les cycles répétés et les cycles alternés. Si pour les premiers (fig. 4) on obtient rapidement une stabilisation, il n'en va pas de même pour les seconds; la courbe de la figure 11 présente pour cinquante cycles

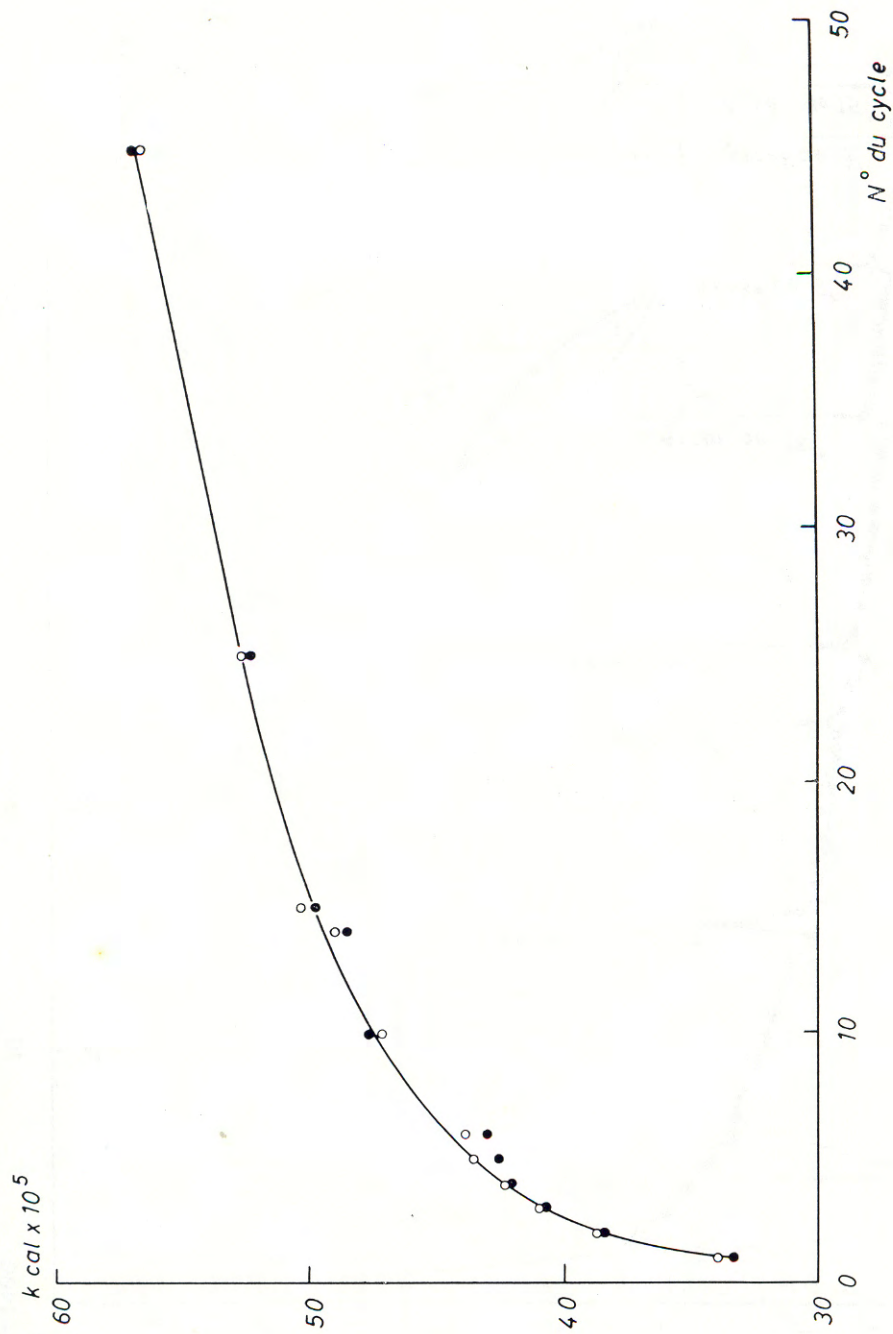


Fig. 10. — Énergie dissipée par cycle



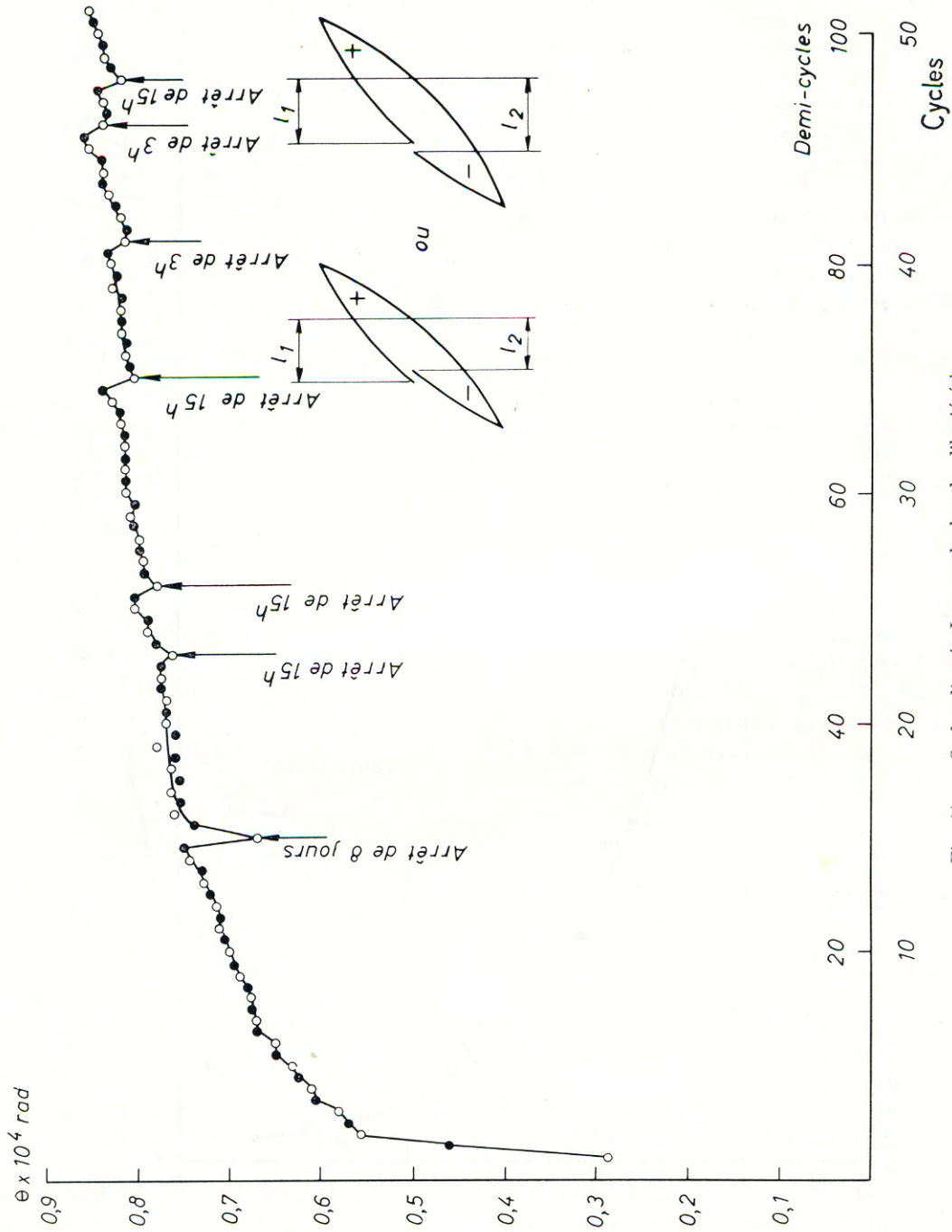


Fig. 11. — Cycles alternés. Largeur des boucles d'hystérésis

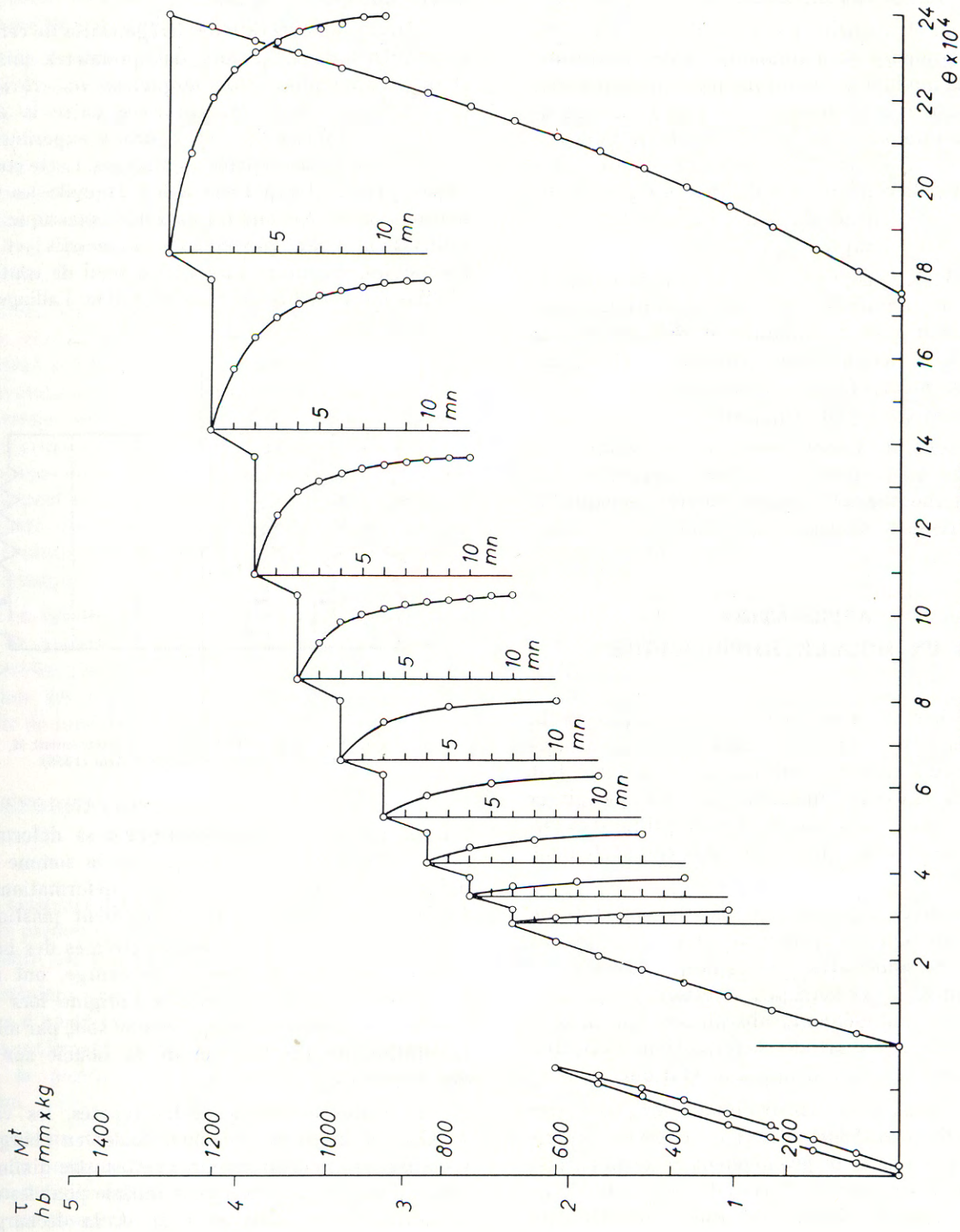


Fig. 12. — Essai de torsion à 350° C.

alternés une évolution avec accroissement rapide de la surface de la boucle, suivie d'une seconde phase stationnaire. C'est l'aspect classique des courbes de fluage des métaux.

On peut également noter l'influence du vieillissement prolongé à l'ambiante, sous contrainte nulle, sur le module du métal préalablement déformé par les cycles à hystérésis. De ce fait la notion de module du Coulomb de l'alliage ZT 1 en tant que « constante » n'est pas applicable, ce module varie en fonction de la contrainte et de l'histoire précédente de l'alliage et dépend du sens de la déformation antérieure et du temps.

Cependant, jusqu'à 350°, la stabilité de la structure se manifeste par une évolution faible des caractéristiques mécaniques et rhéologiques en fonction de la température. Au-delà de 350°, des contraintes, même faibles, déterminent des déformations plastiques non négligeables.

On a constaté l'effet bénéfique des traitements de surface. Ils évitent l'extrême dispersion des valeurs du module de torsion relevées quelquefois lors des premiers cycles.

## 8 APPLICATION D'UN MODÈLE RHÉOLOGIQUE

La recherche d'un modèle rhéologique et la confrontation des courbes théoriques et expérimentales contrainte-déformation n'ont d'autre but que de rattacher ces comportements à un mécanisme lié à la structure de l'alliage et susceptible d'expliquer les anomalies apparentes de comportement du ZT 1.

La méthode expérimentale de torsion statique permet d'aborder le problème dans de bonnes conditions : sollicitation mécanique alternée et rigoureusement symétrique, effort appliqué s'exerçant instantanément, abstraction du facteur temps puisque la lecture des déformations s'effectue sur un alliage en état d'équilibre statique.

Un des modèles rhéologiques proposés par PERSOZ [23] correspond bien aux courbes expérimentales. Il s'agit d'un groupement ressorts-patins, modèle dit M (initiale de Maxwell), *figure 13*, dans lequel les ressorts jouent le rôle des éléments purement élastiques, les patins représentant les éléments plastiques réversibles, présents dans la matière réelle.

La forme géométrique des cycles d'hystérésis théorique d'un tel modèle est proche, aux phénomènes secondaires près, des courbes réelles obtenues avec divers alliages et métaux.

Faisant abstraction des irrégularités de certaines éprouvettes de ZT 1 lors des premières mises en charge, anomalies sur lesquelles on reviendra, on est frappé de la concordance entre la courbe théorique proposée et les courbes expérimentales obtenues en cycles répétés ou alternés. Cette confrontation justifie l'hypothèse selon laquelle les déformations observées ont un caractère plastique : elles s'effectuent par glissements successifs et sont réversibles, du moins tant qu'un seuil de contrainte n'a pas été franchi. On considère donc l'alliage ZT 1

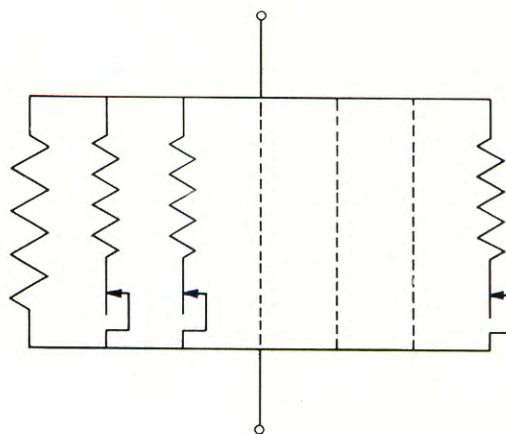


Fig. 13. — Modèle rhéologique : groupement M, d'après B. PERSOZ, *Rheologica Acta* (1958)

comme un solide plasto-élastique : sa déformation sous l'effet du couple appliqué est la somme d'une déformation élastique et d'une déformation permanente, c'est-à-dire d'un écoulement plastique.

Les tangentes aux points extrêmes des boucles d'hystérésis dans le sens de la charge, ont même inclinaison que la tangente à l'origine lors de la première mise en charge, quelle que soit, par ailleurs, l'évolution de l'inclinaison de la boucle sur l'axe des abscisses.

Lors des essais en cycles répétés, les valeurs de  $G$  pour les trois premières mises en charge ont présenté, pour certaines éprouvettes, une diminution suivie d'un retour à la valeur initiale pour les cycles suivants (*fig. 6*, courbes 1, 2). A la décharge les tangentes à l'origine ont, par contre, toujours gardé une valeur comparable à la tangente de la première mise en charge.

On peut en déduire que les déformations non linéaires déterminent la disparition de certaines interactions, par exemple contraintes internes, effets de vieillissement et de relaxation, qui perturbent la mesure de l'élasticité de structure.

Si les faibles déformations plastiques n'influencent pas sur l'élasticité du réseau il importe cependant, en présence d'un matériau élasto-plastique, de considérer le rapport contrainte-déformation comme la tangente à la courbe d'hystérésis en un point donné de cette courbe. Ce rapport est donc fonction de l'histoire du matériau (qui conditionne la forme de la boucle) et du sens dans lequel est appliquée la contrainte.

Ainsi, les valeurs considérées arbitrairement comme étant celles du module et leur évolution, présentées sur la *figure 8*, ne sont que l'expression de l'évolution de l'inclinaison de cette branche d'hystérésis sur l'axe des déformations. Si ces valeurs avaient été relevées à l'extrémité des boucles dans le sens de la décharge, elles se seraient révélées sensiblement constantes et justes, quant au module d'élasticité du réseau; elles auraient alors masqué cette évolution de la forme de la boucle  $\sigma(\epsilon)$  si caractéristique.

Il en résulte que la notion de module, lorsqu'il s'agit de matériaux aptes à présenter des boucles d'hystérésis plastique, doit s'appuyer sur l'interprétation des courbes expérimentales ou calculées à partir de modèles rhéologiques.

## 9 DÉFORMATIONS ÉLASTO-PLASTIQUES ET STRUCTURE

L'existence des déformations cycliques plastiques fermées permet de faire le choix parmi les hypothèses expliquant ce phénomène.

Certaines caractéristiques géométriques des boucles d'hystérésis possèdent un degré de stabilité remarquablement élevé. Il s'agit de leur symétrie et de la position de leur centre par rapport à l'origine.

Après un déplacement au cours de trois premiers cycles, la position de ce centre peut être considérée comme définitivement acquise (*fig. 14*), du moins en ce qui concerne les cinquante cycles suivants. Cette stabilité montre la faible importance des déformations plastiques non réversibles qui se manifeste après les trois premiers cycles.

On constate la superposition des branches ascendantes de chacun des cinquième et quarante-cinquième cycles en faisant coïncider les sommets et en inversant le sens des coordonnées pour l'une des branches.

L'examen de la variation de la largeur de deux mêmes boucles en fonction de la contrainte met également en évidence la symétrie des cycles.

L'identité de la forme géométrique des branches formant une boucle fermée implique l'identité et la symétrie des valeurs des coefficients angulaires des tangentes aux points symétriques. La *figure 15* montre les variations de ces coefficients le long des courbes.

Sur la *figure 15* ont été également portées les courbes correspondantes de la première mise en charge à échelle double permettant de constater la légère évolution des boucles dans le sens d'un élargissement. Pour des contraintes maximales moins importantes, les cycles seraient parfaitement stables et le rapport de similitude de la forme des branches cycliques et de la mise en charge initiale obéirait parfaitement aux lois énoncées par AKOULOV et DEGTIAR [10] et aux formules de MASING [24].

La propriété de symétrie d'une boucle d'hystérésis et l'absence d'accumulation des déformations plastiques irréversibles après un nombre de cycles suffisant, sont conditionnées par la nature des déformations élasto-plastiques et trouvent une explication dans la théorie de l'hystérésis plastique, telle qu'elle est décrite par A. COTTRELL [11]; elles sont surtout expliquées par les recherches de N. AKOULOV et de ses collaborateurs, exposées en détails dans la monographie [10].

Le développement théorique est basé sur l'hypothèse suivante : le nombre des dislocations de toute nature, dans le cadre de contraintes faibles, est constant. Sous l'action de contraintes alternées, les dislocations libres décrivent, dans le champ quasi périodique de contraintes internes créé par les dislocations sessiles, des boucles individuelles d'hystérésis, le mouvement étant effectué entre les positions d'énergie minimale voisines. Chaque dislocation possède une valeur de contrainte critique individuelle pour laquelle s'effectue ce mouvement : cette valeur est conditionnée par les contraintes extérieures d'une part et les contraintes internes dues aux dislocations sessiles d'autre part.

Partant de cette image, AKOULOV et GALENKO attribuent à l'ensemble des dislocations libres une fonction de distribution et, par les méthodes de

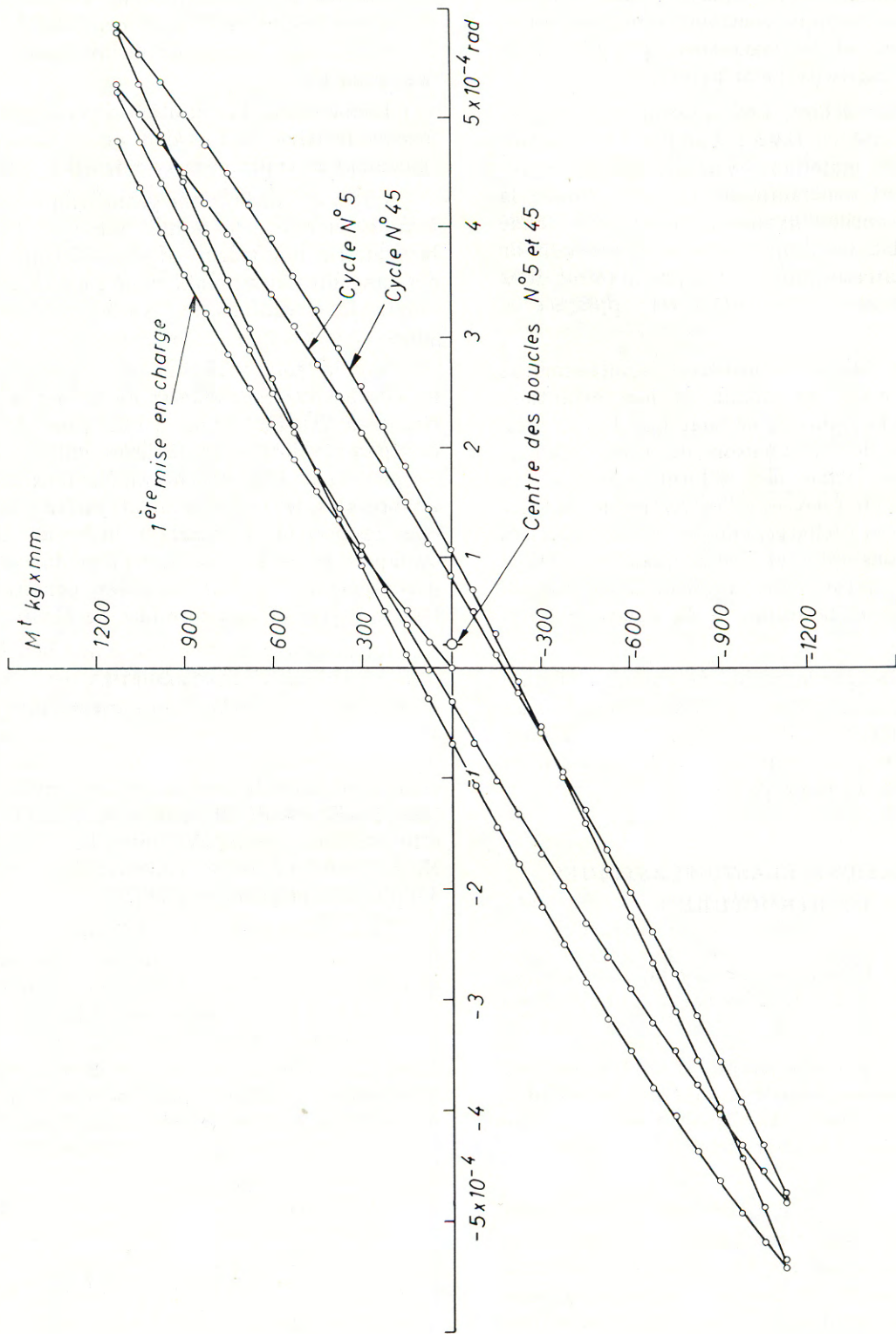


Fig. 14. — 5<sup>e</sup> et 45<sup>e</sup> cycles alternés. Position du centre des boucles par rapport à l'origine

la physique statistique, déduisent la forme analytique des branches des boucles, du type

$$\varepsilon = \sum a_n \sigma^n,$$

$\varepsilon$ , déformations,

$\sigma$ , contrainte appliquée,

$a_n$ , coefficient numérique.

Cette expression mathématique, que AKOULOV déduit également d'une méthode formelle, tient

cyclique. En effet, les observations métallographiques optiques et électroniques n'ont pu déceler ces déformations, de l'ordre de 250 Å par grain moyen.

Cependant, les clichés de diffraction des rayons X, réalisés selon la méthode du rayonnement monochromatique, ont mis en évidence un élargissement des raies immédiatement après les cycles. Après un laps de temps de huit jours, les raies reprennent leur largeur initiale, sans que ce retour modifie la forme géométrique de l'éprouvette.

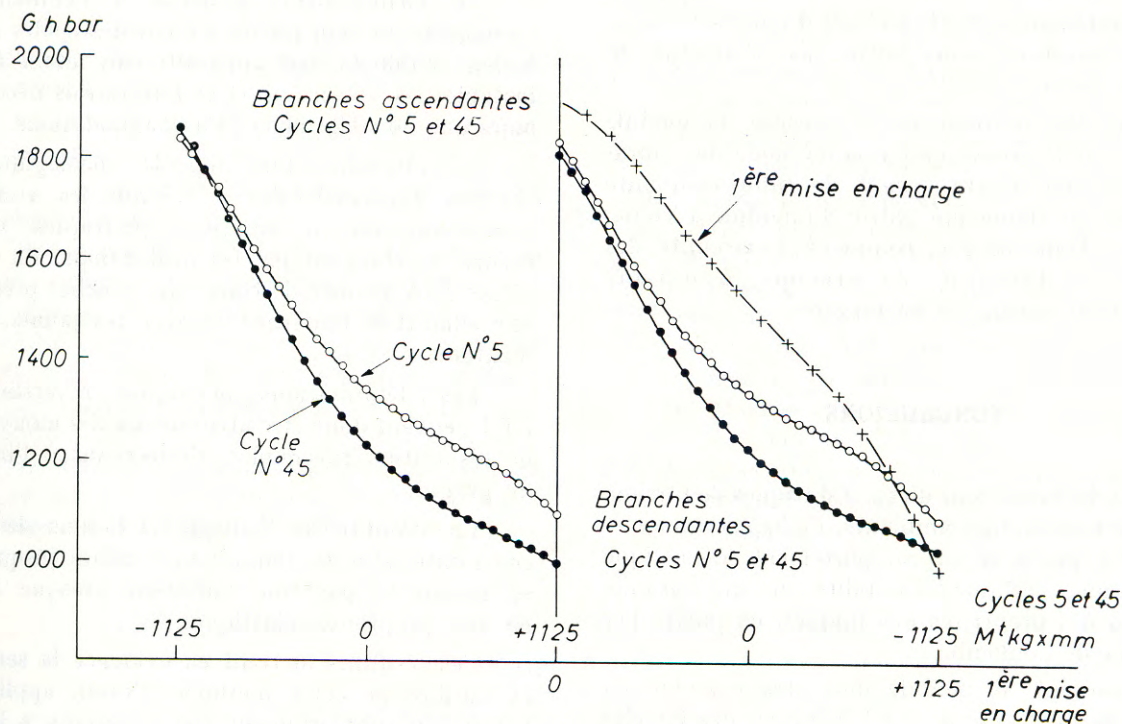


Fig. 15. — Variation du module de rigidité le long des courbes des cycles 5 et 45

compte de la symétrie des boucles et de leur similitude avec la courbe de mise en charge.

Les essais dont les résultats viennent d'être exposés, semblent confirmer une bonne constance du nombre de dislocations libres, leur léger accroissement se traduisant par l'élargissement lent mais progressif des largeurs des boucles.

La morphologie des divers précipités intermétalliques semble consolider considérablement les joints des grains, de manière à confiner le mouvement des dislocations à l'intérieur de chaque grain, d'où l'absence des déformations plastiques irréversibles de l'ensemble de l'éprouvette soumise à la torsion

On sait que, selon la théorie des fluctuations de paramètre, si le réseau reste régulier, les tensions propres hétérogènes de traction ou de compression élastiques auxquelles il est soumis, déterminent une variation de l'angle de diffusion.

D'autre part, le retour des raies à leur largeur initiale semble exclure l'hypothèse d'un phénomène lié au fractionnement des cristaux.

Ainsi les déformations plastiques déterminent dans le réseau des contraintes propres, qui disparaissent après plusieurs jours, lorsqu'on supprime la charge. Leur disparition n'affecte pas la forme spécifique de la boucle d'hystérésis plastique,

mais apporte un élément de discontinuité, le module instantané lors de la remise en charge reprenant sa valeur initiale.

En conséquence, on admettra avec M. MATHIEU [25] que « la très faible déformation plastique ne modifie pas profondément la structure de la phase constituant la matière examinée par le cristallographe. Les atomes conservent les mêmes rapports de voisinages et restent liés entre eux par les mêmes liaisons ». On a même remarqué (M. MATHIEU) qu'au cours de la déformation plastique d'un réseau cristallin, le réseau était théoriquement restauré dans sa perfection après le passage d'une dislocation. Cette restauration, dans notre cas, s'effectue en quelques jours.

Il est donc normal que la mesure du module effectuée par F. GIRARD selon la méthode des vibrations, sur l'éprouvette venant de subir cinquante cycles alternés, donne une valeur du module d'Young inchangée. Dans ce cas, comme à l'extrémité des boucles, c'est l'élasticité de structure, c'est-à-dire l'élasticité du réseau qui est mesurée.

10

## CONCLUSIONS

Dans des conditions d'essais statiques de torsion, et ce à la température ambiante, l'alliage de magnésium ZT 1 présente un comportement anélastique ainsi qu'une certaine instabilité et une grande dispersion des propriétés mécaniques, en particulier du module de Coulomb.

Le concept de module doit être examiné en fonction de l'aptitude du ZT 1 à former des boucles d'hystérésis plastique réversible. Si le module d'élasticité du réseau, exprimé par la valeur de la pente de la tangente à l'origine reste constant, il n'en est pas de même lorsqu'on se déplace le long de la boucle. Hormis la phase initiale de l'inversion de sens de la contrainte, l'inclinaison de la courbe effort-déformation est fonction du point de la boucle où l'on se trouve.

Cette inclinaison, expression de la relation contrainte-déformation, est donc liée à l'histoire du matériau et au temps écoulé entre le précédent effort appliqué et la nouvelle sollicitation. Ce concept de module peut dans ce cas s'exprimer par deux valeurs, 1 800 hb et 1 230 hb, selon que l'on se trouve à l'origine et à l'inversion de sens de l'effort ou bien à l'intersection de la boucle avec l'axe des déformations.

Les déformations plastiques, qui se manifestent fréquemment dès les plus faibles contraintes, déterminent un régime cyclique des boucles d'hystérésis. Dans le domaine des contraintes étudiées, les sollicitations répétées sont caractérisées par les boucles ayant une tendance à la stabilisation.

Par contre, les contraintes alternées, de même valeur, présentent des boucles à surface croissante en fonction du nombre d'alternances et on constate parallèlement une inclinaison croissante des boucles sur l'axe de déformations.

Le vieillissement prolongé à l'ambiante de l'alliage ayant subi préalablement des cycles partiellement stabilisés, fait apparaître un retour à l'état instable; les valeurs de G et l'hystérésis nécessitent alors une nouvelle phase d'accommodations.

L'application d'un modèle rhéologique aux courbes expérimentales a orienté les recherches concernant les déformations plastiques vers la théorie mettant en jeu les dislocations. La théorie d'AKOULOV permet de tracer des courbes présentant une similitude remarquable avec les points expérimentaux.

Les déformations plastiques réversibles du ZT 1 peuvent donc être attribuées à des mouvements de dislocation réversibles, s'effectuant à l'intérieur du grain.

La stabilité de l'alliage ZT 1 sous de faibles contraintes et à des températures allant jusqu'à 350° se manifeste par une variation presque linéaire de ses propriétés élastiques.

Ces résultats mettent en évidence la sensibilité et l'utilité de cette méthode d'essai, appliquée à l'étude du comportement des matériaux à l'échelle de la structure et des relations entre cette dernière et les caractéristiques mécaniques.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] SCHAUM et BURNET. — *J. Res. Nat. Bur. Standards*, vol. 49 (9/52).
- [2] SERTOUR et LE GALL. — *Étude comparative de la résistance à chaud de plusieurs alliages à base de magnésium*. *Rev. Métallurgie*, 4, pp. 241-247 (1956).
- [3] J. HÉRENGUEL, J. BOGHEN et P. LELONG. — *Influence du traitement à chaud dans l'hydrogène sur les propriétés des alliages binaires Mg-Zr*. *Compt. Rend. Ac. Sc.*, p. 2272 (1957).

- [4] J. HÉRENGUEL et J. BOGHEN. — *Durcissement par chauffage sous hydrogène des alliages de magnésium contenant du zirconium*. Mém. Sc. Rev. Métallurgie, n° 4, pp. 371-378 (9/1959).
- [5] G. BRONOËL. — *Étude structurale de l'alliage ZT 1, phénomènes d'hydruration et d'oxydation*. Publ. Scient. et Tech. Ministère Air, n° B.S.T. 129 (1963).
- [6] C. ZENER. — *Elasticity and Anelasticity of Metals*, Chicago (1948) (traduction française, Dunod, Paris).
- [7] C. ZENER. — *Anelasticity of Metals*. Nuovo Cimento, Supplément VII, n° 2 (1958).
- [8] D. H. NIBLETT et J. WILKS. — *Dislocation Damping in Metals*, Advances Phys., vol. 9, n° 33, 1 (1963).
- [9] P. ROBINSON et R. ROWLING. — *Internal Friction*. Iron and Steel, vol. 31, nos 1, 2, 3 (1958).
- [10] N. C. AKULOV. — *Dislokatzii i plastitchnost*. Minsk (1961).
- [11] A. H. COTTRELL. — *Dislocation and Plastic Flow in Crystals*. Oxford, Calendon Press (1953).
- [12] F. GIRARD. — *Étude microscopique de la fissuration par fatigue à haute fréquence*. Advances in Aeronautical Sciences, vol. 3, 4 (1961).
- [13] ... — *Metals Handbook*, vol. 1, éd. Amer. Soc. for Met. (1961).
- [14] W. F. HIGGINS. — *Communication présentée au premier Congrès Européen de la Corrosion*, Paris (18-24/11/1956), à la Maison de la Chimie.
- [15] A. POPOFF et R. CAZE. — *Étude et réalisation d'un microtest des caractéristiques mécaniques et du comportement rhéologique des résines polymères*, N.T. ONERA n° 71 (1963).
- [16] A. NADAI. — *Theory of flow and fracture of Solids*. vol. 1, 2<sup>e</sup> éd., Mc Graw-Hill, N.Y. (1950).  
P. LUDWIK. — *Elemente der technologischen Mechanik*. J. Springer, Berlin (1909).
- [17] A. NORITZYN et P. KISLY. — *Zav. Laboratoria*, 8, 999 (1960).
- [18] J. DE FOUQUET et LEVASSEUR. — *Conférence du 13 janvier 1964 aux membres du GAMAC*.
- [19] M. YAKUTOVITCH et F. RYBALKO. — *D.A.N.*, n° 2 (1948).
- [20] F. RYBALKO et M. YAKUTOVITCH. — *Fis. Met. i Metalloved*, t. IV, n° 3 (1957).
- [21] P. BASTIEN, A. POPOFF et P. AZOU. — *Rev. Métallurgie*, XLIX, n° 11 (1952).
- [22] F. GIRARD. — *Nouvelle méthode de mesure du coefficient de Poisson*, Rech. Aéronautique, n° 72, pp. 19-24 (9-10/1959).
- [23] B. PERSOZ. — *Modèles plasto-élastiques*. Rheologica Acta, nos 2, 3, pp. 90-96 (1958); *Modèles analogiques non linéaires*. Cahiers de Rhéologie, t. IV., fasc. 3, pp. 31-58 (1959).
- [24] G. MASING. — *Wiss. Veröff. Siemens konz.*, III, 1 (1924), V, 2 (1926).
- [25] M. MATHIEU. — *Comportement rhéologique et structure*. Cahiers du Groupe Français de Rhéologie. vol. IV, n° 1, pp. 5-30 (1959).



# PHÉNOMÉNOLOGIE DU FLUAGE ET DE LA RECOUVRANCE DE VOLUME DES SYSTÈMES VITREUX (1)

par A. J. KOVACS

CENTRE DE RECHERCHES SUR LES MACROMOLÉCULES, STRASBOURG

## RÉSUMÉ

On expose une théorie simple de fluage et de recouvrance de volume applicable aux verres au voisinage de leur transition. Cette théorie est basée sur la variation isotherme du retard d'établissement d'équilibre des configurations moléculaires, variation qui dépend du volume de l'échantillon. Grâce au concept de « volume libre », on montre que les phénomènes étudiés ne sont pas linéaires, et que l'écart par rapport à un comportement linéaire devient appréciable même pour des déformations de volume  $\Delta v/v$  de l'ordre de  $10^{-3}$ .

## INTRODUCTION

La visco-élasticité de volume est un domaine relativement délaissé par les expérimentateurs. La plupart des travaux concerne des excitations sinusoïdales de fréquence acoustique ou ultrasonique provoquant de petites variations du volume, qui peuvent être considérées comme infinitésimales. Ces investigations du domaine linéaire montrent que le module de compressibilité a sa région propre de dispersion, qui dépend de la température et de la pression [1].

Nous nous proposons d'étudier ici la phénoménologie du fluage et de la recouvrance de volume provoqués par une brusque variation de la pression hydrostatique, pendant laquelle la déformation ne peut plus être considérée comme infiniment petite. Si la viscosité de volume (ou le retard à l'équilibre de la déformation après l'application de la pression) dépend du volume libre de l'échantillon,

comme c'est le cas pour la viscosité (et le retard) de cisaillement [2], on conçoit aisément que la déformation visco-élastique du volume ne sera plus linéaire, même si celle-ci est relativement petite. C'est ce que nous allons montrer en étudiant le comportement d'un modèle simple dont les caractéristiques correspondent à l'hypothèse émise.

## THÉORIE PHÉNOMÉNOLOGIQUE

Considérons un corps de Kelvin spécial composé par un élément élastique de module  $K_f$  mis en parallèle avec un amortisseur de viscosité  $\eta_f$ , qui dépend du volume libre. Complétons ce modèle par un deuxième élément élastique en série, de module  $K_g$  (*fig. 1*), dont la déformation symbolise la compressibilité « instantanée » du matériau pendant sa mise en charge. La valeur de ce module dépend évidemment du procédé expérimental d'application de la pression, notamment selon que l'on opère d'une manière adiabatique ou isotherme. Pour simplifier, nous supposons ici que l'expérience est conduite d'une manière isotherme, afin d'éliminer des complications qui résultent de la variation de température de l'éprouvette.

Supposons qu'à l'instant initial  $t = 0$ , le modèle soit en équilibre avec la pression  $P_1$ , son volume spécifique étant  $v_1$ . Si l'on fait varier brusquement la pression de  $\Delta P = P_2 - P_1$ , cette variation provoquera une déformation  $(v - v_1)/v_1$ , qui peut être une fonction du temps. Le changement de pression isotherme nécessite un temps  $t_i$ , au bout duquel la déformation atteint la valeur  $(v_i - v_1)/v_1$ , que nous associons à celle de l'élément élastique

(1) Conférence au Groupe Français de Rhéologie, le 21 janvier 1965.

$K_g$  du modèle. Sous la nouvelle pression  $P_2$ , l'éprouvette tendra vers son volume d'équilibre  $v_2$ , que nous supposons n'être atteint qu'au bout d'un temps  $t \gg t_i$ . Dans le cas contraire, la totalité de la déformation apparaîtra élastique, et l'on aura  $v_i = v_2$ .

Si la déformation finale  $(v_2 - v_1)/v_1$  est de l'ordre de 0,01, ou inférieure à cette valeur, on peut écrire sans erreur appréciable :

$$(1) \quad \begin{aligned} \Delta P = P_2 - P_1 &= -K_g (v_i - v_1)/v_1 \\ &= -K_f (v_2 - v_i)/v_1 \\ &= -K (v_2 - v_1)/v_1 \dots, \end{aligned}$$

où le module  $K$  désigne l'inverse du coefficient de compressibilité isotherme  $\beta = -(1/v) (\partial v / \partial P)_T$ .

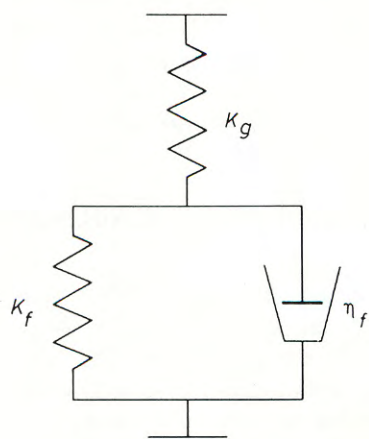


Fig. 1. — Modèle mécanique à trois paramètres, avec un amortisseur dépendant de la déformation

Les deux modules partiels  $K_g$  et  $K_f$  sont liés à  $K$  par la relation classique

$$(2) \quad \beta = \frac{1}{K} = \frac{1}{K_g} + \frac{1}{K_f}$$

qui dérive de (1), en tenant compte de l'identité

$$(3) \quad v_2 - v_1 = v_2 - v_i + v_i - v_1.$$

Pour des temps  $t \gg t_i$ , la déformation retardée est contrôlée par l'équation différentielle

$$(4) \quad \begin{aligned} \eta_f (dv/dt) + K_f (v - v_i) &= K_f (v_2 - v_i) \\ &= \Delta P v_1 \end{aligned}$$

qui exprime l'équilibre entre la résistance élasto-visqueuse et la pression  $\Delta P$  qui s'exerce sur le système

schématisé par la figure 1. On obtient ainsi en modifiant (4) :

$$(5) \quad \frac{dv}{v - v_2} = -\frac{K_f}{\eta_f} dt.$$

Si  $K_f$  et  $\eta_f$  étaient constants, la déformation retardée serait régie par une fonction exponentielle du temps obtenue en intégrant (5), soit :

$$(6) \quad v - v_2 = (v_i - v_2) \exp [-(t - t_i)/\tau_f],$$

où  $\tau_f = \eta_f/K_f$  représente le temps de retard caractéristique de l'élément Kelvin.

Cependant, comme nous l'avons annoncé, nous admettons que  $\eta_f$  (ou  $\tau_f$ ) dépend du volume, ou plus exactement, de la fraction libre de ce dernier,  $f$ , définie par l'excès relatif du volume par rapport à un volume de référence, appelé volume occupé,  $v_0$ , qui ne dépend que de la température et de la pression :

$$(7) \quad f = (v - v_0)/v_0.$$

L'intégrale de l'équation (5) dépend alors de la relation spécifique liant  $\eta_f$  à  $f$ . Nous adopterons pour cette dernière celle proposée par Doolittle [3], qui a été souvent appliquée avec succès dans le domaine de la visco-élasticité (linéaire) des polymères sollicités par cisaillement [2] et qui s'écrit :

$$(8) \quad \text{Log } \eta_f = a + b/f,$$

où  $a$  et  $b$  sont des constantes spécifiques,  $b$  étant voisin de l'unité. Dans ce cas, on peut facilement intégrer (5), compte tenu de (7) et (8). En effet, pendant la déformation retardée du volume,  $\eta_f$  ne dépend que de  $v$  si l'on maintient la température et la pression constantes, c'est-à-dire pendant le fluage et la recouvrance isotherme du volume.

Dans ces conditions, l'équation différentielle (5) prend la forme :

$$(9) \quad \exp(-s) \frac{dv}{v - v_2} = -\frac{K_f}{\eta_{f_2}} dt = -\frac{dt}{\tau_2},$$

où  $s$  désigne une variable auxiliaire définie par :

$$(10) \quad \begin{aligned} s = \text{Log } (\eta_{f_2}/\eta_f) &= b \left( \frac{1}{f_2} - \frac{1}{f} \right) \\ &= b \frac{(v - v_2) v_{02}}{(v_2 - v_{02})(v - v_{02})}, \end{aligned}$$

et  $\tau_2$ , le retard caractéristique de la déformation au voisinage de l'équilibre final sous la nouvelle pression  $P_2$ . Les indices 2 se réfèrent à ce même état, lorsque le volume spécifique a pour valeur  $v_2$ .

Le tableau I résume les variations des différents paramètres au cours des expériences que nous envisageons ici.

TABLEAU I

Temps .....	0	$t_i$	$t \geq t_i$	$\infty$
Pression .....	$P_1$	$P_2$	$P_2$	$P_2$
Volume spécifique ....	$v_1$	$v_i$	$v$	$v_2$
Volume spéc. occupé...	$v_{01}$	$v_{02}$	$v_{02}$	$v_{02}$
Fraction libre de $v$ ....	$f_1$	$f_i$	$f$	$f_2$
Paramètre $s$ .....	$s_1$	$s_i$	$s$	0

En écrivant (9) autrement, on obtient finalement :

$$(11) \quad \frac{\exp(-s) \cdot ds}{s [1 - (f_2/b) s]} = -\frac{dt}{\tau_2} = -\frac{dt}{a_p \tau_1}.$$

Dans le dernier membre a été introduit un facteur de réduction des retards  $a_p$  analogue à celui utilisé par FERRY et STRATTON [4] et défini à partir de la relation de DOOLITTLE (8), comme étant le rapport des viscosités respectives au voisinage de l'équilibre initial (1) et de l'équilibre final (2) sous des pressions  $P_1$  et  $P_2$ , mais à une même température, c'est-à-dire :

$$(12) \quad a_p = \frac{\eta(P_2)}{\eta(P_1)} = \frac{\eta(f_2)}{\eta(f_1)} = \frac{\tau_2}{\tau_1} \\ = \exp [b (f_1 - f_2) / f_1 f_2].$$

Dans ce qui précède, nous avons admis implicitement que  $K_f$  ne dépendait ni du volume, ni de la pression, ce qui revient à appliquer directement la relation de DOOLITTLE à la variation du retard  $\tau$  de la déformation élasto-visqueuse.

Comme le facteur  $(f_2 s/b)$  est généralement beaucoup plus petit que l'unité, si la déformation reste de l'ordre de 0,01, on peut écrire avec une bonne approximation [5] pour (11) :

$$(13) \quad \frac{\exp(-s) ds}{s} + \frac{f_2}{b} \exp(-s) ds = -\frac{dt}{a_p \tau_1} \\ = -\varphi'(s) ds.$$

Les intégrales de cette équation différentielle dépendent du signe du paramètre  $s$ , de sorte que nous devons envisager deux solutions :

a) si  $v \geq v_2$ , c'est-à-dire si le volume décroît après l'application de la nouvelle pression ( $P_2 > P_1$ ),  $s$  est positif. Il s'agit alors du *fluage* de volume sous compression. On a donc  $f_1 > f_2$  et  $a_p > 1$ .

Dans ces conditions, en intégrant (13) entre l'instant  $t_i$ , lorsque  $s$  a pour valeur  $s_i$  (tabl. I), et un instant  $t \geq t_i$ , lorsque la valeur de  $s$  est comprise entre  $s_i$  et 0, on obtient :

$$(14) \quad \varphi(s, s_i) = \text{Ei}(-s_i) - \text{Ei}(-s) + (f_2/b) \\ [\exp(-s) - \exp(-s_i)] = (t - t_i) / a_p \tau_1,$$

où  $\text{Ei}(-s) = \int_{-\infty}^s e^{-u} \cdot du/u$  désigne la fonction exponentielle intégrale (négative) tabulée [6];

b) si  $P_2 < P_1$ , de sorte que  $v \leq v_2$ , on a  $s \leq 0$  et  $a_p < 1$ . Il s'agit alors de la *recouvrance* de volume obtenue grâce au relâchement de la pression.

Dans ces conditions, pour intégrer (13), on pose  $-s = s'$ , et l'on obtient :

$$(15) \quad \varphi(s', s'_i) = \overline{\text{Ei}}(s'_i) - \overline{\text{Ei}}(s') + (f_2/b) \\ [\exp(s') - \exp(s'_i)] = (t - t_i) / a_p \tau_1,$$

où  $\overline{\text{Ei}}(s') = \int_{-\infty}^{s'} e^u du/u$  désigne la fonction exponentielle intégrale (positive) tabulée [6].

Les relations (14) et (15) constituent les solutions implicites du problème du fluage et de la recouvrance du corps Kelvin dont l'élément visqueux dépend du volume libre suivant la relation de DOOLITTLE. Les termes du premier membre ayant en facteur  $(f_2/b)$  ne sont que des termes correctifs et peuvent être négligés pour de petites déformations, les termes principaux étant constitués par les fonctions exponentielles intégrales [5].

## DISCUSSION

D'après ce qu'on vient de dire, il est clair que le retard de la déformation, mesuré par le temps  $\tau_2 = a_p \tau_1$ , doit être supérieur au temps  $t_i$  nécessaire pour effectuer le changement de pression  $\Delta P$  d'une manière isotherme. En effet, si  $t_i > \tau_2$ , la déformation paraîtra complètement élastique, et fera apparaître un module de compressibilité  $K$ . La

déformation retardée ne pourra être observée que si  $t_i < \tau_2$ . Dans une expérience réelle  $t_i$  peut difficilement être inférieur à une seconde, et il atteindra plusieurs minutes si l'on change la pression d'une manière isotherme pour permettre l'échange de chaleur, engendrée par la variation de pression, avec le milieu extérieur maintenu à température constante. Comme  $K_f$  est de l'ordre de  $10^{11}$  dynes/cm<sup>2</sup> [4], [5], la viscosité de volume  $\eta_f$  doit donc être nettement supérieure à  $10^{11}$  poises pour que  $\tau_2$  soit supérieur à 1 s, c'est-à-dire pour que la déformation retardée soit observable. Autrement dit, et c'est la première conclusion de cette étude, le fluage ou la recouvrance de volume ne peuvent être mis en évidence qu'avec des corps de viscosité supérieure à environ  $10^{11}$  poises, si l'on admet que les coefficients de viscosité de volume et de cisaillement sont du même ordre de grandeur [7]. De telles viscosités peuvent être observées surtout avec des liquides surfondus au voisinage de leur température de transition vitreuse  $T_g$ , où la plupart des corps vitrifiables ont une viscosité de l'ordre de  $10^{13}$  poises (1) [5]. D'autre part, si  $\eta_f$  dépend du volume libre, on devrait pouvoir obtenir aussi des viscosités de cet ordre de grandeur même au-dessus de  $T_g$ , à condition que la pression  $P_2$  soit suffisamment élevée pour que  $(f_2/b)$  soit plus petit que  $(f_g/b)$ ,  $f_g$  étant la fraction libre du volume à  $T_g$  sous 1 atmosphère. On sait, en effet, que la température  $T_g$  croît avec la pression, et cet accroissement est du même ordre de grandeur que celui que l'on calcule à partir de l'hypothèse de travail admise ici, selon laquelle le retard à l'équilibre de volume dépend du volume libre de l'échantillon [5]. De nombreuses observations montrent en effet, que la transition vitreuse se manifeste précisément lorsque le retard à l'équilibre du volume (ou de l'enthalpie) est du même ordre de grandeur que l'échelle de temps qui caractérise la variation de la température [5].

Si l'en est ainsi  $(f_2/b)$  doit être nécessairement plus petit que  $(f_g/b)$ , dont la valeur est généralement comprise entre 0,02 et 0,03, si l'on se réfère aux travaux de FERRY et son école [2], [8]. L'approximation précédemment introduite dans (13) est donc valable si  $|s| \leq 10$ , ce qui correspond à un changement modéré de la pression, inférieur à 1 000 atmosphères. Dans ce domaine, la variation du volume est aussi sensiblement proportionnelle à celle de  $P$ , comme nous l'avons admis en écrivant la relation (1).

(1) Pour des polymères de haute masse moléculaire, la viscosité en cisaillement est nettement supérieure à cette valeur, mais la viscosité de volume est encore du même ordre de grandeur [5].

Dès lors, on peut aisément calculer la déformation visco-élastique du volume consécutive à un changement relativement brusque de pression, si l'on se réfère à une valeur raisonnable de la fraction libre du volume dans un état de référence, par exemple  $f_1$ , et à son coefficient de compressibilité isotherme :

$$\beta_f = -(\partial f / \partial P)_T.$$

Si l'on veut exprimer la variation du volume en fonction du temps mesuré en secondes, par exemple, on doit aussi connaître le retard  $\tau_1$ , au voisinage de l'état initial de référence. Tous les autres paramètres qui entrent dans les équations intégrales (14) et (15) peuvent être déduits de ces grandeurs, en utilisant des relations auxiliaires évidentes :

$$(16) \quad f_2 - f_1 = -\beta_f (P_2 - P_1)$$

qui définit  $\beta_f$  dans le domaine hookien, et

$$(17) \quad f_2 - f_1 = [v_2 - v_1] / v_i (1 + f_i)$$

qui exprime que le volume occupé reste invariant pour  $t \geq t_i$  (tabl. I). De même, on calculera la valeur de  $s_i$  à partir de (10) et (17), ce qui conduit à

$$(18) \quad -s_i = \frac{(v_2 - v_1) (1 + f_2)}{f_2 [v_i (1 + f_2) - v_2]}.$$

Comme les relations finales (14) et (15) ne contiennent qu'implicitement la déformation actuelle au temps  $t$ , par l'intermédiaire du paramètre  $s$ , il convient de convertir les valeurs de  $s$  grâce à la relation :

$$(19) \quad \begin{aligned} \frac{v - v_i}{v_i} &= \frac{f - f_i}{1 + f_i} = \frac{f_2 - f_1}{1 + f_i} + \frac{f - f_2}{1 + f_i} \\ &= \frac{v_2 - v_i}{v_i} + \frac{v_2 f_2 s}{v_i (1 + f_2) (1 - f_2 s)} \end{aligned}$$

qui ne contient que des paramètres connus, et définis précédemment. Ainsi à chaque valeur de  $s$  correspond une valeur unique de la déformation, et les équations (14) et (15) permettent de calculer le temps  $t - t_i$  au bout duquel elle est atteinte, si l'on connaît  $\tau_1$ , et réciproquement. Dans les relations (16) à (19), nous avons admis pour simplifier, que  $b$  est égal à l'unité, mais s'il n'en est pas ainsi, on peut facilement en tenir compte.

Pour conclure cette discussion, nous nous proposons d'illustrer les caractères essentiels de la déformation visco-élastique de volume par quelques exemples numériques, en admettant, pour les deux paramètres nécessaires, des valeurs d'un ordre de grandeur raisonnable, soit, par exemple,

$$f_1 = 0,025 \quad \text{et} \quad \beta_f = 10^{-11} \text{ cm}^2/\text{dyne}.$$

Le tableau II renferme les valeurs des autres paramètres déduites des relations (16) à (19) pour le calcul du fluage ou de la recouvrance de volume de ce matériau hypothétique assujéti à des variations modérées de pression. Pour simplifier, nous y avons admis que  $f_i = f_1$ , ce qui revient à supposer que le changement instantané du volume est sensiblement égal à celui du volume occupé  $v_0$ . Dans ces conditions,

$$a_p = \exp(s_i) \quad \text{et} \quad \beta_f = 1/K_f.$$

TABLEAU II

$10^{-8} P$ (dyne/cm <sup>2</sup> )	$10^2$ ( $f_2 - f_i$ )	$10^2 f_2$	$s_i$	$a_p = \frac{\tau_2}{\tau_1}$	COURBE
+ 5,00	— 5,000	2,000	+ 10,000	$2,203 \times 10^4$	<i>a</i>
— 5,00	+ 5,000	3,000	— 6,667	$1,273 \times 10^{-3}$	<i>a'</i>
+ 1,19	— 1,190	2,381	+ 2,000	7,389	<i>b</i>
— 1,19	+ 1,190	2,619	— 1,820	0,162	<i>b'</i>
± 0	± 0	2,500	± 0	1	<i>c</i>

On notera que pour une variation de pression donnée, la valeur absolue de  $s_i$  varie avec le signe de  $\Delta P$ , bien que l'amplitude de la variation du volume :  $|v_2 - v_i|$  reste la même.

La figure 2 représente les courbes normées de fluage de volume, en fonction du logarithme du temps  $t - t_i$ , rapporté au retard  $\tau_1$ . Les courbes (*a*) et (*b*) correspondent respectivement à un accroissement de pression de 500 et de 120 atm. environ (tabl. II). La courbe (*c*) représente la fonction exponentielle classique [équ. (6)] que l'on devrait obtenir si  $\eta_f$  était indépendant du volume. Cette courbe correspond aussi au cas limite de (14) lorsque  $s_i$ , c'est-à-dire  $\Delta P$ , tend vers zéro. On notera que la variation de  $\eta_f$  avec le volume entraîne un *ralentissement* considérable du fluage de volume qui peut s'étendre sur plusieurs décades de l'échelle des temps, même pour une valeur modérée de  $\Delta P$ .

Les abscisses  $\tau_2$ ,  $\tau_1$ , c'est-à-dire les facteurs d'accroissement du retard  $a_p$ , dû à la diminution isotherme du volume libre [équ. (12)], ont été indiquées par des flèches verticales.

La figure 3 représente les courbes de *recouvrance* *a'* et *b'* après le relâchement de pression  $\Delta P$ , de même valeur absolue que précédemment (tabl. II). L'échelle des ordonnées est encore normée par l'amplitude de la déformation, cependant que l'échelle des temps est ici linéaire, tout en étant rapportée au retard  $\tau_1$ . La courbe (*c*) indique, comme précédemment, la fonction exponentielle, qui est aussi le cas limite de l'équation (15), lorsque  $s_i$ , c'est-à-dire  $\Delta P$ , tend vers zéro. Enfin, nous avons aussi représenté sur cette figure, pour comparaison, les courbes (*a*) et (*b*) obtenues pour le fluage, ainsi que la tangente initiale (en pointillés), qui est commune à toute cette famille de courbes isothermes à condition que  $f_i = f_1$ .

La figure 3 montre clairement que l'accroissement du volume libre au cours de la recouvrance a un effet *accélérateur*, de sorte que la recouvrance est en quelque sorte autocatalytique.

Cette asymétrie des déformations visco-élastiques de volume de même amplitude, mais de signes contraires (selon le signe de  $\Delta P$ ) résulte directement de l'hypothèse admise pour la variation de  $\eta_f$  avec le volume libre. Si l'on utilise des expressions différentes de celle de DOOLITTLE pour exprimer cette variation de  $\eta_f$ , les déformations de signes contraires auront encore le même caractère asymétrique, pourvu que  $\eta_f$  (ou  $\tau$ ) diminue lorsque le volume augmente, et réciproquement.

C'est pourquoi l'étude expérimentale du fluage et de la recouvrance de volume constitue un moyen très efficace pour relier les variations de la viscosité (ou du retard) à celle du volume.

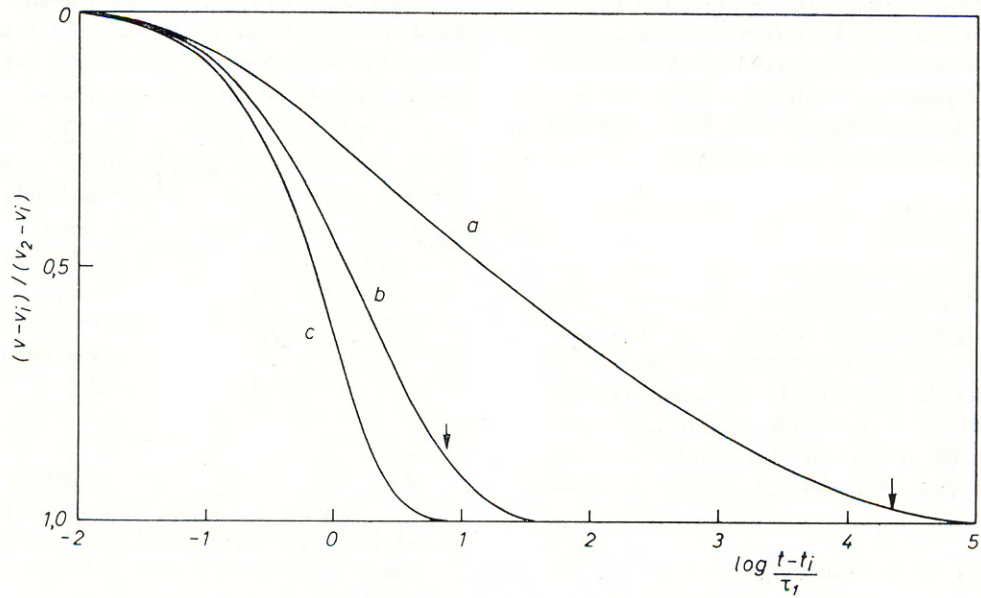


Fig. 2. — Fluage de volume.

Contraction relative sous pression constante, en fonction de  $\log \frac{t - t_i}{\tau_1}$  (cf. tabl. II)

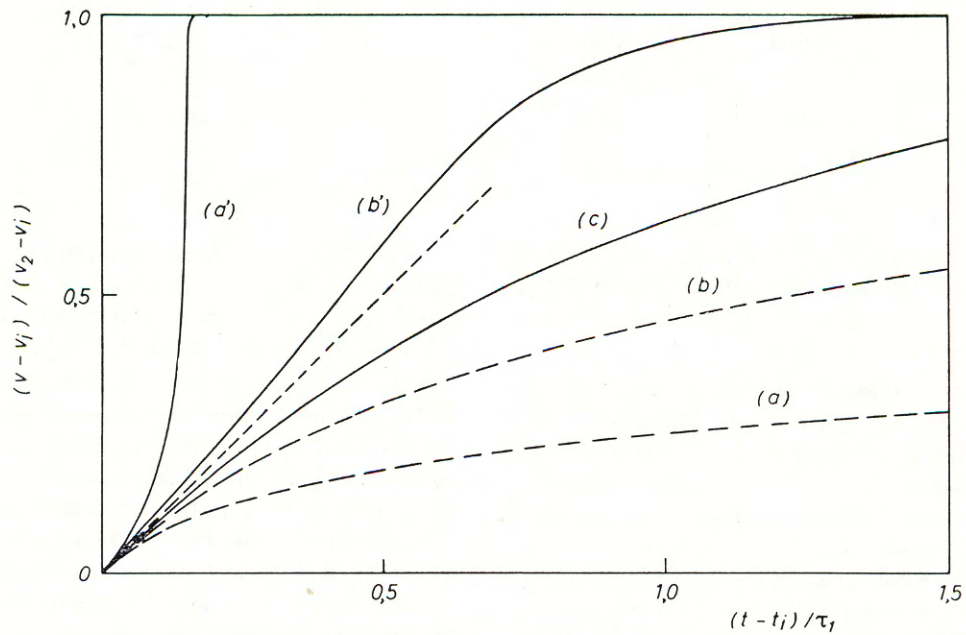


Fig. 3. — Recouvrance de volume.

Dilatation relative après relâchement de la pression (traits pleins); en fonction de  $(t - t_i) / \tau_1$   
 On y a représenté aussi les parties initiales des courbes de fluage (a) et (b) de la figure 2 (traits coupés),  
 ainsi que la tangente initiale commune (pointillé) à cette famille de courbes

Les calculs présentés ici peuvent être généralisés à un modèle plus complexe, constitués par plusieurs éléments Kelvin en série, caractérisés par des modules  $K_{f,i}$  et des viscosités  $\eta_{f,i}$ , pourvu que tous les coefficients de viscosité varient de la même manière avec le volume. On peut même prévoir, au moins qualitativement, l'effet de cette multiplication des éléments Kelvin, sur la déformation, car toute distribution (discrète ou continue) des retards provoque un ralentissement de la déformation

## EXEMPLES EXPÉRIMENTAUX

Certaines expériences effectuées dans ce domaine semblent confirmer ces prévisions théoriques, au moins qualitativement; d'autres, par contre, sont apparemment en contradiction avec elles.

C'est ainsi que GEHRKE, en étudiant le fluage de volume du polystyrène sous pression hydrostatique [9], montre que les expériences peuvent être

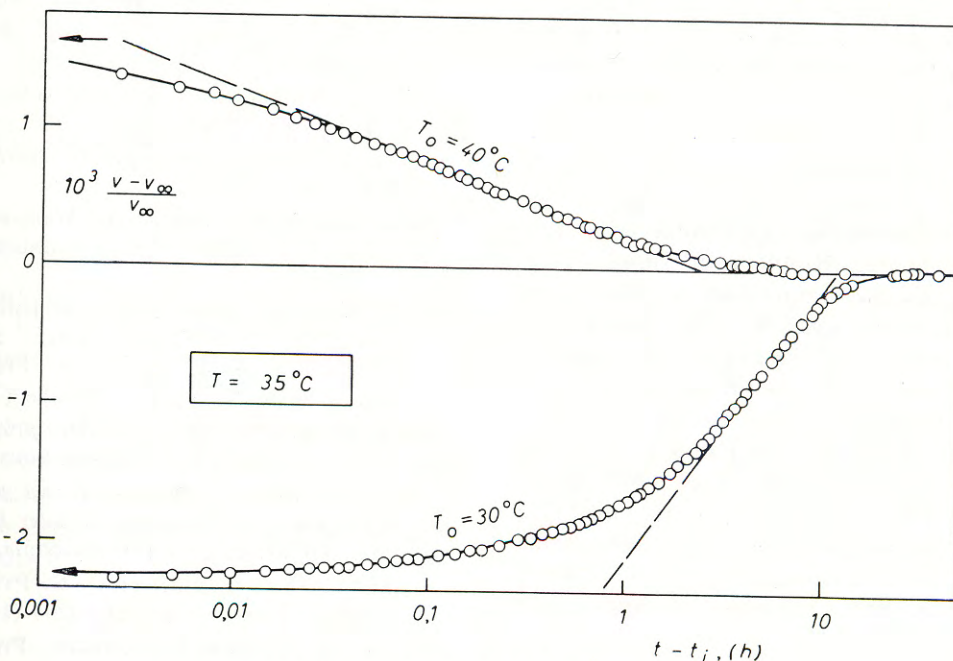


Fig. 4. — Contraction et dilatation isothermes du volume d'un échantillon de polyacétate de vinyle à  $T = 35,0^\circ\text{C}$ , après trempe et réchauffement rapide à partir d'une température  $T_0$  (indiquée) où le corps était préalablement maintenu suffisamment longtemps pour atteindre son équilibre de volume ( $v_\infty$ );  $t_i = 0,01\text{ h}$

visco-élastique, quel que soit le sens de celle-ci. Si tous les  $\eta_{f,i}$  sont constants, la déformation sera ralentie par rapport à la réponse exponentielle simple (courbe *c* des fig. 2 et 3) de l'élément unique envisagé ici, quel que soit son signe. Si, de plus, les coefficients  $\eta_{f,i}$  augmentent lorsque le volume diminue, et vice versa, cette variation aura pour effet (a) de ralentir encore davantage le processus de fluage, et (b) d'accélérer la recouvrance. Cependant, le caractère autocatalytique de ce dernier processus ne deviendra apparent que lorsque l'amplitude de la recouvrance sera suffisamment grande pour compenser le ralentissement dû à l'effet de distribution des retards  $\tau_{f,i}$ .

interprétées au moins qualitativement à partir d'une théorie de VOLKENSTEIN et PITTSYN [10], dont l'expression finale est analogue à l'équation (15). La comparaison de cette théorie avec la nôtre a été faite ailleurs [5].

La variation isotherme du volume des verres, à pression atmosphérique, phénomène que nous étudions depuis une dizaine d'années, offre un autre exemple qui concorde, au moins qualitativement, avec le comportement du modèle simple dont il est question ici. Pour rendre l'accord quantitatif, il serait nécessaire de tenir compte de la distribution des retards, dont l'effet se superpose à celui de la variation des  $\tau_i$  avec le volume [5].

Afin d'illustrer l'asymétrie de la déformation du volume, nous avons reproduit sur la *figure 4* deux isothermes expérimentales du volume en fonction du temps d'observation, qui correspondent à l'évolution du volume vers sa valeur d'équilibre ( $v_{\infty}$ ) lors d'une contraction et d'une dilatation isotherme à 35,0° C; les états initiaux étant respectivement des états d'équilibre à 5° C au-dessus ou au-dessous de la température T de l'expérience, où l'on a amené l'échantillon après refroidissement ou chauffage rapide. Il s'agit ici d'un échantillon de polyacétate de vinyle dont la transition vitreuse se situe précisément au voisinage de 35° C. D'autres expériences de ce genre et leur interprétation ont été consignées dans une autre publication sur la transition vitreuse des polymères amorphes [5].

A part ces manifestations expérimentales en accord qualitatif avec la théorie exposée ici, les expériences de relaxation de la pression à volume quasiment constant, de ROBINET et BUVET [11], indiquent que le rôle du volume libre est bien moins important que celui que nous lui avons attribué en se référant à la relation de DOOLITTLE. En étudiant la variation de la relaxation diélectrique sous pression constante, WILLIAMS [12] arrive à une conclusion analogue. Enfin, GOLDBACH et REHAGE [13] ont montré récemment que la non-linéarité de la déformation visco-élastique du volume à pression constante ne devient perceptible que pour des déformations supérieures à  $3 \cdot 10^{-4}$ , cependant qu'en toute rigueur, la théorie présentée ici ne présente pas de domaine linéaire.

Aussi, l'étude phénoménologique du fluage et de la recouvrance de volume que nous avons envisagée ici, ne constitue-t-elle qu'une base nécessairement simple pour guider utilement de nouvelles expériences. Son application quantitative au comportement réel des matériaux nécessite cependant

des raffinements que l'on pourra préciser au fur et à mesure que de nouvelles informations deviendront disponibles dans ce domaine de la rhéologie.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] J. E. Mc KINNEY, H. V. BELCHER et R. S. MARVIN. — *Trans. Soc. Rheology*, **4**, 347 (1960).
- [2] M. L. WILLIAMS, R. F. LANDEL et J. D. FERRY. — *J. Am. Chem. Soc.*, **77**, 3701 (1955).
- [3] A. K. DOOLITTLE. — *J. Appl. Phys.*, **22**, 1471 (1951).
- [4] J. D. FERRY et R. A. STRATTON. — *Kolloid Z.*, **171**, 107 (1960).
- [5] A. J. KOVACS. — *Fortschr. Hochpoly. Forsch.*, **3**, 394 (1963).
- [6] *British Assn. Adv. Sci. Mathematical Tables*, vol. I, University Press, Cambridge, pp. 31-33 (1946).
- [7] T. A. LITOVITZ. — *Liquid relaxation phenomena and the Glass State*, dans « Non-Crystalline Solids », édité par V. D. Frechette, Wiley and Sons, N. Y., pp. 252-268 (1960).
- [8] J. D. FERRY. — *Viscoelastic properties of polymers*, chap. XI, Wiley and Sons, N. Y. (1961).
- [9] P. GEHRKE. — *Schmelzen und glassige Erstarrung von Hochpolymeren unter hohen Drucken*. Dissertation, Techn. Hochschule, Aachen (1960).
- [10] M. V. VOLKENSTEIN et O. B. PTITSYN. — *Sov. Phys. Techn. Phys.*, **26**, 2204 (1956).
- [11] J. C. ROBINET et R. BUVET. — Prétirage, n° 361, du Congrès IUPAC à Prague (sept. 1965).
- [12] G. WILLIAMS. — *Trans. Faraday Soc.*, **60**, 1556 (1964).
- [13] G. GOLDBACH et G. REHAGE. — Prétirage, n° 269, du Congrès IUPAC à Prague (sept. 1965).



# COMPORTEMENT MÉCANIQUE DE VOLUME DES POLYMÈRES SOLIDES AMORPHES AU VOISINAGE DE LEUR TEMPÉRATURE DE TRANSITION VITREUSE

par J. C. ROBINET et R. BUVET

ÉCOLE SUPÉRIEURE DE PHYSIQUE  
ET DE CHIMIE INDUSTRIELLES DE LA VILLE DE PARIS

## RÉSUMÉ

Les propriétés visco-élastiques de volume des polymères solides sont envisagées dans un cadre très général, comprenant l'ensemble des phénomènes de transition vitreuse.

Une méthode de mesure des propriétés visco-élastiques en compression hydrostatique est décrite.

Les résultats obtenus concernant l'acétate de polyvinyle et le polystyrène sont présentés et analysés dans le cadre des théories du volume libre.

mécaniques et thermiques, les variables de déformation nécessaires et suffisantes pour le définir sont : le volume  $V$ , la déformation de cisaillement  $\gamma$  et l'entropie  $S$ . Les forces correspondantes sont : la pression  $P$ , la contrainte de cisaillement  $\sigma$  et la température  $T$ .

Dans le cas d'une transformation au voisinage de l'équilibre, il est possible [1] de décrire la correspondance entre contraintes et déformations sous une forme matricielle symétrique :

$$\left| \begin{array}{ccc|c}
 \left( \frac{\partial S}{\partial T} \right)_{P\sigma} & \left( \frac{\partial S}{\partial P} \right)_{T\sigma} & \left( \frac{\partial S}{\partial \sigma} \right)_{PT} & dT \\
 \cdot & \left( \frac{\partial V}{\partial P} \right)_{T\sigma} & \left( \frac{\partial V}{\partial \sigma} \right)_{PT} & d(-P) \\
 \cdot & \cdot & \left( \frac{\partial \gamma}{\partial \sigma} \right)_{PT} & d\sigma
 \end{array} \right| =$$

ou encore en fonction de l'énergie libre  $G$  de Gibbs :

$$\left| \begin{array}{ccc|c}
 \frac{\partial^2 G}{\partial T^2} & \frac{\partial^2 G}{\partial T \partial P} & \frac{\partial^2 G}{\partial T \partial \sigma} & dT \\
 \cdot & \frac{\partial^2 G}{\partial P^2} & \frac{\partial^2 G}{\partial P \partial \sigma} & d(-P) \\
 \cdot & \cdot & \frac{\partial^2 G}{\partial \sigma^2} & d\sigma
 \end{array} \right| =$$

Les termes de cette matrice, appelée matrice des complaisances, car elle fait correspondre un

## INTRODUCTION

Le terme de transition vitreuse est utilisé en fait pour dénommer un ensemble de phénomènes liés à l'existence de structures amorphes. Il est possible d'en donner une définition sous une forme thermodynamique : la transition vitreuse se traduit par une discontinuité apparente des dérivées secondes des potentiels thermodynamiques (en particulier l'enthalpie libre  $G$ ) par rapport aux forces thermodynamiques du système considéré. Cependant, la transition vitreuse n'est pas une transition du second ordre au sens thermodynamique du terme tel que l'avait défini EHRENFEST, mais un phénomène cinétique lié à l'agitation thermique et aux possibilités de réarrangement des chaînes moléculaires.

Si l'on étudie macroscopiquement un système homogène et isotrope soumis à des contraintes

(1) Conférence au Groupe Français de Rhéologie, le 21 janvier 1965.

vecteur force à un vecteur déplacement, peuvent être exprimés en fonction de coefficients classiques :

$$\begin{vmatrix} dS & dV & d\gamma \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} \frac{C_P}{T} & V_\alpha & \xi \\ \cdot & B_T & \chi \\ \cdot & \cdot & J_T \end{vmatrix} \begin{vmatrix} dT \\ d(-P) \\ d\sigma \end{vmatrix}$$

Les termes de la matrice sont les coefficients thermomécaniques qui caractérisent la transition vitreuse, soit :

$$\frac{C_P}{T} = \frac{\partial^2 G}{\partial T^2} = \left( \frac{\partial S}{\partial T} \right)_{P\sigma},$$

capacité calorifique à pression constante;

$$V_\alpha = \frac{\partial^2 G}{\partial T \partial P} = \left( \frac{\partial S}{\partial P} \right)_{T\sigma} = \left( \frac{\partial V}{\partial T} \right)_{P\sigma},$$

coefficient de dilatation thermique à pression constante;

$$B_T = \frac{\partial^2 G}{\partial P^2} = \left( \frac{\partial V}{\partial P} \right)_{T\sigma},$$

complaisance de compressibilité isotherme;

$$\xi = \frac{\partial^2 G}{\partial T \partial \sigma} = \left( \frac{\partial \sigma}{\partial T} \right)_{P\tau} = \left( \frac{\partial S}{\partial \sigma} \right)_{P\tau},$$

variation d'entropie isotherme et isobare liée à une variation de la contrainte de cisaillement ou variation de la déformation de cisaillement liée à une variation de température;

$$\chi = \frac{\partial^2 G}{\partial P \partial \sigma} = \left( \frac{\partial V}{\partial \sigma} \right)_{P\tau} = \left( \frac{\partial \sigma}{\partial P} \right)_{T\sigma} = 0,$$

ce coefficient doit être nul en raison de la séparabilité du comportement de volume et de cisaillement;

$$J_T = \frac{\partial^2 G}{\partial \sigma^2} = \left( \frac{\partial \gamma}{\partial \sigma} \right)_{P\tau},$$

complaisance de cisaillement isotherme.

Les études cinétiques menées au voisinage de la transition vitreuse ont surtout porté jusqu'à présent sur la complaisance de cisaillement  $J_T$  [2] et sur le coefficient de dilatation thermique [3].

Des mesures portant sur la chaleur spécifique [4] n'ont donné que des résultats qualitatifs, en raison de la quasi-impossibilité de mesurer  $C_p$  de façon isotherme pendant une expérience d'une certaine

durée. Par contre, des mesures de compressibilité peuvent être conduites pour venir compléter l'ensemble des coefficients thermodynamiques qui jouent un rôle dans la phénoménologie de la transition vitreuse.

Des mesures de compressibilité des composés macromoléculaires ont déjà été effectuées par un certain nombre d'auteurs, entre autres, PHILIPPOFF [5], JENCKEL [6], MATSUOKA et MAXWELL [7], O'REILLY [8], HEYDEMANN et GUICKING [9], en ce qui concerne le domaine statique; par MARVIN et MCKINNEY [10], jusqu'à 5 000 Hz; par MASON [11], MARVIN [12], NOLLE [13], SACH [14], LITOVITZ [15], BUVET [16], HELLWEGE, KNAPPE et LEHMANN [17], aux fréquences ultra-sonores.

Sans que ce point de vue ait toujours été étudié explicitement par les auteurs précités, il est possible d'extraire des résultats obtenus par ceux-ci que les phénomènes de compression hydrostatique des polymères présentent des propriétés de dispersion dans toutes les gammes de fréquences dans lesquelles ceux-ci ont été étudiés. Cependant, pour l'établissement d'une correspondance entre manifestations mécaniques et thermiques des phénomènes de transition, seuls peuvent être pris en considération les essais mécaniques correspondant au comportement statique ou quasi statique, puisque les temps d'expérience utilisés au cours des études dilatométriques correspondent précisément à la même gamme. Parmi les expérimentateurs qui se sont livrés à de tels essais, MATSUOKA et MAXWELL [7], O'REILLY [8], ainsi que HELLWEGE [17], ont étudié l'influence de la température sur le module de compressibilité des polymères, mais n'ont pas poursuivi d'études exhaustives de la cinétique du phénomène. PHILIPPOFF et BRODNYAN [18] ont, par ailleurs, étudié l'influence de la fréquence sur la compressibilité des polymères dans la gamme des très basses fréquences de l'ordre du Hz, mais ont effectué cette étude sur des polymères cristallins (polyéthylène).

Il en découle que, dans l'état actuel, les résultats publiés restent insuffisants en ce qui concerne la connaissance des phénomènes de compressibilité transitoire aux fréquences quasi statiques.

Le présent travail expérimental est consacré à une étude du comportement retardé de compressibilité des polymères, effectuée à l'aide de méthodes opérant à partir de sollicitations échelons de compression hydrostatique, dans la gamme des temps d'observation supérieurs à la seconde, et dans l'intervalle de température correspondant au voisinage de la température de transition vitreuse.

## 2 ÉTUDE EXPÉRIMENTALE

### 2.1 Principe.

Dans l'optique que nous avons exposée précédemment, plusieurs impératifs peuvent être dégagés en ce qui concerne la méthode expérimentale à utiliser pour mesurer les propriétés de compressibilité :

— la sollicitation appliquée à l'éprouvette de polymère doit être hydrostatique pure; celle-ci peut, en particulier, être obtenue par l'application d'une pression à un fluide dans lequel le polymère se trouve immergé;

— afin de définir aussi bien que possible la température d'expérimentation, il est indiqué, dans ces conditions, d'utiliser comme fluide de transmission un liquide aussi conducteur que possible de la chaleur;

— tous les liquides présentant, lorsqu'ils sont comprimés, des effets thermiques, il est nécessaire d'utiliser un liquide de transmission pour lequel ces effets sont faibles.

En fonction de ces éléments, le principe de la méthode utilisée a consisté à mesurer la variation de pression hydrostatique produite par une déformation échelon de volume imposée à un échantillon de polymère immergé dans une chambre peu déformable remplie de mercure. Cette méthode est dérivée de celles employées par MATSUOKA et MAXWELL [7], O'REILLY [8] et par PHILIPPOFF et BRODNYAN [18].

### 2.2 Réalisation pratique.

La cellule de mercure est un réservoir cylindrique en acier de diamètre intérieur 4 cm et de hauteur intérieure 10 cm, fermé par un couvercle appliqué sur le réservoir à l'aide de boulons (fig. 1). Les surfaces en regard du réservoir et de ce couvercle cylindriques ont été superfinies et se trouvent appliquées l'une contre l'autre sans autre joint qu'un film d'huile de silicone de viscosité 1 000 000 centistokes, afin d'éviter toute modification du volume intérieur de la chambre sous l'effet de la pression. Le couvercle de la cellule est percé d'un trou cylindrique dans lequel coulisse un piston de diamètre 1 cm; les surfaces en regard de ces deux éléments métalliques ont été usinées au micron près, de telle façon que seul un film d'huile de silicone 1 000 000 centistokes, dont la continuité est assurée par une pastille de Téflon de 50  $\mu$  d'épaisseur appliquée

contre l'extrémité du piston par la pression, suffit à assurer une étanchéité parfaite. Pour éviter tout grippage, le piston et le cylindre sont préalablement frottés à sec avec de la poudre ultra-fine de bisulfure de molybdène. La douceur de l'assemblage est telle que le piston glisse sous son propre poids à l'intérieur du cylindre; dans ces conditions, toutes les causes d'erreur qui pourraient être dues à un frottement excessif sont éliminées.

Le polymère étudié, sous forme de blocs de dimensions de l'ordre du centimètre, préalablement

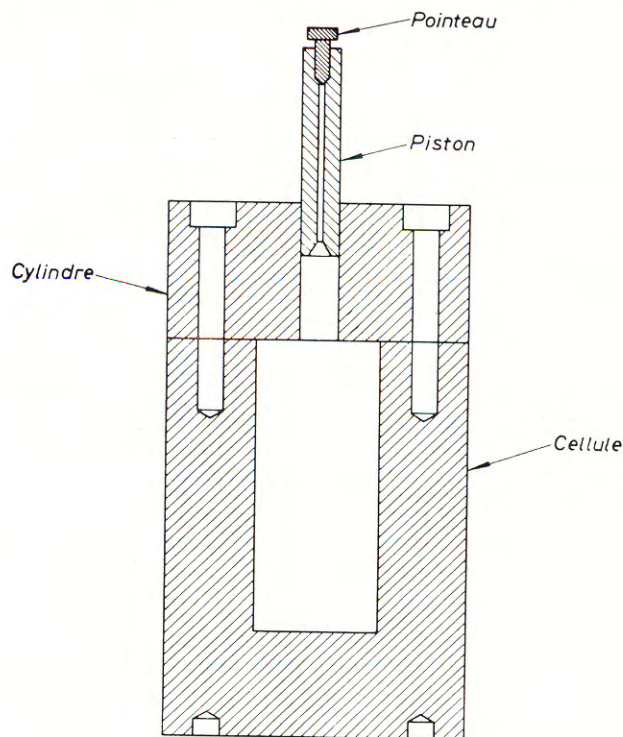


Fig. 1

conservé sous vide, est placé dans le réservoir; après assemblage des deux parties de la chambre, un vide poussé ( $10^{-4}$  mm Hg) est appliqué à l'intérieur de la cellule pendant 24 h afin d'assurer un dégazage complet. Le mercure est alors distillé sous vide directement dans le réservoir, de façon à s'assurer de l'absence de toute trace de gaz dans l'appareil. Le piston peut alors être mis en place et l'air contenu entre la surface du mercure et le piston est chassé par un canal fermé par un pointeau; dans ces conditions, aucune bulle de gaz ne se trouve enfermée dans la cellule.

La totalité de la cellule est contenue dans un thermostat à circulation d'huile de silicone muni

de divers perfectionnements permettant de stabiliser la température de la cellule à 1/1 000 de degré près pendant la durée des expériences (plusieurs jours) (fig. 2), compte non tenu des effets thermiques liés à la déformation. Cette condition est imposée par la valeur élevée du coefficient  $\left(\frac{dT}{dP}\right)_v$  comparativement au phénomène observé.

La déformation de volume du polymère est produite par le déplacement du piston, commandé par une machine de traction Instron modèle T.T.M.L. Pour ce faire, le réservoir est posé sur le plateau d'une cellule de compression à jauge de contrainte placée

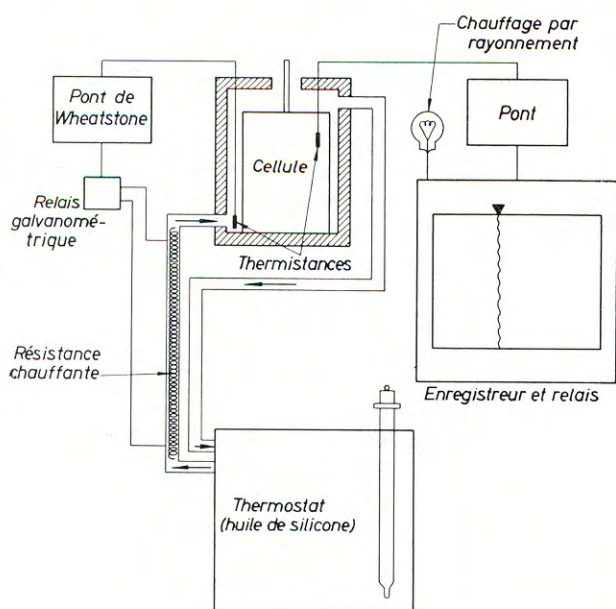


Fig. 2

sur le socle de la machine, et la traverse mobile de celle-ci appuyée, par l'intermédiaire d'une bille, sur le sommet du piston.

Le programme de sollicitations imposé est le plus simple possible et consiste en une déformation quasi instantanée  $\theta_0$  maintenue ensuite constante; à ce programme imposé de déformation correspond, après une période brève de croissance de la contrainte, une période de relaxation de celle-ci qui est enregistrée aussi longtemps qu'une évolution est observable.

### 2,3 Dépouillement des résultats.

Le déplacement de la barre transversale de la machine de traction est imposé et connu par lecture directe, la force  $F(t)$  appliquée, mesurée par la

cellule de compression, est enregistrée de façon continue.

Ces données brutes d'expériences doivent être interprétées de façon à conduire à la fonction de relaxation de compressibilité  $K(t)$ .

En premier lieu, la sollicitation imposée ne correspondant pas à une fonction échelon parfaite, du fait de l'intervention d'un temps de montée en déformation non négligeable, la fonction de relaxation obtenue n'est utilisable que pour des temps supérieurs à 3 s environ.

Par ailleurs, il doit être tenu compte, dans le calcul de  $K(t)$ , de plusieurs éléments liés à la déformation de l'appareil de traction, à celle du réservoir, et surtout à la compressibilité du mercure. Ces diverses constantes de l'appareil ont été établies par des mesures préliminaires d'étalonnage effectuées pour divers remplissages de la cellule correspondant à des matériaux de compressibilité connue : mercure et tungstène.

L'ensemble de ces éléments nous a permis le calcul de la fonction de relaxation de compressibilité  $K(t)$  avec une précision que l'on peut estimer à quelques centièmes.

## 3 ALLURE GÉNÉRALE DES RÉSULTATS OBTENUS

### 3,1 Polymères étudiés.

Les expériences que nous avons réalisées jusqu'à présent, afin de définir les grandes lignes de la phénoménologie de compressibilité retardée dans le domaine quasi statique, ont porté sur l'acétate de polyvinyle et le polystyrène qui présentent l'avantage de posséder une température de transition vitreuse correspondant à un domaine aisément accessible. Par ailleurs, il est possible de disposer dans la littérature de nombreuses données concernant ces matériaux.

Le premier polymère utilisé était un acétate de polyvinyle de haute masse moléculaire d'origine industrielle (Rhodopas de la Société des Usines Chimiques Rhône-Poulenc). Sa température de transition vitreuse mesurée préalablement par une méthode dilatométrique opérant à température linéairement variable (0,14° C/mn) est de 35° C.

Le matériau se présente sous la forme de blocs transparents de volume moyen voisin de 1 cm<sup>3</sup>.

A la suite des expériences, il est moulé dans la cellule en un bloc unique.

Le polystyrène étudié est celui du Groupe Français de Rhéologie fourni par la Compagnie Péchiney-Saint-Gobain. Il est relativement pur et sa masse moléculaire est élevée. Sa température de transition, mesurée par la même méthode que précédemment, est de 96° C.

### 3,2 Allure qualitative des résultats expérimentaux.

#### 3,21 ACÉTATE DE POLYVINYLE.

Les résultats expérimentaux obtenus entre 23° et 50° C pour des déformations variant entre 0,6 et  $5,6 \cdot 10^{-3}$  montrent que, dans tous les cas, un phénomène correspondant à une relaxation de la contrainte après application rapide de la déformation imposée peut être observé (fig. 3).

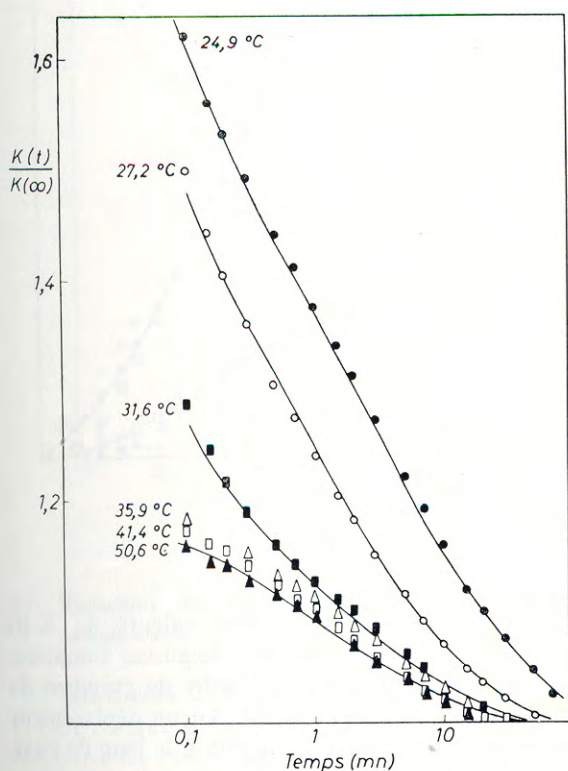


Fig. 3

Cependant, ce phénomène présente une allure différente selon que la température de mesure est élevée ou basse.

Aux températures supérieures à 35° C, les courbes de relaxation obtenues sont très voisines les

unes des autres et correspondent à une relaxation de la contrainte de 20 % environ observable entre 6 s et 30 mn.

Lorsque au contraire la température est diminuée à partir de 35° C, on constate que l'ampleur de la

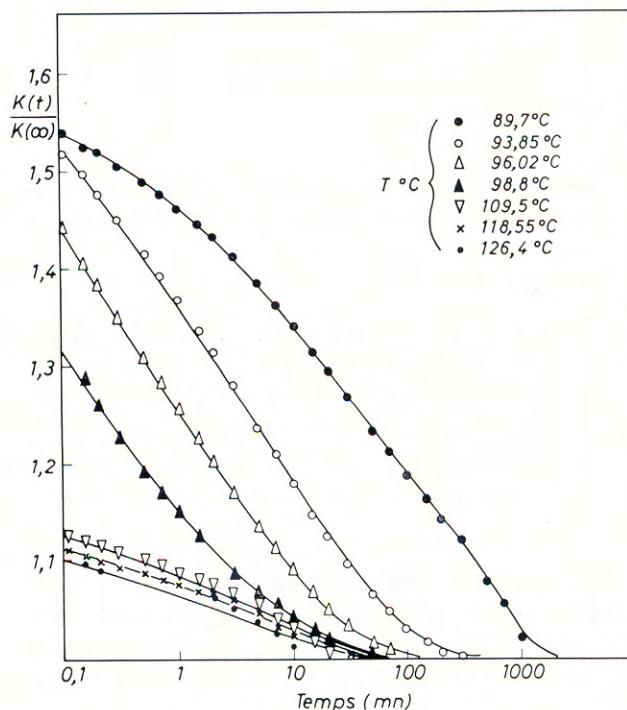


Fig. 4

relaxation se trouve progressivement augmentée par surimpression à la relaxation précédente d'une relaxation supplémentaire, qui apparaît à partir des temps les plus courts et s'étend vers les temps élevés lorsque la température diminue.

C'est ainsi que pour 31,5° C, par exemple, la courbe globale de relaxation reste confondue avec les courbes précédentes pour les temps supérieurs à 3 mn, mais se trouve nettement au-dessus de celles-ci pour les temps inférieurs.

A 24,9° C, la relaxation totale atteint 65 % et le domaine de temps, dans lequel celle-ci est observable, s'étend sensiblement au-delà des temps les plus longs que nous avons utilisés (100 mn).

#### 3,22 POLYSTYRÈNE.

Les courbes obtenues pour le polystyrène présentent les mêmes caractéristiques que celles de l'acétate de polyvinyle (fig. 4). Aux températures

supérieures à 100° C, on observe une courbe de relaxation du même type que pour l'acétate de polyvinyle avec sensiblement le même temps de relaxation. Au-dessous de 100° C apparaît une relaxation dont l'ampleur et la durée croissent très rapidement à mesure que la température décroît.

Nous analyserons à présent quantitativement l'influence des différents paramètres expérimentaux sur les principales caractéristiques de ces courbes de relaxation.

### 3,3 Influence de la déformation imposée et de la température sur les valeurs statiques des modules.

#### 3,31 ACÉTATE DE POLYVINYLE.

Pour tous les essais que nous avons effectués, une valeur asymptotique  $K(\infty)$  du module  $K(t)$  peut être relevée sur les courbes de relaxation, sauf, à la limite, pour les essais correspondant à 25° C.

Les valeurs de  $K(\infty)$  obtenues entre 27° et 50° C pour la température et entre  $0,6$  et  $5,6 \cdot 10^{-3}$  pour  $\frac{\Delta V}{V}$ , se répartissent entre  $1,70$  et  $2,10 \cdot 10^{10}$  C.G.S. Compte tenu des erreurs expérimentales inhérentes à la méthode, de tels écarts sont significatifs, bien qu'il reste difficile d'en déduire quantitativement des lois de variation. Dans l'ensemble, on peut dire que  $K(\infty)$  augmente lorsque  $\frac{\Delta V}{V}$  croît et que la température diminue.

#### 3,32 POLYSTYRÈNE.

La précision plus grande a permis de constater que la courbe de  $K(\infty)$  en fonction de la température est une droite aux températures élevées. Mais pour les températures inférieures à 92° C, le temps nécessaire pour atteindre la valeur de  $K(\infty)$  est supérieur à la durée de nos expériences : 100 h. Donc, dans cette région, les valeurs observées ne sont pas les valeurs d'équilibre.

### 3,4 Influence de la déformation sur la cinétique d'évolution.

Il est possible en première approximation de comparer les cinétiques du phénomène pour différentes valeurs de  $\frac{\Delta V}{V}$  imposées, en comparant les courbes d'évolution de  $\frac{K(t)}{K(\infty)}$  correspondantes et

en prenant pour  $K(\infty)$  la valeur extrapolée des résultats à température élevée.

#### 3,41 ACÉTATE DE POLYVINYLE.

Cette comparaison peut être effectuée soit aux températures supérieures à 35° C, soit aux températures inférieures.

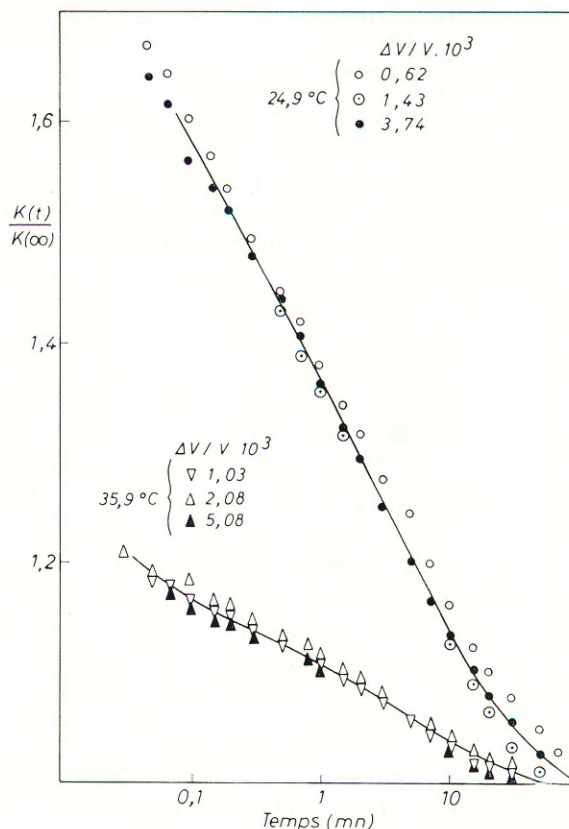


Fig. 5

A 36° C, la dispersion des valeurs de  $K(t)$  obtenues pour des déformations imposées comprises entre  $1$  et  $5 \cdot 10^{-3}$  restent de l'ordre de grandeur de la précision des mesures (fig. 5). Aucun déplacement significatif du domaine de relaxation le long de l'axe des temps ne peut, dans ces conditions, être relevé.

Aux températures inférieures à 35° C, les résultats obtenus sont tout à fait semblables : à 25° C, la figure 3 montre que, pour des déformations imposées comprises entre  $0,6$  et  $3,7 \cdot 10^{-3}$ , les courbes de relaxation relevées ne se différencient pas non plus les unes des autres, à la précision des mesures expérimentales près.

### 3,42 POLYSTYRÈNE.

La précision des mesures étant plus grande, nous avons pu constater un léger glissement des courbes de relaxation vers les temps longs quand  $\frac{\Delta V}{V}$  initial augmente pour  $T < T_g$  (fig. 6). Ce déplacement global de la courbe est de 0,2 décade pour  $\frac{\Delta V}{V}$  variant de  $0,93 \cdot 10^{-3}$  à  $4,65 \cdot 10^{-3}$ , soit une pression initiale de 15 kg/cm<sup>2</sup> à 100 kg/cm<sup>2</sup>.

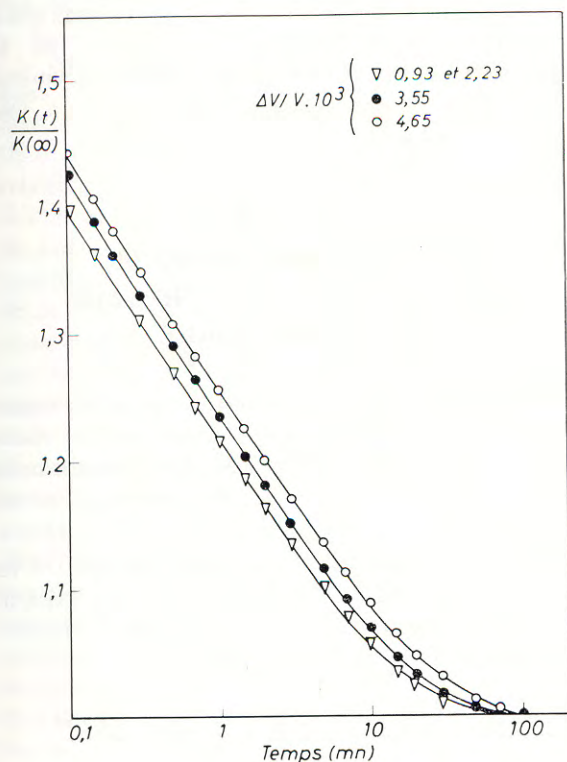


Fig. 6

### 3,5 Variation du domaine de dispersion avec la température.

L'influence de la température sur les valeurs de  $K(\infty)$  restant également faible, il est possible de comparer les cinétiques du phénomène à différentes températures en examinant la position relative des courbes donnant  $\frac{K(t)}{K(\infty)}$  en fonction de  $\log t$ .

### 3,51 ACÉTATE DE POLYVINYLE.

Aux températures supérieures à 35° C, compte tenu de l'échelle des temps de nos mesures, le phénomène de relaxation peut être décrit en première

approximation par un temps de relaxation unique, par ailleurs pratiquement indépendant de la température, et de l'ordre de quelques minutes dans les essais que nous avons effectués.

Aux températures inférieures à 35° C, une telle tentative de description par un temps de relaxation unique serait *a priori* inadéquate, puisque la comparaison qualitative des résultats obtenus aux diverses températures montre que le phénomène résulte, à une température donnée, de la superposition de deux processus de relaxation.

Sans être en mesure, dans l'état actuel de notre expérimentation et de la théorie, de juger de l'applicabilité quantitative d'une méthode de variables réduites à une quelconque fonction de relaxation aux températures inférieures à 35° C, corrigée d'une fonction de relaxation aux températures supérieures, il apparaît que, dans l'ensemble, la variation avec le temps de la différence entre  $K(t)$  pour  $T$  inférieure à 35° C et  $K(t)$  relevé pour toutes les températures supérieures à 35° C, se déplace vers les temps longs d'une décade pour environ 3 à 4° C.

### 3,52 POLYSTYRÈNE.

Dans le domaine des températures supérieures à  $T_g$ , on constate que les courbes sont superposées pour  $T$  compris entre  $T_g$  et  $T_g + 20^\circ$  C. Pour  $T < T_g$ , l'allure des courbes de relaxation est telle qu'il n'apparaît pas qu'une méthode de variables réduites soit applicable. On constate cependant un déplacement global des courbes de 1 décade environ pour 4° C.

## 4

## DISCUSSION

### 4,1 Interprétation des courbes expérimentales.

#### 4,11 RELAXATION A $T > T_g$ .

Le processus de compression employé, qui est relativement rapide par rapport à l'inertie thermique des blocs de polymère et de l'ensemble de la cellule, impose une distinction entre la compressibilité adiabatique et la compressibilité isotherme des échantillons utilisés.

En effet, la compression quasi instantanée du matériau provoque une élévation uniforme de température de celui-ci. La chaleur ainsi produite est, dans un second stade, dissipée à travers le polymère et à l'extérieur du réservoir par l'intermédiaire du mercure et des parois d'acier de celui-ci.

Un calcul thermodynamique simple montre que, en l'absence d'effet retardé :

$$K_{ad} = K_{is} \left[ 1 + \frac{T \alpha^2 K_{ad}}{C_p \rho} \right],$$

où :

$K_{ad}$  est le module statique de compressibilité adiabatique qui serait déterminé en l'absence d'échanges de chaleur entre le polymère et l'ambiance;

$K_{is}$  est le module statique de compressibilité isotherme;

$C_p$  la chaleur spécifique à pression constante;

$\rho$  la masse volumique;

$\alpha$  le coefficient de dilatation thermique statique mesuré pour  $T > T_g$ .

Pour l'acétate de polyvinyle utilisé, les valeurs prises par les différentes constantes du matériau étant approximativement :

$$C_p \simeq 0,2 \text{ cal/g/}^\circ\text{K};$$

$$\alpha_{T < T_g} = 8 \cdot 10^{-4}/^\circ\text{K} \quad \text{à } T = 310^\circ \text{K};$$

et :

$$K_{is} \simeq 2 \cdot 10^{10} \text{ dynes/cm}^2$$

en identifiant  $K_{is}$  à  $K(\infty)$  défini précédemment.

On a :

$$\frac{K_{ad} - K_{is}}{K_{is}} \simeq 0,2.$$

soit une différence de 20 %. Une telle différence correspond à l'ampleur de la relaxation observée aux températures supérieures à 35° C, que nous pouvons ainsi identifier à une évolution en fonction du temps entre les compressibilités adiabatique et isotherme, évolution définie, en ce qui concerne le temps, par la conductibilité thermique de l'ensemble de notre cellule.

Une conclusion identique résulte des calculs effectués pour le polystyrène.

Un calcul quantitatif précis de cette relaxation devrait tenir compte en outre d'une correction liée à l'échauffement du mercure, ainsi que des valeurs de la conductibilité thermique du polymère et de la géométrie détaillée de la cellule, polymère compris.

#### 4,12 RELAXATION A $T < T_g$ .

Aux températures inférieures à  $T_g$ , un phénomène de relaxation supplémentaire se superpose à l'évolution précédemment décrite entre

compressibilités adiabatique et isotherme et fait intervenir des temps de plus en plus longs au fur et à mesure que la température diminue.

Du fait que, pour les temps de l'ordre de la minute, ce phénomène commence à apparaître à partir de 35° C et 98° C, températures relevées par ailleurs comme étant les températures de transition vitreuse de nos polymères, nous pouvons admettre, à titre d'hypothèse de travail, que ce phénomène de compressibilité retardée représente l'équivalent, en ce qui concerne la réponse à une contrainte mécanique, de l'évolution isotherme de volume qui a été observée immédiatement au-dessous de la température de transition vitreuse pour les polymères amorphes en ce qui concerne la réponse à une contrainte thermique.

5

### ANALYSE DES RÉSULTATS OBTENUS DANS LE CADRE DES THÉORIES DU VOLUME LIBRE

Nous analyserons les résultats que nous venons d'exposer à la lumière des théories de la visco-élasticité de volume extrapolées des connaissances obtenues en ce qui concerne la visco-élasticité de cisaillement.

Une telle étude doit permettre de mettre en évidence les rapports et les différences qui existent entre comportement en compressibilité et comportement en cisaillement.

#### 5,1 Établissement des points de comparaison.

La seule théorie, concernant le comportement de volume des polymères, qui soit actuellement suffisamment développée pour permettre des applications pratiques à des résultats expérimentaux, est la théorie du volume libre [19], [20]. Cette théorie n'a pas encore pu être vérifiée avec sûreté en ce qui concerne son application au comportement de volume. Nous devons donc examiner dans quelle mesure elle permettrait d'interpréter nos résultats expérimentaux.

La théorie du volume libre appliquée au comportement de volume implique pratiquement deux conséquences essentielles :

— d'une part, la méthode des variables réduites relative à la température doit être applicable au comportement de relaxation de pression;



— d'autre part, à une même température, la méthode des variables réduites doit également être applicable au déplacement des courbes en fonction de la déformation de volume ou de la pression avec des coefficients que l'on peut calculer.

Nous allons donc tenter de vérifier dans quelle mesure, pour les deux polymères étudiés, ces conséquences de la théorie du volume libre sont valables.

## 5,2 Influence de la température.

Nous avons déjà remarqué que les courbes que nous avons obtenues correspondaient à la superposition de deux phénomènes : l'un de transfert thermique indépendant de la température, l'autre de relaxation mécanique de volume. La possibilité d'interprétation de la partie relaxation mécanique de nos courbes est donc liée au préliminaire que constitue la séparation, dans le phénomène global, de la contribution due au transfert thermique. Ces deux phénomènes ne sont pas séparables *a priori*, car la relaxation mécanique de pression dépend essentiellement de la température, température qui varie en fonction des paramètres régissant le transfert thermique. De plus, au phénomène de relaxation mécanique de volume est couplé un phénomène correspondant à l'apparition d'énergie thermique dans le matériau. Cette énergie est également évacuée du système en fonction des lois qui commandent les transferts thermiques. Par conséquent, au cours d'une relaxation mécanique de volume, il existe toujours un transfert thermique dû à la production permanente de chaleur, production liée au phénomène irréversible de relaxation.

Une telle production de chaleur est d'ailleurs très générale et existe pour tous les phénomènes de relaxation, en particulier pour le cisaillement, bien que les auteurs, jusqu'à présent, ne paraissent pas en avoir tenu compte.

Les courbes de relaxation observées ne sont donc pas des courbes isothermes, même dans la partie qui correspond aux temps suffisamment longs pour que le transfert thermique initial entre comportement adiabatique et comportement isotherme soit pratiquement terminé.

Cependant, en pratique, le transfert thermique est un phénomène rapide (dont le temps de relaxation est de l'ordre de quelques minutes dans notre cas), par rapport au phénomène de relaxation de volume qui s'étend sur plusieurs décades. Par conséquent,

il est raisonnable d'admettre que la partie des courbes correspondant aux temps supérieurs à 30 mn représente, avec une bonne approximation, une relaxation isotherme de pression.

En outre, dans la partie des courbes correspondant aux temps inférieurs à 30 mn, l'amplitude de la relaxation isotherme peut être grande, aux températures suffisamment basses, par rapport à l'amplitude de la relaxation adiabatique-isotherme;

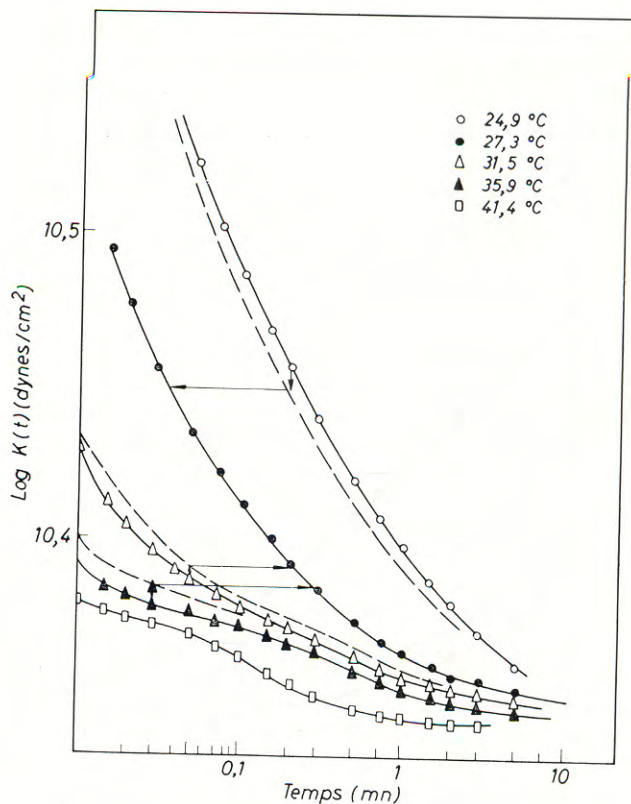


Fig. 7

dans ce cas une interprétation qualitative des courbes doit être possible en négligeant l'existence de cette dernière.

Pour comparer les courbes plus aisément, nous avons représenté  $\log K(t)$  en fonction de  $\log t$  (fig. 7 et 8). Dans cette représentation la méthode des variables réduites se ramène à l'utilisation de deux translations, l'une verticale, l'autre horizontale, qui font se superposer les isothermes point par point. La grandeur de ces translations peut être calculée, en particulier à l'aide d'équations du type W.L.F. [20].

Nous avons appliqué à nos courbes une translation verticale correspondant à la valeur calculée  $\log \frac{K(\infty)_{T_0}}{K(\infty)_T}$  où  $T_0$  est la température de référence que nous avons choisie de 93,8° C pour le polystyrène et de 27,3° C pour l'acétate de polyvinyle. Les valeurs  $K(\infty)$  sont extrapolées depuis les températures supérieures à  $T_g$ .

Si une méthode des variables réduites était parfaitement applicable, les courbes corrigées de

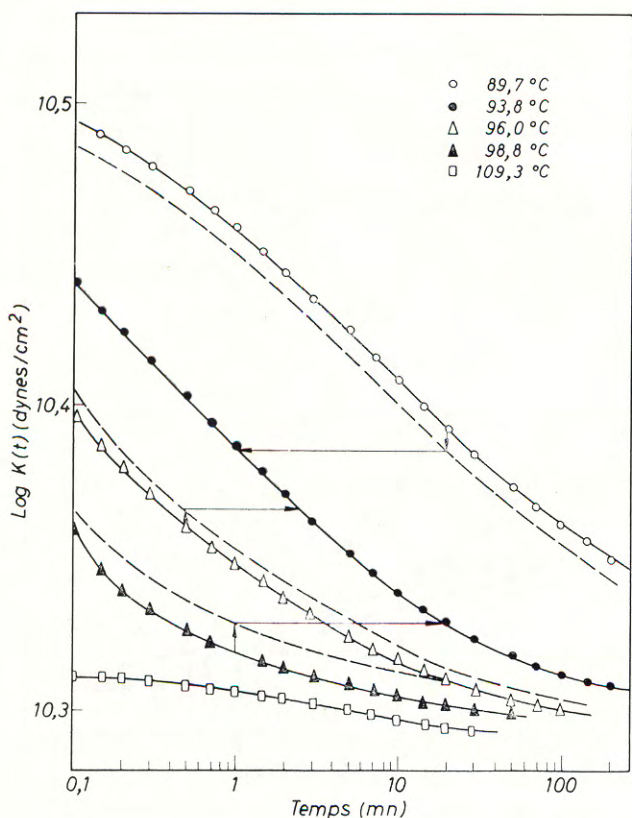


Fig. 8

cette translation verticale devraient se superposer point par point dans une translation horizontale de longueur  $\log a_{T/T_0}$  calculable en fonction du taux de volume libre.

FERRY, en ce qui concerne le cisaillement, a montré que l'on pouvait calculer  $\log a_{T/T_0}$  en fonction uniquement de la température  $T$  et de coefficients qui dépendent de la température de référence  $T_0$  choisie :

$$\log a_{T/T_0} = \frac{C_1(T - T_0)}{C_2 + T - T_0}$$

Dans notre cas il s'agit d'expériences de compressibilité, mais si la théorie du volume libre est applicable, on doit pouvoir calculer  $\log a_{T/T_0}$  par la même formule que pour le cisaillement.

L'observation de nos courbes montre que, si une translation semble pouvoir permettre de faire correspondre certaines parties de celles-ci, il n'y a pas dans l'ensemble une bonne correspondance. En fonction des remarques que nous avons faites précédemment, une telle constatation ne permet cependant pas de conclure qu'une méthode de variables réduites ne serait pas applicable à certaines fonctions expérimentales déduites de nos résultats.

Nous indiquons dans le tableau suivant les longueurs, mesurées sur nos courbes de  $\log a_{T/T_0}$ , du vecteur translation nécessaire à la superposition de la partie des courbes dont la pente est la plus élevée.

Nous indiquons également les valeurs calculées d'après FERRY en utilisant des données obtenues pour des expériences de cisaillement sur les mêmes polymères.

$\Delta T$	T (°C)	$\log a_{T/T_0}$ mesuré	$\log a_{T/T_0}$ calculé
<i>Acétate de polyvinyle</i>			
8,6	35,9	— 1,24	— 3,80
4,2	31,5	— 0,74	— 1,47
0	27,3	0	0
— 2,4	24,9	0,885	0,84
<i>Polystyrène</i>			
5,0	98,8	1,77	1,74
2,2	96,0	0,88	0,84
0	93,8	0	0
— 4,1	89,7	1,50	1,43

On constate, en ce qui concerne l'acétate de polyvinyle, une nette différence entre les valeurs calculées et les mesures pour les températures peu inférieures (27° C à 35° C) à la transition vitreuse.

Aux températures plus basses pour lesquelles une partie plus importante des courbes est susceptible de l'application d'une méthode de variables réduites,

on constate une corrélation convenable entre valeurs calculées et mesurées.

Pour le polystyrène, où l'amplitude de la relaxation mécanique de pression est relativement plus grande que pour l'acétate de polyvinyle, on remarque une assez bonne corrélation pour toutes les valeurs de  $\log a_T/\tau_0$ .

Donc la méthode des variables réduites relative à la température peut être appliquée avec les mêmes coefficients, aux phénomènes de cisaillement et aux phénomènes de compressibilité dans le domaine de température étudié.

Un tel résultat vient confirmer une constatation expérimentale, déjà formulée par certains auteurs (FERRY, KOVACS), selon laquelle l'effet de la température sur les phénomènes retardés de cisaillement et de volume était identique. Cette hypothèse est d'ailleurs implicitement retenue quand on étend la théorie du volume libre initialement élaborée pour la visco-élasticité de cisaillement au comportement retardé de volume, puisque le volume libre, utilisé en tant que paramètre moléculaire, est identique pour les deux comportements.

### 5,3 Influence de la pression.

Il convient cependant de tenter à présent de vérifier si la théorie du volume libre s'applique aussi quand on envisage l'effet de la pression sur le comportement retardé de volume.

A cette fin nous avons effectué à la même température plusieurs expériences de relaxation de pression avec différentes déformations initiales (§ 3,4). Les fonctions de relaxation de pression représentée figures 5 et 6 sont donc des courbes isothermes différentes à  $\frac{\Delta V}{V}$  constants.

Pour pouvoir être appliquée aux expériences de relaxation de pression que nous avons réalisées, la théorie du volume libre exige deux hypothèses supplémentaires émises par KOVACS (21) :

— la compression instantanée déformerait quasi exclusivement le volume occupé, alors que le volume libre serait indéformable instantanément;

— il se produirait ensuite un échange entre volume occupé et volume libre, échange qui provoquerait la relaxation de la pression.

La cinétique de l'échange entre volume libre et volume occupé dépendrait, au cours de l'évolution, du taux de volume libre à chaque instant. Or, au

cours d'une expérience de compression le volume libre diminue, on devrait donc observer un accroissement des temps de relaxation par rapport à une évolution à volume libre constant; par contre, au cours d'une expérience de détente le comportement serait plus rapide qu'une évolution à volume libre constant.

Sur la base de ces hypothèses, dans le cas de nos expériences, on devrait observer au début de l'évolution une cinétique à peu près identique pour toutes les déformations, puisque le volume libre alors n'a pas ou a peu changé. Ensuite les cinétiques deviendraient d'autant plus lentes que la déformation initiale est plus grande, le décalage selon l'axe des temps entre les courbes correspondant aux déformations extrêmes devrait atteindre, vers la fin de l'évolution, d'après cette théorie, une décade pour le polystyrène. Le décalage constaté pour l'acétate de polyvinyle est au plus égal à 0,1 décade (fig. 5) et pour le polystyrène de 0,2 décade ainsi que le montre la figure 6.

La précision plus grande obtenue pour le polystyrène permet de plus de constater que ce glissement des courbes vers les temps longs est à peu près identique pour l'ensemble de la relaxation.

Il semble donc que, dans le cas des expériences qui nous concernent, la disproportion entre la théorie du volume libre, telle qu'elle est conçue actuellement, et nos mesures, soit très considérable. Dans ces conditions et étant donné les écarts constatés également par d'autres auteurs [22], [23], il est raisonnable de penser que la théorie du volume libre nécessiterait certains amendements avant de pouvoir être appliquée à des phénomènes faisant intervenir des contraintes hydrostatiques.

Ceci constitue la raison pour laquelle nous n'avons pas tenté d'aller plus avant dans l'utilisation de théories développées à partir du concept de volume libre, en orientant nos tentatives de discussion dans le cadre de théories strictement phénoménologiques.

### 5,4 Principes généraux d'une théorie de la transition vitreuse.

L'établissement d'une théorie définissant les corrélations entre les phénomènes d'évolution retardée liés à la transition vitreuse ne peut être basé de façon rigoureuse qu'à partir des grandeurs possédant un sens expérimental direct. Dans la mesure où les phénomènes étudiés sont justifiables de l'application

du principe de Boltzmann généralisé à l'effet des contraintes thermodynamiques, une telle théorie peut être développée à partir des conceptions générales utilisées pour l'analyse thermodynamique des phénomènes irréversibles [24].

Dans un tel contexte, il est possible de montrer que les effets cinétiques liés à l'influence des forces généralisées sur l'état d'un polymère amorphe doivent être envisagés comme des phénomènes complexes en raison de l'existence de couplages entre les divers flux et forces. Ces phénomènes de couplages correspondent, par exemple, à l'apparition d'énergie thermique au cours de la relaxation de pression.

Dans l'état actuel de nos connaissances, il ne nous semble pas qu'une telle théorie puisse être bâtie quantitativement, du fait de l'incertitude dans laquelle nous devons rester en ce qui concerne l'applicabilité générale du principe de Boltzmann aux phénomènes en cause, aussi bien qu'en raison de l'insuffisance des données disponibles concernant les effets couplés présentés par les substances amorphes soumises aux différents types de contraintes isotropes.

#### BIBLIOGRAPHIE

- [1] H. B. CALLEN. — *Thermodynamics*, J. Wiley (1961).
- [2] R. S. WITTE et R. L. ANTHONY. — *J. Appl. Phys.*, **22**, 689 (1951).
- [3] A. KOVACS. — *Th. D. Sc. Université de Paris* (1954).
- [4] B. WUNDERLICH. — *J. Chem. Phys.*, **64**, 1052 (1960).
- [5] W. PHILIPPOFF. — *J. Appl. Phys.*, **24**, 685 (1953).
- [6] E. JENCKEL et P. GEHRKE. — *Th. D. Sc. Aachen* (1960).
- [7] S. MATSUOKA et B. MAXWELL. — *J. Polymer Sci.*, **32**, 131 (1958).
- [8] J. M. O'REILLY. — *J. Polymer Sci.*, **57**, 429 (1962).
- [9] P. HEYDERMANN et H. D. GUICKING. — *Kolloid Z.*, **193**, 1, 16 (1963).
- [10] J. E. MCKINNEY, H. V. BELCHER et R. S. MARVIN. — *Trans. Soc. Rheology*, **4**, 347 (1960).  
J. E. MCKINNEY et H. V. BELCHER. — *Comm. privée* (1962).
- [11] W. P. MASON, W. O. BAKER, H. J. MCSKIMIN et H. HEISS. — *Phys. Rev.*, **73**, 1074 (1948), **74**, 1873 (1949).
- [12] R. S. MARVIN, R. ALDRICH et H. S. SACK. — *J. Appl. Phys.*, **25**, 1213 (1954).
- [13] A. W. NOLLE et P. W. SIECK. — *J. Appl. Phys.*, **23**, 888 (1952).
- [14] H. S. SACK et R. W. ALDRICH. — *Phys. Rev.*, **75**, 1285 (1949).
- [15] T. A. LITOVITZ et E. H. CARNAVALE. — *J. Chem. Phys.*, **26**, 465 (1957).
- [16] R. BUVET. — *Th. D. Sc.*, Paris (1960).
- [17] K. H. HELLWEGE, W. KNAPPE et P. LEHMANN. — *Kolloid Z.*, **183**, 2, 110 (1962).
- [18] W. PHILIPPOFF et J. BRODNYAN. — *J. Appl. Phys.*, **26**, 846 (1955).
- [19] A. K. DOOLITTLE. — *J. Appl. Phys.*, **22**, 1471 (1951).
- [20] J. D. FERRY. — *Viscoelastic properties of polymers*, N.Y. (1960).
- [21] A. J. KOVACS. — *Transactions of the Society of Rheology*, **5**, 285 (1961).
- [22] R. S. MARVIN et J. E. MCKINNEY. — *Comm. privée* (1943).
- [23] V. J. KOPPELMANN. — *Congrès International de Rhéologie* (Brown University).
- [24] A. J. STAVERMAN et F. SCHWARZL. — *Proc. Roy. Aca. Sci.*, **B 55**, 5, 474 (1952).

# COMPORTEMENT DES LUBRIFIANTS SOUMIS A DES CHOCS ET A DES TAUX DE CISAILLEMENT ÉLEVÉS (1)

par F. LAGARDE

CENTRE DE RECHERCHES DE LA COMPAGNIE FRANÇAISE DE RAFFINAGE  
(GROUPE TOTAL)

## RÉSUMÉ

L'étude théorique et expérimentale de l'épaisseur du film d'huile compris entre une plaque et une bille venant frapper la plaque, permet de montrer qu'au cours d'un tel choc, dont la durée varie entre  $10^{-3}$  et  $10^{-4}$  s, le lubrifiant a un comportement purement visqueux.

Il y a toutefois une perte temporaire de viscosité d'autant plus importante que les molécules du lubrifiant sont plus longues, et qui conduit à des épaisseurs de films plus faibles que les épaisseurs prévues.

Ce comportement non newtonien, déjà connu pour les liquides contenant des polymères, apparaît ici également pour les huiles minérales pures par suite des contraintes de cisaillement très élevées obtenues au cours du choc ( $10^8$  dynes/cm<sup>2</sup>).

## INTÉRÊT DE L'ÉTUDE

De nombreux mécanismes lubrifiés fonctionnent dans des conditions de chocs qui peuvent influencer plus ou moins sur leurs performances ou même sur leur principe de fonctionnement.

Par exemple :

— les engrenages.

Il y a choc lorsqu'une nouvelle paire de dents vient en contact;

— les paliers hydrodynamiques des vilebrequins de moteurs à explosion.

Ils doivent supporter les impulsions communiquées à l'ensemble piston-bielle par la combustion du mélange carburé. La combustion dure environ 30 degrés de vilebrequin, soit 1/12 de tour. La charge n'est donc pas supportée par le régime hydrodynamique continu, nécessitant plusieurs révolutions pour s'établir, mais par la résistance au choc du palier et du lubrifiant;

— les mouvements alternatifs.

Au moment où la vitesse relative des pièces en contact s'annule, la charge normale n'est plus supportée que par la résistance à l'écrasement du film d'huile. Un exemple typique est fourni par la trace sur la paroi du cylindre du segment de compression d'un moteur, lorsque le piston est au point mort haut;

— les paliers, glissières, butées qui supportent des pièces soumises à des vibrations.

Le rôle d'amortisseur du film d'huile est lié à sa faculté d'encaisser les chocs.

Dans beaucoup de cas (paliers de vilebrequins, vibrations d'arbres), la durée du choc est petite par rapport à la période de l'écoulement en régime hydrodynamique stabilisé, de sorte que si l'impulsion qui en résulte est beaucoup plus importante que les forces engendrées par le régime stabilisé, on pourra négliger ce dernier. Dans ces conditions, on admettra que tout se passe comme si le choc était appliqué

(1) Conférence au Groupe Français de Rhéologie, le 23 septembre 1965.

entre deux surfaces immobiles, séparées par une distance donnée. Cette distance est évidemment déterminée par l'écartement des surfaces, en régime stabilisé, au moment du choc.

### DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL

#### 1° Description de l'appareil.

L'appareil consiste essentiellement en un pendule qui porte à son extrémité une bille d'acier. Lorsque le pendule est à l'équilibre, la bille touche sans exercer aucune contrainte une plaque métallique verticale, le long de laquelle coule un film de lubrifiant. Le pendule est alors amené en position haute,

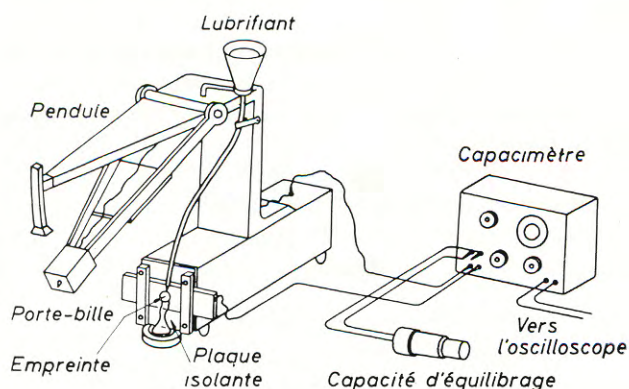


Fig. 1

puis lâché; il vient frapper la plaque par l'intermédiaire de la bille à travers le film d'huile. Un schéma du dispositif est présenté figure 1.

Le principe de la méthode consiste à enregistrer la variation de l'épaisseur du film d'huile au cours du choc.

Les premières expériences réalisées avec une plaque de duralumin parfaitement plane, ont montré que, bien qu'il n'y ait pas de contact métal-métal, les pressions transmises à travers le lubrifiant étaient suffisamment élevées pour créer une empreinte sur la plaque. Ce fait a déjà été signalé par RABINOWICZ [1] et provient des épaisseurs de films très faibles auxquelles conduit la géométrie bille-plan (profil divergent).

Toutes les expériences suivantes ont été réalisées en faisant coïncider l'impact de la bille avec une

empreinte faite préalablement sur la plaque par cette même bille. Ce dispositif présente deux avantages :

— la surface de l'empreinte est fortement écrouie, d'où une résistance accrue à une déformation plastique ultérieure;

— les deux surfaces, bille et empreinte, sont sensiblement parallèles et le film d'huile, au cours du choc, peut être considéré comme ayant une épaisseur constante à chaque instant. En effet, le recouvrement élastique qui se produit lorsqu'on supprime la charge après avoir fait le billage, tend à donner au film entre les surfaces un profil divergent. Au cours du choc, aussi longtemps que le film reste épais, cette erreur de forme, en valeur relative, n'est pas gênante. Lorsque le film diminue d'épaisseur, les fortes pressions transmises par l'huile tendent à redonner à l'empreinte la forme qu'elle avait au cours du billage, c'est-à-dire que l'erreur de forme tend à s'annuler. Le film peut donc être considéré comme d'épaisseur constante.

#### CONSTANTES RELATIVES A L'APPAREIL.

Distance entre l'axe et le centre de l'empreinte ..	$l = 25 \text{ cm}$
Moment d'inertie par rapport à l'axe .....	$I = 1,56 \cdot 10^6 \text{ g.cm}^2$
Masse équivalente .....	$\frac{I}{l^2} = 250 \text{ g}$
Vitesse d'impact .....	$V_0 = 155 \text{ cm/s}$
Durée du choc .....	$10^{-3} \text{ à } 10^{-4} \text{ s}$
Bille en acier trempé, rayon .....	$R = 7,5 \text{ mm}$
— dureté Rockwell ...	$R_c = 63$
Plaque en duralumin :	
— dureté Brinell .....	$HB \sim 125$

#### DIMENSIONS DE L'EMPREINTE :

Rayon .....	$a = 4,1 \text{ mm}$
Profondeur .....	$1,2 \text{ mm}$
Erreur de forme (pointé optique) .	$\delta = 21 \mu$

#### 2° Mesure de l'épaisseur du film d'huile.

L'épaisseur du film d'huile est mesurée par la méthode de la capacité. Un capacimètre à haute fréquence (1 MHz) transmet la tension de sortie à un oscilloscope. La capacité constituée par le film d'huile est mise en parallèle avec une capacité fixe

d'équilibrage, de façon à faire fonctionner l'appareil dans une plage donnée, ceci afin d'améliorer la précision de la mesure. Le déclenchement de l'oscilloscope se fait grâce à un contact à pointe monté sur le pendule qui ferme le circuit lorsque la bille est à une distance du fond de l'empreinte de 500  $\mu$ .

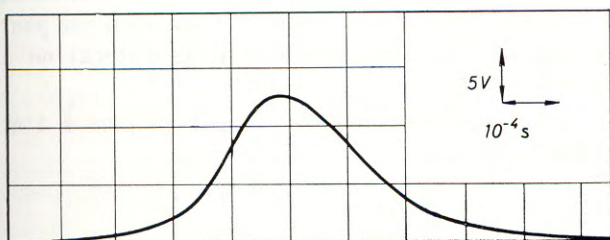


Fig. 2

On a vérifié expérimentalement que la capacité mesurée correspondait à la formule

$$C = \varepsilon 445 \left( \frac{1}{h} - \frac{1}{500} \right)$$

avec les unités suivantes :

- C capacité, en picofarads ( $10^{-12}$  farad);
- h épaisseur du film, en microns;
- $\varepsilon$  constante diélectrique du lubrifiant.

Pour chaque lubrifiant, l'étalonnage est réalisé avec un micromètre, ce qui permet corrélativement de déterminer  $\varepsilon$ .

Une valeur typique est  $\varepsilon = 2,1$  pour la plupart des hydrocarbures. On a trouvé  $\varepsilon = 45$  pour la glycérine.

On admet par la suite que la constante diélectrique ne varie pas au cours du choc.

La figure 2 présente un exemple d'enregistrement de capacité au cours du choc. Pour chaque lubrifiant, il y a une épaisseur minimale  $h_m$  au-delà de laquelle la bille s'arrête dans son empreinte, sans rebond visible. En particulier, il n'y a jamais contact métal-métal, ce qui montre que le film ne peut pas être complètement expulsé et que le fini des surfaces est bon. On ne voit pas de trace de déformation plastique au fond de l'empreinte. D'autre part, la répétabilité de la mesure est bonne, la précision étant limitée principalement par la largeur de la trace sur l'oscilloscope, ce qui, pour les valeurs d'épaisseurs de films considérées représente une erreur inférieure à 5 %.

## ÉTUDE THÉORIQUE

La profondeur de l'empreinte est faible par rapport au diamètre et le film est considéré comme plan. La figure 3 représente la mise en place des coordonnées, avec les notations suivantes :

- Oz normale commune aux deux surfaces, au centre de l'empreinte;
- Or axe orienté suivant le rayon;
- u composante de la vitesse suivant Or;
- v composante de la vitesse suivant Oz;
- p pression;
- h épaisseur du film;
- $\eta$  viscosité dynamique.

Avec les hypothèses habituelles des écoulements en film mince, la distribution de la pression est donnée par l'équation de REYNOLDS [2] :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( -\frac{h^3}{\eta} r \frac{\partial p}{\partial r} \right) + 12 \frac{\partial h}{\partial t} = 0.$$

Les hypothèses faites sont :

- la pression est constante le long des normales aux surfaces (elle ne dépend que de r);
- le fluide est newtonien;
- la viscosité est constante ou ne dépend que de r;
- le fluide est incompressible;
- l'inertie est négligée.

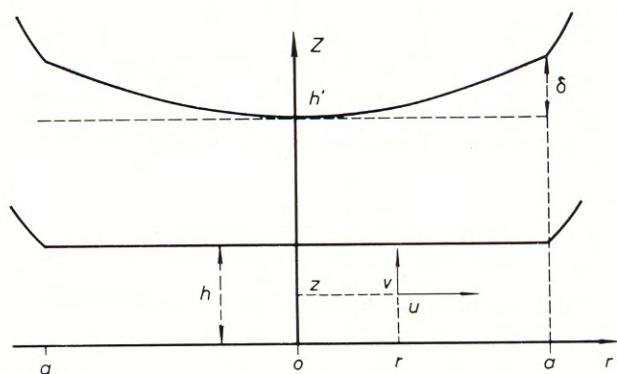


Fig. 3

Dans le cas présent, l'épaisseur du film  $h$  est indépendante de  $r$ ; une intégration par rapport à  $r$  donne :

$$\frac{1}{\eta} \frac{\partial p}{\partial r} = -3r \frac{d}{dt} \left( \frac{1}{h^2} \right).$$

La force transmise par le film à la bille est :

$$P = \int_0^a p \cdot 2 \pi r dr$$

et l'équation du mouvement de la bille est :

$$P = \frac{I}{l^2} \frac{d^2 h}{dt^2}$$

avec les conditions limites :

$$\begin{aligned} r = a, & \quad p = 0, \\ t = 0 & \quad \left\{ \begin{array}{l} h = h_0, \\ \frac{dh}{dt} = -V_0. \end{array} \right. \end{aligned}$$

**1° Fluide à viscosité constante  $\eta = \eta_0$ . Existence d'une limite  $h_{m_1}$  pour l'épaisseur du film.**

En supposant la viscosité constante, on obtient en intégrant par rapport à  $r$

$$p = \frac{3}{2} \eta_0 (a^2 - r^2) \frac{d\left(\frac{1}{h^2}\right)}{dt}, \quad P = \frac{3}{4} \eta_0 \pi a^4 \frac{d\left(\frac{1}{h^2}\right)}{dt}.$$

Avec les quantités sans dimensions suivantes :

$$s = \frac{h}{h_0}, \quad K = \frac{\frac{3}{4} \pi a^4 \eta_0}{\frac{I}{l^2} \cdot h_0^2 \cdot V_0}.$$

On obtient l'équation différentielle :

$$dt = -\frac{h_0}{V_0} \cdot \frac{1}{K} \cdot \frac{ds}{\frac{1}{K} - s^2}.$$

La solution est :

$$t = \frac{h_0}{V_0} \frac{1}{1+K} \left\{ (1-s) - \frac{1}{2} \sqrt{\frac{K}{1+K}} \right. \\ \left. \times \text{Log} \left[ \frac{1 + \sqrt{\frac{K}{1+K}} \cdot s - \sqrt{\frac{K}{1+K}}}{1 - \sqrt{\frac{K}{1+K}} \cdot s + \sqrt{\frac{K}{1+K}}} \right] \right\}.$$

Quand  $t$  devient infini,  $s$  atteint une valeur asymptotique :

$$s_\infty = \frac{h_{m_1}}{h_0} = \sqrt{\frac{K}{1+K}}.$$

On remarquera que pour la plupart des lubrifiants et avec les conditions expérimentales choisies,  $K$  est beaucoup plus petit que 1. C'est ainsi que pour le lubrifiant le plus visqueux (bright-stock) on a  $K = 8,3 \cdot 10^{-3}$  avec  $h_0 = 500 \mu$ .

On peut donc négliger  $K$  par rapport à 1 et écrire :

$$h_m = h_0 \sqrt{K} = \left[ \frac{3 \pi \eta_0 a^4}{4 \frac{I}{l^2} V_0} \right]^{1/2}.$$

L'analyse simplifiée montre que l'épaisseur du film atteint une valeur asymptotique  $h_{m_1}$  qui est différente de zéro et ne dépend pas de l'épaisseur initiale  $h_0$  pourvu que celle-ci soit suffisamment grande pour que  $K$  reste petit. L'expérience montre d'ailleurs qu'au début du choc, la bille n'est pour ainsi dire pas freinée et que les forces visqueuses ne se font sentir que lorsque le film est suffisamment mince.

**2° Viscosité variant avec la pression.**

Lorsque la pression est élevée, l'hypothèse de la viscosité constante n'est plus valide et il faut prendre en considération les variations de la viscosité avec la pression.

Deux types de relations sont utilisées :

$$\eta = \eta_0 e^{\alpha p},$$

$\eta_0$  étant la viscosité à pression atmosphérique relation valable pour les huiles naphthéniques;

$$\eta = \eta_0 (1 + Cp)^k$$

relation valable pour les huiles paraffiniques.

En particulier, CHU et CAMERON [3] proposent

$$\eta = \eta_0 (1 + Cp)^{16}.$$

Ces deux types de relations doivent être identiques pour des pressions voisines de la pression atmosphérique, c'est-à-dire que  $\alpha$  et  $C$  sont liés par  $\alpha = 16 C$ .



En admettant que l'écoulement est isotherme, c'est-à-dire que la viscosité ne dépend que de la pression, on obtient par intégration successive par rapport à  $r$  :

— avec  $\eta = \eta_0 (1 + Cp)^{16}$  et en posant

$$\frac{3}{2} C \eta_0 a^2 \frac{d\left(\frac{1}{h^2}\right)}{dt} = \sigma :$$

$$P = \frac{\pi a^2}{C} \left\{ -1 + \frac{1 - [1 - 15 \sigma]^{14/15}}{14 \sigma} \right\} ;$$

— avec  $\eta = \eta_0 e^{\alpha p}$  et en posant

$$\frac{3}{2} \eta_0 \cdot \alpha a^2 \frac{d\left(\frac{1}{h^2}\right)}{dt} = \sigma :$$

$$P = \frac{2}{3} \frac{\pi}{\eta_0 \alpha^2} \left\{ \frac{\text{Log} [1 - 16 \sigma]}{\frac{d\left(\frac{1}{h^2}\right)}{dt}} - \frac{3}{2} \eta_0 \alpha a^2 [\text{Log} (1 - 16 \sigma) - 1] \right\} .$$

L'équation différentielle doit ensuite être résolue par intégration numérique. Les calculs ont été faits à partir de  $h = 500 \mu$  pour  $t = 0$  et les intervalles de temps successifs choisis ont été  $\Delta t = 4 \cdot 10^{-5}$  s.

Il faut noter que dans tous les cas qui ont été calculés, la fonction  $\sigma$  prend tôt ou tard la valeur  $\sigma = \frac{1}{15}$  [avec  $\eta = \eta_0 (1 + Cp)^{16}$  ou  $\sigma = \frac{1}{16}$  (avec  $\eta = \eta_0 e^{\alpha p}$ ) et que pour cette valeur, la pression devient infinie au centre de l'empreinte. On élimine cette singularité mathématique en admettant que la pression ne peut pas dépasser la pression de fluage du métal de la surface. Pour le duralumin, on prend donc  $\gamma = 65 \text{ kg/mm}^2$  comme valeur limite de la pression. On obtient alors une nouvelle forme d'équation différentielle correspondant à un nouveau profil de pression : la pression est égale à  $\gamma$  dans une zone située au centre de l'empreinte, elle est donnée par l'équation de Reynolds dans la zone externe; la limite de cette zone est déterminée par les conditions de continuité de  $p$  et  $\frac{dp}{dr}$  en ce point.

L'intégration numérique de la nouvelle équation différentielle, faite avec  $\Delta t = 2 \cdot 10^{-5}$  s, montre que la force  $P$  passe par un maximum, au-delà duquel on retrouve la première forme d'équation

différentielle et la première distribution de pression. La force  $P$  continue à décroître et lorsque  $t$  devient infini, l'épaisseur du film prend une valeur asymptotique  $h_{m_2}$ , supérieure à la valeur  $h_{m_1}$ , calculée avec l'hypothèse de la viscosité constante.

La figure 4 présente les courbes calculées et expérimentales dans le cas du bright-stock, avec les différentes épaisseurs minimales de films.

A savoir :

$h_m$  valeur mesurée;

$h_{m_1}$  valeur calculée,  $\eta = \eta_0$ ;

$h_{m_2}$  valeur calculée,  $\eta = \eta_0 (1 + Cp)^{16}$ .

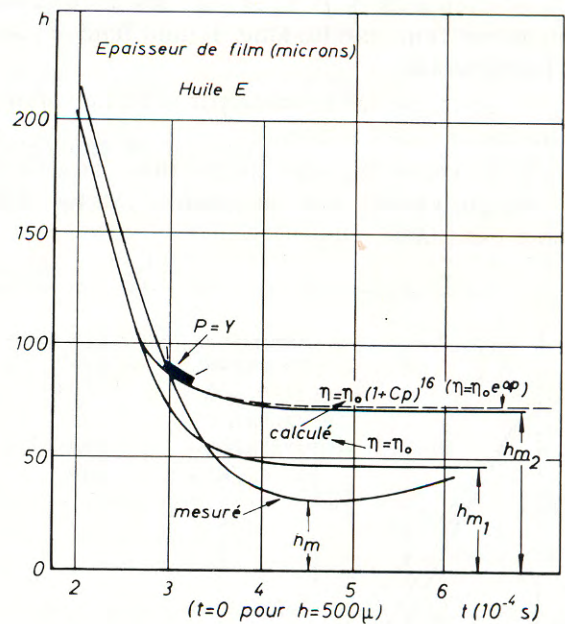


Fig. 4

La partie en trait renforcé de la courbe  $h_{m_2}$  indique la zone correspondant à la deuxième forme d'équation différentielle (pression égale à la dureté). Cette zone est d'ailleurs d'autant plus importante que la viscosité du lubrifiant est plus faible.

Tous les calculs de  $h_{m_2}$  ont été effectués avec l'hypothèse  $\eta = \eta_0 (1 + Cp)^{16}$ . L'utilisation de la relation  $\eta = \eta_0 e^{\alpha p}$  conduit en fait à des résultats identiques à quelques % près parce que les épaisseurs de films restent suffisamment grandes pour minimiser l'influence des fortes pressions sur la viscosité (bien que sous  $65 \text{ kg/mm}^2$ , la viscosité d'une huile naphthénique soit 200 fois plus forte que

celle d'une huile paraffinique de même viscosité atmosphérique). A titre d'exemple, dans le cas de bright-stock,

- avec  $\eta = \eta_0 (1 + Cp)^{16}$ ,  $h_{m_2} = 72,5 \mu$ ;
- avec  $\eta = \eta_0 e^{xp}$   $h_{m_2} = 73,7 \mu$ .

### RÉSULTATS

Les résultats ont déjà été présentés de façon succincte dans une précédente publication [4].

Les lubrifiants essayés appartiennent à trois groupes :

- lubrifiants A, B, C, D (E) : distillats extraits d'un même brut paraffinique, le lubrifiant E étant un bright-stock;
- glycérine, intéressante par la faible variation de sa viscosité avec la pression;
- polymère du type polyméthacrylate, ayant un comportement non newtonien. Masse moléculaire : 560 000.

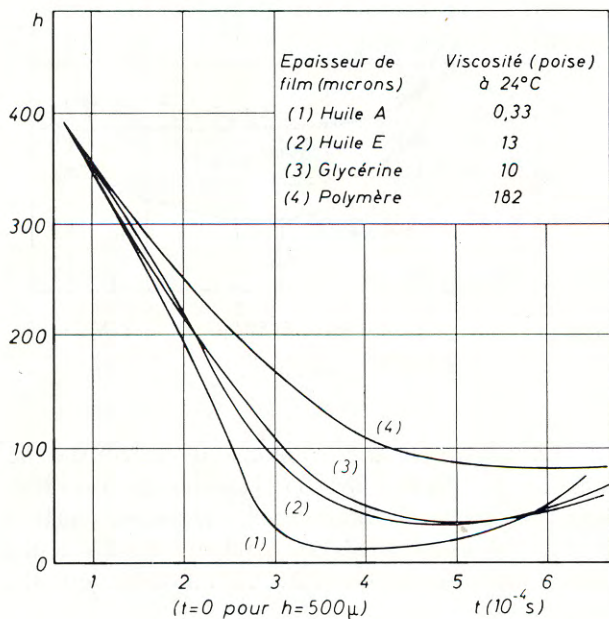


Fig. 5

La figure 5 présente les courbes expérimentales obtenues avec différents lubrifiants. On remarque en particulier que l'épaisseur minimale, correspondant à l'arrêt de la bille, est atteinte d'autant plus vite que l'huile est plus fluide.

Les résultats concernant les épaisseurs minimales de films sont condensés dans le tableau ci-contre.

La figure 6 présente en coordonnées logarithmiques les différentes épaisseurs de films en

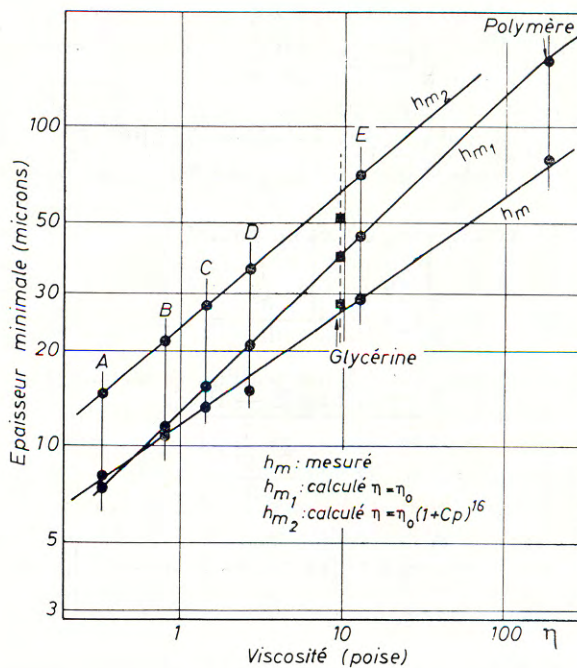


Fig. 6

fonction de la viscosité. Plusieurs remarques s'imposent :

— les épaisseurs calculées  $h_{m_1}$  sont alignées sur une droite de pente 1/2, conformément à la formule  $h_{m_1} \sim \eta_0^{1/2}$ , même pour le polymère dont la viscosité n'est pas suffisamment élevée pour donner au facteur K une valeur comparable à l'unité ( $K = 0,097$ );

— les épaisseurs calculées  $h_{m_2}$  sont alignées sur une droite de pente 0,44 pour les lubrifiants A, B, C, D, E qui appartiennent à la même famille. L'augmentation d'épaisseur de film due à la variation de la viscosité avec la pression est d'autant plus importante que la viscosité est plus faible. La glycérine, dont la viscosité augmente peu avec la pression, présente une épaisseur de film inférieure à celle d'un lubrifiant de la famille A, B, C, D, E et de même viscosité;

— les épaisseurs mesurées  $h_m$  sont alignées assez précisément sur une droite de pente 0,37. Il est étonnant de constater que le point correspondant au polymère se trouve également sur cette droite

HUILE	A	B	C	D	E	GLYCÉRINE	POLYMÈRE
Viscosité à 24° C (poises) . . . . .	0,334	0,82	1,485	2,68	13,32	10	182
C <sup>(1)</sup> $\left(\frac{1}{\text{kg/cm}^2}\right)$ . . . . .	$\frac{1}{8\,750}$	$\frac{1}{8\,050}$	$\frac{1}{7\,450}$	$\frac{1}{6\,900}$	$\frac{1}{6\,330}$	$\frac{1}{26\,000}$	
$h_m$ mesuré (microns) . . . . .	7,8	10,6	13,3	14,4	28	27	78
$h_{m_1}$ calculé (microns) . . . . .	7,15	11,2	15,1	19,4	45,35	39,3	160
$h_{m_2}$ calculé (microns) . . . . .	14,75	21	27,5	34,5	72,5	52,7	

(1) Le coefficient C de la relation  $\eta = \eta_0 (1 + Cp)^{1,6}$  a été calculé à partir de mesures de viscosité réalisées au viscosimètre Fernand Charron sous des pressions comprises entre 1 et 1 000 atmosphères.

alors que son caractère fortement non newtonien pouvait faire penser qu'il se trouverait nettement au-dessous de la droite.

Le point principal est que, pour tous les lubrifiants testés, les épaisseurs mesurées  $h_m$  sont plus faibles que les valeurs calculées  $h_{m_2}$  et même, sauf pour le lubrifiant le plus fluide (huile A), plus faibles que les valeurs  $h_{m_1}$ , calculées en négligeant l'influence de la pression sur la viscosité. La comparaison des pentes des droites représentant les valeurs  $h_m$  et  $h_{m_2}$  montre que cet effet est d'autant plus marqué que la viscosité est plus forte.

Il est tout à fait surprenant de constater que l'accord entre épaisseurs mesurées et calculées est meilleur pour des épaisseurs de 10  $\mu$  que pour des épaisseurs de 70  $\mu$ , en principe plus faciles à mesurer.

### DISCUSSION

Les résultats théoriques et expérimentaux ont été obtenus moyennant certaines hypothèses qui peuvent être sujettes à discussion.

Ces hypothèses concernent les points suivants :

- limitations de l'équation de Reynolds;
- déformation des surfaces pendant le choc;
- mesure de l'épaisseur du film d'huile;
- absence d'échauffement au cours du choc;
- viscosité des lubrifiants.

### 1° Équation de Reynolds.

#### a) PRESSION UNIFORME A TRAVERS LE FILM.

Les équations caractérisant le mouvement du fluide sont :

$$\frac{\partial p}{\partial r} = \eta \frac{\partial^2 u}{\partial z^2}, \quad \frac{\partial p}{\partial z} = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( \eta r \frac{\partial V}{\partial r} \right),$$

et l'équation de conservation du volume :

$$\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (ru) + \frac{\partial V}{\partial z} = 0.$$

On ne connaît pas de solution exacte à ce problème, pris dans sa généralité. D'où l'hypothèse des films minces (la pression est constante à travers le film) et l'équation de Reynolds qui en découle.

Remarquons que, au voisinage des surfaces, la vitesse verticale V du fluide peut se mettre, au deuxième ordre près, sous la forme :

$$V = \frac{\partial V}{\partial z} \cdot z \quad \text{pour } z = 0$$

et :

$$V = V_0 + \frac{\partial V}{\partial z} (z - h) \quad \text{pour } z = h,$$

d'où l'on tire, pour  $z = 0$  :

$$\frac{\partial p}{\partial z} = z \cdot \frac{1}{r} \cdot \frac{\partial}{\partial r} \left( \eta r \frac{\partial^2 V}{\partial z \partial r} \right)$$

et pour  $z = h$  :

$$\frac{\partial p}{\partial z} = (z - h) \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( \eta r \frac{\partial^2 V}{\partial z \partial r} \right).$$

Au voisinage des surfaces on a donc  $\frac{\partial p}{\partial z} = 0$ , c'est-à-dire que les lignes isobares sont normales aux surfaces. Il est donc correct d'admettre que, pourvu que l'épaisseur du film soit suffisamment faible, la pression est uniforme à travers le film, même si la vitesse normale de rapprochement des deux surfaces est grande.

Dans le cas actuel, les films ne s'opposent au mouvement de la bille que pour des épaisseurs inférieures à 0,1 mm (sauf pour le polymère) de sorte que l'hypothèse de la pression uniforme à travers le film est parfaitement valable. Il y a toutefois exception sur l'axe Oz où on a  $\frac{\partial p}{\partial r} = 0$ .

#### b) COMPRESSIBILITÉ DU FLUIDE.

Les lubrifiants sont peu compressibles. La prise en considération de leur compressibilité ne diminuerait les épaisseurs de films que de 20 % au maximum, d'après GRUBIN [5]. DOWSON, HIGGINSON et WHITAKER [6] trouvent une influence beaucoup plus faible.

La prise en considération de la compressibilité du lubrifiant ne peut donc pas expliquer les résultats.

#### c) INERTIE ET RÉGIME LAMINAIRE.

KUHN et YATES [7] ont étudié le mouvement de deux disques rigides parallèles séparés par un film de lubrifiant d'épaisseur  $h$ .

Ils définissent un nombre de Reynolds

$R_e = \frac{h \left( -\frac{dh}{dt} \right)}{\eta/\rho}$  et montrent que l'inertie est négligeable tant que  $R_e < 0,4$ .

Dans le cas présent, on a  $-\frac{dh}{dt} \leq 155$  cm/s,  $h$  actif  $< 0,1$  mm et  $\eta/\rho \sim 1$  stokes de sorte qu'une valeur maximale représentative du nombre de Reynolds est  $R_e \sim 1,5$ . Dans ces conditions, il y aurait un léger effet dû à l'inertie.

De toute façon, la prise en considération de l'inertie conduit à des valeurs calculées encore plus grandes, ce qui accentuerait encore l'écart avec les valeurs expérimentales.

On peut définir également un nombre de Reynolds  $R = \frac{h \cdot U_m}{\eta/\rho}$  basé sur la vitesse moyenne  $U_m$

du fluide dans le film. On montre facilement que

$$R = \frac{-\frac{dh}{dt} \cdot r}{2 \eta/\rho}.$$

Avec une vitesse maximale  $-\frac{dh}{dt}$  de 155 cm/s et  $r \leq 0,4$  cm, on a pour  $\eta/\rho = 1$  stokes,  $R \leq 31$ .

On vérifie ainsi que l'écoulement reste laminaire, le régime turbulent ne commençant que vers  $R = 550$ , d'après COMOLET [8].

#### 2° Déformation des surfaces pendant le choc.

On a supposé que l'espace compris entre les surfaces était initialement légèrement divergent et que pendant le choc il devenait d'épaisseur uniforme (cf. fig. 3). Si on ne fait pas cette hypothèse, on a à résoudre un problème d'élasto-hydrodynamique qui prend en considération les déformations des surfaces sous l'action de la pression dans le film.

Il n'y a pas de solution connue à un tel problème.

Il est par contre possible de considérer l'influence sur les résultats d'un film d'huile qui conserverait un profil divergent initial.

#### a) ÉPAISSEURS CALCULÉES.

Considérons le profil divergent  $h = h' + \delta \left( \frac{r}{a} \right)^2$  (fig. 3).

L'équation de Reynolds avec viscosité constante donne :

$$P = \frac{3}{2} \pi \eta a^4 \frac{\left( -\frac{dh'}{dt} \right)}{h' (h' + \delta)^2}.$$

et le film atteint une épaisseur limite  $h'_{m_1}$  définie par  $h'_{m_1} = h_0 s_\infty$ ,  $s_\infty$  étant donné par l'expression :

$$\begin{aligned} \text{Log} \left( \frac{s_\infty + \frac{\delta}{h_0}}{s_\infty} \right) - \frac{\frac{\delta}{h_0}}{s_\infty + \frac{\delta}{h_0}} &= \frac{\left( \frac{\delta}{h_0} \right)^2}{2 K} \\ &+ \text{Log} \left( 1 + \frac{\delta}{h_0} \right) - \frac{\frac{\delta}{h_0}}{\left( 1 + \frac{\delta}{h_0} \right)}. \end{aligned}$$

A partir des valeurs  $h'_{m_1}$  calculées pour les lubrifiants A, B, C, D, E et le polymère, on peut extrapoler les valeurs  $h'_{m_2}$ , solutions de l'équation de Reynolds à viscosité variable  $\eta = \eta_0 (1 + Cp)^{16}$

en admettant que, si pour deux viscosités différentes, on a  $h_{m_1} = h'_{m_1}$ , on aura également  $h_{m_2} = h'_{m_2}$ .

Sur la *figure 7*, on a tracé la courbe  $h'_{m_2}$  en fonction de la viscosité. L'espace compris entre la courbe  $h_{m_2}$  et la courbe  $h'_{m_2}$  représente le domaine des épaisseurs de film calculées en tenant compte de la variation de la viscosité avec la pression et de la déformation élastique des surfaces.

#### b) ÉPAISSEURS MESURÉES.

La capacité électrique du film est définie par :

$$C = \varepsilon \int_0^a \frac{2 \pi r}{h} dr.$$

La contribution du lubrifiant situé en dehors de l'empreinte est négligeable.

Pour un film d'épaisseur constante  $h$ , cette formule se réduit à

$$C = \varepsilon \frac{\pi a^2}{h} \left( = \varepsilon \frac{445}{h} \right).$$

Pour le profil divergent  $h = h' \left( 1 + \frac{\delta r^2}{h' a^2} \right)$ , la capacité est :

$$C = \frac{\varepsilon}{h'} \int_0^a \frac{2 \pi r dr}{1 + \frac{\delta r^2}{h' a^2}} = \varepsilon \frac{\pi a^2}{h'} \frac{\text{Log} \left( 1 + \frac{\delta}{h'} \right)}{\frac{\delta}{h'}}.$$

Pour chaque capacité mesurée à la fin du choc, cette expression permet de déterminer une épaisseur minimale mesurée  $h'_m$ .

Sur la *figure 7*, on a tracé la courbe  $h'_m$  en fonction de la viscosité. L'espace compris entre la courbe  $h_m$  et la courbe  $h'_m$  définit le domaine des épaisseurs mesurées en tenant compte de la déformation élastique des surfaces.

On constate que les deux domaines définissant les épaisseurs calculées et les épaisseurs mesurées ne se recouvrent partiellement que pour les plus faibles viscosités et uniquement dans le cas le plus favorable (épaisseur calculée pour un film divergent et mesurée pour un film parallèle) et en même temps le plus improbable.

En réalité, il faudrait comparer deux courbes  $h'_{m_2}$  et  $h'_m$  situées chacune à l'intérieur des deux domaines et correspondant à une divergence du film donnée. Dans ces conditions, il n'y a aucune possibilité de faire coïncider les valeurs calculées

et expérimentales, la raison étant que toute hypothèse sur la forme du film déplace ces valeurs dans la même direction, sans qu'elles puissent se rejoindre.

La déformation des surfaces pendant le choc ne peut donc pas expliquer les différences constatées.

Remarquons toutefois que ces conclusions ne sont valables que parce que les films d'huile considérés sont suffisamment épais (supérieurs à  $10 \mu$ ). En effet, pour les films très minces (de l'ordre de  $1 \mu$ ), on ne peut pas mesurer l'épaisseur à cause de la déformation en cratère des surfaces [1] et on ne peut pas la calculer par suite de distorsions dans le

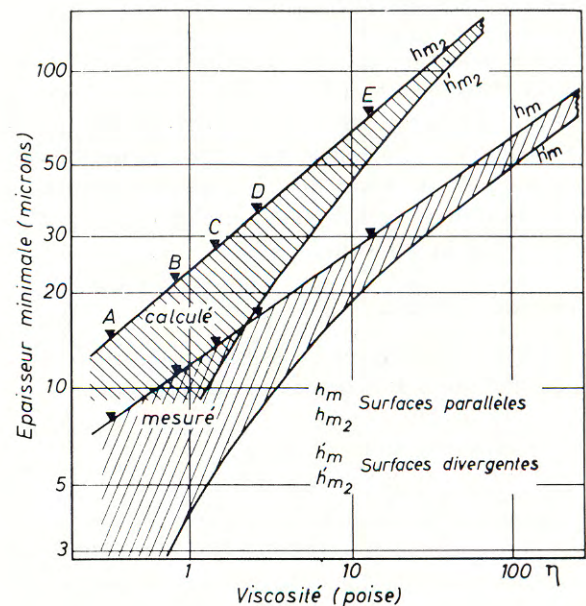


Fig. 7

profil des pressions. CHRISTENSEN [9] signale d'ailleurs dans ce cas la possibilité d'obtenir un profil de pression comportant un maximum situé à une certaine distance du centre de l'empreinte (profil à deux bosses symétriques par rapport au centre).

#### 3° Mesure de l'épaisseur du film d'huile.

La mesure de la capacité du film fait intervenir la constante diélectrique  $\varepsilon$  qu'on suppose constante pendant le choc.

GALVIN, NAYLOR et WILSON [10] ont mesuré la constante diélectrique de différents lubrifiants pour des pressions comprises entre 1 et 3 400 atmosphères, et ils ont vérifié avec une bonne précision

que  $\epsilon$  ne dépendait pas de la pression. La constante diélectrique des lubrifiants ne dépend pas non plus du taux de cisaillement. Les seuls cas signalés dans la littérature où la constante diélectrique varie avec le taux de cisaillement, concernent les substances à texture du type graisse [11], et les dispersions du genre carbon black dans l'huile [12].

#### 4° Échauffement au cours du choc.

L'équation de conservation d'énergie s'écrit :

$$\rho \frac{dE}{dt} = \lambda \left[ \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T}{\partial r} \right) \right] + \frac{p}{\rho} \frac{d\rho}{dt} + \Phi.$$

E est l'énergie interne par unité de masse, en l'absence de mouvement et de pesanteur,  $\lambda$  est la conductivité thermique, T la température,  $\rho$  la masse spécifique. La fonction  $\Phi$ , appelée dissipation visqueuse, est la quantité de travail irréversible fourni à l'unité de volume par unité de temps par les forces dues à la viscosité.

##### a) COMPRESSIBILITÉ.

Le terme dû à la compressibilité représente à lui seul une élévation de température définie par :

$$\frac{dT}{dt} = \frac{1}{C_p} \frac{p}{\rho^2} \frac{d\rho}{dt},$$

$C_p$  étant la chaleur spécifique à pression constante.

Considérant la formule simple de compressibilité  $\rho = \rho_0 (1 + \beta p)$ ,  $\beta$  étant le coefficient de compressibilité, on obtient :

$$\frac{dT}{dt} = \frac{\beta}{\rho_0 C_p} \frac{1}{2} \frac{dp^2}{dt}.$$

En intégrant par rapport au temps, c'est-à-dire en suivant un volume élémentaire dans son mouvement, on aboutit à :

$$(T - T_0) = \frac{\beta}{\rho_0 C_p} \frac{1}{2} (p^2 - p_0^2),$$

l'indice 0 désignant les conditions initiales.

Lorsque la pression atteint sa valeur maximale  $p_{\max}$ , l'élévation de température maximale est donnée par :

$$T_{\max} - T_0 = \frac{1}{2} \frac{\beta}{\rho_0 C_p} p_{\max}^2.$$

Les coefficients de compressibilité des huiles minérales ont été déterminés avec précision par HAYWARD [13] qui propose la formule :

$$\beta = [51 - 2,9 \text{ Log } \eta_c] \times 10^{-6}.$$

$\beta$  étant exprimé en  $\text{cm}^2/\text{kg}$ ,  $\eta_c$  est la viscosité cinématique en centistokes.

Une valeur représentative des huiles de la série A, B, C, D, E est

$$\beta = 45 \cdot 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{kg}.$$

Avec les valeurs suivantes :  $\rho = 0,9 \text{ g/cm}^3$ ,  $C_p = 0,5 \text{ cal/g.}^\circ\text{C}$ ,  $p_{\max} \leq 6 \cdot 500 \text{ kg/cm}^2$ , l'élévation de température correspondante est

$$T_{\max} - T_0 \leq 50^\circ \text{ C}.$$

Cette élévation de température assez importante n'est valable que pour les points situés au centre de l'empreinte, là où la pression est la plus forte, et la valeur calculée représente un maximum probablement jamais atteint. Les élévations de température doivent être plus faibles dans les autres parties du film. Il faut remarquer également que le coefficient de compressibilité est plus grand pour les huiles fluides que pour les huiles visqueuses, et que les huiles fluides sont soumises en moyenne au cours du choc à de plus fortes pressions que les huiles visqueuses, puisqu'elles arrêtent le pendule en des temps plus courts. L'élévation de température due à la compressibilité devrait donc avoir une influence d'autant plus importante que l'huile est plus fluide. Ce fait étant en désaccord avec l'expérience, on peut donc conclure que l'échauffement dû à la compressibilité et qui se fait sentir surtout au centre de l'empreinte, n'exerce aucune influence significative sur les résultats.

Dans tout ce qui suit, on supposera donc le fluide incompressible.

##### b) FLUIDE INCOMPRESSIBLE.

Pour un fluide incompressible, l'équation de conservation d'énergie s'écrit :

$$\rho C_v \frac{dT}{dt} = \lambda \left[ \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T}{\partial r} \right) \right] + \Phi,$$

$C_v$  étant la chaleur spécifique à volume constant, et la fonction  $\Phi$  est :

$$\Phi = 2\eta \left[ \sum_i \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_i} \right)^2 + \frac{1}{2} \sum_{ij} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right)^2 \right],$$

$ijk$  désignant les trois axes de coordonnées en axes rectangulaires.

Pour un écoulement radial où les vitesses ne dépendent que de  $r$  et  $z$ , cette expression devient :

$$\Phi = 2\eta \left[ \left( \frac{\partial u}{\partial r} \right)^2 + \left( \frac{u}{r} \right)^2 + \left( \frac{\delta V}{\partial z} \right)^2 + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial V}{\partial r} + \frac{\partial u}{\partial z} \right)^2 \right].$$

Dans les deux cas de problèmes à viscosité constante et à viscosité variant avec la pression, les vitesses sont données par les expressions :

$$u = 6r \frac{\left( \frac{-dh}{dt} \right)}{h^3} z (h-z),$$

$$V = -6 \frac{-dh}{h^3} z^2 \left( \frac{h}{2} - \frac{z}{3} \right).$$

La fonction  $\Phi$  est alors :

$$\Phi = 36\eta \left[ \frac{\left( \frac{-dh}{dt} \right)^2}{h^3} \right]^2 r^2 \left[ \left( z - \frac{h}{2} \right)^2 + 3 \left( \frac{z}{r} \right)^2 (h-z)^2 \right].$$

On remarque que pour les épaisseurs de films considérées  $\left( \frac{z}{r} \right)^2$  est petit dans la presque totalité du film de sorte que le terme qui lui est associé peut être considéré comme négligeable, sauf à mi-distance des surfaces.

On prendra donc comme approximation :

$$\Phi = 36\eta \left[ \frac{\left( \frac{-dh}{dt} \right)^2}{h^3} \right]^2 r^2 \left( z - \frac{h}{2} \right)^2 \left[ = \eta \left( \frac{\partial u}{\partial z} \right)^2 \right].$$

Si on admet que par suite de la faible conductivité thermique de l'huile, le terme

$$\lambda \left[ \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \frac{\partial T}{\partial r} \right) \right]$$

est négligeable par rapport à  $\rho C_v \frac{dT}{dt}$ , on obtient, en suivant le trajet des volumes élémentaires et en supposant la viscosité constante :

$$T - T_0 = \frac{36\eta}{\rho C_v} \int_0^t \left[ \frac{-dh}{h^3} \right]^2 r^2 \left( z - \frac{h}{2} \right)^2 dt,$$

$r$  et  $z$  étant fonction de  $t$ .

L'expression à intégrer est maximale, à chaque instant, sur les surfaces. Les températures maximales sont donc atteintes sur les surfaces et ont pour valeur :

$$T - T_0 = \frac{9\eta r^2}{\rho C_v} \int_0^t \frac{\left( \frac{dh}{dt} \right)^2}{h^4} dt$$

ou, avec le changement de variable

$$dt = - \frac{h_0}{V_0} \frac{ds}{(1+k) - \frac{k}{s^2}} :$$

$$T - T_0 = \frac{9\eta V_0 r^2}{\rho C_0 h_0^3} \int_1^s \left[ 1 + k - \frac{k}{s^2} \right] \frac{ds}{s^4}.$$

L'échauffement maximal est obtenu pour  $s = s_\infty \sim \sqrt{k}$  et a pour valeur :

$$T - T_0 = \frac{18\eta \cdot a^2 V_0}{15 \rho C_0 h_0^3} \cdot \frac{1}{s_\infty^3} \cdot \left( \frac{r}{a} \right)^2,$$

soit avec des valeurs convenables des paramètres :

$$T - T_0 (\text{°C}) = 1,14 \cdot 10^{-2} \eta (\text{poise}) \cdot \frac{1}{s_\infty^3} \cdot \left( \frac{r}{a} \right)^2.$$

Les températures calculées pour les différentes huiles sont maximales à la limite de l'empreinte pour  $r = a$  et ont les valeurs respectives suivantes :

HUILE	A	B	C	D	E	POLYMÈRE
$T - T_0 (\text{°C})$	1 290	820	625	465	216	62,5

Deux remarques s'imposent :

— les valeurs calculées sont extrêmement élevées;

— l'élévation de température est d'autant plus forte que le film est plus mince.

Ces conclusions seraient également valables, du moins qualitativement, si le calcul avait été fait avec l'hypothèse de la viscosité variant avec la pression, à savoir : les élévations de température seraient d'autant plus fortes que l'huile utilisée est plus fluide ou que le film est plus mince, et elles seraient très importantes à cause de la forte viscosité sous pression.

Il est évident que ces conclusions sont en désaccord complet avec les faits expérimentaux, qui montrent un accord meilleur pour les huiles fluides que pour les huiles visqueuses. L'hypothèse de l'écoulement adiabatique est donc à rejeter.

Considérant qu'il y a échange de chaleur, celui-ci se fera en priorité vers les surfaces métalliques qui ont une conductivité thermique environ 1 000 fois supérieure à celle des huiles. Or, de par la nature même de l'écoulement, l'échauffement dû à la dissipation visqueuse se fait au voisinage des surfaces, de sorte que la chaleur peut s'évacuer facilement dans la zone même où elle est produite.

Une première conclusion est que les élévations de température sont beaucoup plus faibles que les valeurs calculées ci-dessus.

De plus, afin de préserver l'accord existant pour les huiles fluides, l'élévation de température pour ces huiles doit être très faible, de l'ordre de quelques degrés seulement. L'échauffement étant faible pour les huiles fluides doit, *a fortiori*, être insignifiant pour les huiles visqueuses, ce qui revient à dire qu'il n'y a pas d'élévation de température dans le film au cours du choc.

L'écoulement isotherme est le seul donnant des résultats qui ne soient pas en désaccord avec l'expérience.

La même conclusion a également été obtenue par des moyens théoriques par CHRISTENSEN [14], qui a étudié le mouvement d'un disque épais séparé d'un plan par un film d'huile et s'en rapprochant sous l'action d'une charge constante. Un tel choc est isotherme parce que la chaleur se trouve évacuée par les surfaces métalliques.

On peut évaluer *grosso modo* l'élévation de température moyenne dans le film en considérant les températures sur les parois et au centre du film.

— Sur les parois, la température est identique dans l'huile et dans le métal et l'expression  $\lambda \frac{\partial T}{\partial z}$  se conserve au passage de l'interface.

Comme la conductivité thermique du métal est élevée,  $\frac{\partial T}{\partial z}$  est très faible dans le métal, donc

la température de surface est, pour ainsi dire, inchangée.

— Au centre du film, la fonction  $\Phi$  est donnée par :

$$\Phi = 108 \eta \left[ \frac{-dh}{h^3} \right]^2 z^2 (z-h)^2 = \frac{27}{4} \eta \frac{\left(\frac{dh}{dt}\right)^2}{h^2}.$$

L'expression donnant  $v$  en fonction de  $z$  montre que pour

$$z = \frac{h}{2}, \quad v = \frac{1}{2} \frac{dh}{dt},$$

c'est-à-dire que les volumes élémentaires qui, à un instant, se trouvaient à mi-distance des surfaces, resteront dans cette position relative pendant tout le choc. L'élévation de température au centre du film, si on néglige la conduction dans l'huile est donc donnée par :

$$T_{\max} - T_0 = \frac{27}{4} \eta \int_0^{t_\infty} \frac{\left(\frac{dh}{dt}\right)^2}{h^2} dt.$$

Un calcul identique à celui présenté pour le cas adiabatique permet d'aboutir à l'expression

$$T_{\max} - T_0 = \frac{1}{2} \frac{\eta}{\rho C_v} \cdot \frac{V_0}{h_0} \frac{1}{s_\infty},$$

soit :

$$T_{\max} - T_0 \text{ (}^\circ\text{C)} = 7,5 \cdot 10^{-5} \cdot \eta \text{ (poise)} \cdot \frac{1}{s_\infty}.$$

Cette expression correspond à des élévations de température inférieures à  $10^{-2}$  °C pour les huiles de la série A, B, C, D, E.

Avec l'hypothèse de l'écoulement non adiabatique, on obtient donc un profil de température dans le film mince caractérisé par des élévations de température très faibles sur les surfaces et au centre du film. Dans ces conditions, l'élévation de température moyenne ne peut pas dépasser quelques degrés et l'hypothèse de l'écoulement isotherme est tout à fait satisfaisante.

##### 5° Viscosité des lubrifiants.

C'est la dernière hypothèse à examiner.

Les résultats expérimentaux peuvent s'interpréter en considérant une chute temporaire de la viscosité au cours du choc. Cette tendance va en augmentant avec la viscosité de l'huile.



## RHÉOLOGIE DES LUBRIFIANTS

Dans tout ce qui précède, on a supposé que le lubrifiant est un fluide newtonien, c'est-à-dire qu'entre le taux de cisaillement (ou gradient de vitesse, ou vitesse de déformation)  $D$  et la contrainte de cisaillement  $\tau$ , on a la relation :

$$D = \frac{\tau}{\eta}.$$

D'autres modèles peuvent être envisagés pour les liquides, à savoir :

— un modèle visco-élastique du type modèle de Maxwell (ressort et résistance visqueuse en série).

$$\eta D = \tau + t_0 \frac{d\tau}{dt},$$

$t_0$  étant la constante de relaxation ou même, pour certains liquides spéciaux

$$\eta \left( D + t_1 \frac{dD}{dt} \right) = \tau + t_0 \frac{d\tau}{dt}$$

comme l'indique OLDROYD [15],  $t_1$  étant la constante de retard (retardation time);

— un modèle purement visqueux et non newtonien défini par  $D = f(\tau)$ , avec pour viscosité apparente :

$$\eta = \frac{\tau}{D} = \frac{\tau}{f(\tau)}.$$

EYRING [16] propose le modèle suivant :

$$\eta = \frac{K \tau}{\text{sh} \left( \frac{\lambda_2 \lambda_3 \lambda \tau}{2 kT} \right)}.$$

$T$  est la température absolue,  $k$  la constante de Boltzmann,  $\lambda_2, \lambda_3, \lambda$  sont des longueurs caractéristiques, du même ordre de grandeur que les dimensions des molécules, et dont la valeur exacte dépend de l'orientation relative des molécules dans les plans de cisaillement.

Tant que  $\tau < \frac{2kT}{\lambda_2 \lambda_3}$ ,  $\eta$  est indépendant de  $\tau$  et le fluide est newtonien; lorsque  $\tau$  dépasse cette valeur, la viscosité apparente diminue avec le taux de cisaillement. Cette formule a reçu un début de

confirmation expérimentale en ce qui concerne des solutions de polystyrène et polyisobutylène dans la décaline [17].

Une autre façon d'exprimer le caractère non newtonien d'un fluide est d'introduire une constante de temps  $t'_0$  appelée constante de relaxation moléculaire.

D'après BUECHE [18], le fluide est newtonien tant que  $D \cdot t'_0 < 0,1$  et non newtonien pour  $D \cdot t'_0 > 0,1$ .

La constante de temps serait proportionnelle à la masse moléculaire du produit considéré. On notera que les constantes de temps  $t_0$  et  $t'_0$  sont du même ordre de grandeur.

### 1° Visco-élasticité.

L'introduction de l'élasticité augmente la vitesse de déformation à contrainte constante.

Dans le cas de choc entre bille et plaque, les contraintes atteignent leur valeur maximale  $\tau_{\max}$  au bout d'un temps  $\Delta t$  de l'ordre de  $3 \cdot 10^{-4}$  s.

Le terme  $t_0 \frac{d\tau}{dt}$  est alors équivalent à

$$\tau_{\max} \frac{t_0}{\Delta t} = \tau_{\max} \frac{t_0}{3} \cdot 10^4.$$

Ce terme est négligeable par rapport à  $\tau_{\max}$ , c'est-à-dire  $< 0,1 \tau_{\max}$  pour  $t_0 < 0,3 \cdot 10^{-4}$  s.

Les constantes de relaxation des huiles ont été déterminées par FORSTER [19]. Les ordres de grandeur sont :

$10^{-4}$  à  $10^{-6}$  s pour les polymères;

$10^{-9}$  à  $10^{-11}$  s pour les huiles.

Plus récemment, KRISHNAJI et MANSINGH [20] ont mesuré la constante de relaxation d'un composé organique plus fluide que les huiles les plus légères, et ont trouvé  $10^{-12}$  s (pour le triméthylacétaldéhyde de viscosité 0,6 cPo à 20° C).

Par conséquent, sauf pour les polymères les plus visqueux, la part due à l'élasticité est négligeable dans les conditions de choc réalisées dans l'appareil bille-plaque.

Le polymère testé est newtonien jusqu'à des taux de cisaillement voisins de  $5 \cdot 10^3 \text{ s}^{-1}$  (vérification faite au viscosimètre Ferranti-Shirley à 50° C). D'après BUECHE, sa constante de relaxation est donc  $t_0 \sim t'_0 \sim 0,2 \cdot 10^{-4}$  s, c'est-à-dire que son comportement peut être considéré comme purement visqueux.

## 2° Comportement visqueux non newtonien.

### a) VISCOSITÉ DES HUILES.

Les modèles non newtoniens du type modèle de EYRING ou de BUECHE prévoient une décroissance de la viscosité lorsque le taux de cisaillement dépasse une certaine valeur. Ce fait est bien connu pour les polymères qui peuvent être non newtoniens dès  $10^3 \text{ s}^{-1}$ .

Les études de viscosité en fonction du taux de cisaillement se font généralement sur des viscosimètres rotatifs. Il n'est pas possible de dépasser alors des contraintes de cisaillement de  $10^5 \text{ dynes/cm}^2$  à cause de l'échauffement du film dont l'effet est d'abaisser la viscosité. Cette limite est valable pour un viscosimètre bénéficiant d'un bon dispositif de refroidissement, tel que celui construit par BARBER [21], ou pour un viscosimètre à cônes mâle et femelle du type Kingsbury, tel que celui utilisé par NEEDS [22], où l'augmentation du taux de cisaillement se fait par réduction de l'épaisseur du film.

PORTER et JOHNSON [23] signalent une chute de viscosité sur viscosimètre Barber avec un Bright Stock de viscosité 20 poises pour des contraintes de cisaillement de  $4 \cdot 10^5 \text{ dynes/cm}^2$ , mais leurs données sont sujettes à caution à cause de l'échauffement. En règle générale, les auteurs s'accordent à reconnaître que les huiles minérales sont newtoniennes jusqu'à  $10^5 \text{ dynes/cm}^2$ . Il y a exception au-dessous de  $0^\circ \text{ C}$  à partir de  $10^4 \text{ s}^{-1}$ , mais ce fait, signalé par GEORGI [24], peut s'expliquer par l'apparition de petits cristaux de paraffine qui transforment le fluide en fluide à deux phases.

Pour obtenir des taux de cisaillement plus élevés, il faut utiliser des procédés à excitation électrique, soit avec un cristal vibrant en torsion, dispositif mis au point par MASON [25], soit avec un quartz recevant une onde oblique de cisaillement dont on étudie la réflexion à l'interface quartz-lubrifiant.

APPELDOORN, OKRENT et PHILIPPOFF [26] ont utilisé la méthode du cristal de MASON pour étudier les huiles minérales sous des pressions comprises entre 1 et 1 000 atmosphères et pour des fréquences de vibration de  $6 \cdot 10^4 \text{ Hz}$  (soit l'équivalent, en taux de cisaillement, de  $3,5 \cdot 10^5 \text{ s}^{-1}$ ).

Même pour les huiles les plus visqueuses (30 poises) aucun comportement non newtonien n'a pu être décelé.

Par contre, BARLOW et LAMB [27], utilisant la méthode de la réflexion d'onde de cisaillement à l'interface solide-liquide, et pour des pressions de 1 et 1 000 atmosphères, ont trouvé pour les huiles

une chute de viscosité à des fréquences dépassant  $10^8 \text{ Hz}$ , c'est-à-dire pour des taux de cisaillement dépassant également  $10^8 \text{ s}^{-1}$ .

Certains travaux originaux ont également mis en évidence une perte de viscosité temporaire sous l'action de taux de cisaillement élevés.

SCHNURMANN [28] étudie l'écoulement des liquides à travers un orifice d'environ 0,1 mm de diamètre, ce qui permet de réaliser des taux de cisaillement de  $10^5 \text{ s}^{-1}$  sans élévation de température. Dans ces conditions, les liquides à molécules non sphériques, même les huiles minérales, ont un comportement non newtonien.

CHARRON [29] étudie l'écoulement des lubrifiants à travers un orifice, la force motrice étant fournie par un piston mis en action par le choc d'un pendule. Il constate que la viscosité des huiles visqueuses est bien inférieure à ce qu'elle devrait être, tandis que la viscosité de la glycérine est presque inchangée. Une explication possible, d'après lui, est un retard à l'établissement de la viscosité. La connaissance que l'on a maintenant des temps de relaxation permet de penser que ce n'est pas le cas, et que l'explication, en réalité, vient des contraintes de cisaillement élevées obtenues au cours du choc : environ  $10^6$  à  $10^7 \text{ dynes/cm}^2$ .

### b) SYSTÈME BILLE-PLAQUE.

Dans le cas du pendule-bille-plaque, le film est évidemment soumis à des contraintes de cisaillement importantes.

A partir de la relation  $\frac{\partial p}{\partial r} = \frac{\partial \tau}{\partial z}$ , on obtient, par intégration par rapport à  $z$  :

$$\tau = \left( z - \frac{h}{2} \right) \frac{\partial p}{\partial r}.$$

Les contraintes réelles peuvent être évaluées en remarquant que lorsque le pendule est freiné au maximum, la pression est de l'ordre de grandeur de la limite d'élasticité de l'empreinte Y, et que le gradient de pression peut alors s'écrire :

$$\frac{\partial p}{\partial r} \sim \frac{Y}{a} = \frac{6\,500}{0,2} \text{ kg/cm}^3 \sim 3 \cdot 10^{10} \text{ dynes/cm}^3.$$

L'épaisseur du film à cet instant étant de l'ordre de  $\frac{1}{200} \text{ cm}$ , les contraintes de cisaillement maximales, situées près des surfaces sont de l'ordre de :

$$\tau_{\text{max}} \sim 10^8 \text{ dynes/cm}^2.$$

Les taux de cisaillement sont de l'ordre de  $10^7$  à  $10^8 \text{ s}^{-1}$  pour les huiles A, B, C, D, E, et d'environ  $10^6 \text{ s}^{-1}$  pour le polymère.

Dans ces conditions, il n'est pas impossible d'admettre que les huiles minérales deviennent non newtoniennes, cette tendance étant d'autant plus marquée que l'huile est plus visqueuse.

On peut ainsi expliquer pourquoi les épaisseurs de film mesurées sont inférieures aux épaisseurs calculées, la différence allant en s'accroissant lorsque la viscosité augmente. On comprend alors que le polymère, fortement non newtonien, donne sur la figure 6 un point figuratif situé sur la droite des points des huiles de la série A, B, C, D, E, et non pas situé au-dessous de cette droite, puisque le désaccord avec les valeurs calculées provient de la même cause pour tous les liquides essayés.

On remarque que la glycérine permet d'obtenir une épaisseur de film mesurée comparable à celle de l'huile E ( $27 \mu$  contre  $28 \mu$ ), alors que l'épaisseur calculée est plus faible ( $52 \mu$  contre  $72 \mu$ ). On est donc conduit à admettre que la glycérine, dont la molécule est de forme ramassée, est moins sujette à une perte temporaire de viscosité sous l'action du cisaillement que les huiles minérales dont les molécules sont longues. Ce fait est en accord avec les observations de CHARRON [29] sur le comportement de la glycérine et les conclusions de SCHNURMANN [28] sur la viscosité des liquides à molécules non sphériques.

Le caractère non newtonien des huiles minérales pour des taux de cisaillement de  $10^7$ - $10^8 \text{ s}^{-1}$  est en accord avec les prévisions théoriques et n'est pas en désaccord avec les faits expérimentaux.

APPELDOORN OKRENT et PHILIPPOFF [26] situent à  $10^7 \text{ Hz}$  le seuil théorique de fréquence au-delà duquel les huiles minérales peuvent devenir non newtoniennes, ce qui représente un taux de cisaillement équivalent de  $0,6 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$ .

La formule d'EYRING permet de définir un seuil critique de cisaillement  $\tau_c$  au-delà duquel la fonction sinus hyperbolique ne peut plus être assimilée à sa tangente à l'origine.

Par exemple :

$$\tau_c = 0,1 \frac{2 kT}{\lambda_2 \lambda_3 \lambda} = \frac{A}{\lambda_2 \lambda_3 \lambda}$$

Pour deux liquides différents, les contraintes critiques de cisaillement sont dans le rapport inverse des volumes  $\lambda_2 \lambda_3 \lambda$  c'est-à-dire, à un facteur de forme près, dans le rapport inverse des masses moléculaires.

Si on compare une huile de viscosité 1 poise à  $20^\circ \text{ C}$  (mélange des huiles B et C, par exemple) et de masse moléculaire moyenne 300 avec le polymère de viscosité 30 poises à  $50^\circ \text{ C}$  et de masse moléculaire 560 000, on a :

— pour le polymère :

$$\tau_c = 1,5 \cdot 10^5 \text{ dynes/cm}^2;$$

— pour l'huile :

$$\tau_c = \frac{1,5 \cdot 10^5 \times 560\,000}{300} = 2,8 \cdot 10^8 \text{ dynes/cm}^2,$$

soit un taux de cisaillement de  $2,8 \cdot 10^8 \text{ s}^{-1}$ .

Les prévisions théoriques situent donc l'apparition du caractère non newtonien des huiles minérales vers  $10^8 \text{ s}^{-1}$ .

Les études expérimentales sur viscosimètres rotatifs sont limitées à  $10^5 \text{ dynes/cm}^2$ , soit environ  $10^5 \text{ s}^{-1}$  pour des huiles de viscosités voisines de 1 poise; elles permettent donc uniquement d'affirmer qu'il n'y a pas de comportement non newtonien pour les huiles minérales au-dessous de cette valeur.

Les mesures de viscosité par méthodes électriques confirment le caractère newtonien des huiles jusqu'à  $10^5 \text{ s}^{-1}$  et indiquent une chute de viscosité pour des taux de cisaillement équivalents de  $10^8 \text{ s}^{-1}$ .

En étudiant le film d'huile compris entre deux disques roulant l'un contre l'autre, BELL, KANNEL et ALLEN [30] ont constaté que, pour des pressions atteignant 6 000 atmosphères, la courbe force de frottement-taux de cisaillement obtenue avec un éther de polyphényle, s'incurve vers le bas pour des taux de cisaillement supérieurs à  $10^5 \text{ s}^{-1}$ , ce qui correspond à des contraintes de cisaillement de  $1,5 \cdot 10^8 \text{ dynes/cm}^2$ .

L'explication qui leur semble la plus plausible est l'apparition du caractère non newtonien de ce lubrifiant sous forte pression pour ces valeurs de taux de cisaillement.

L'appareil bille-plaque peut donc être considéré comme un viscosimètre permettant de mettre en évidence le caractère non newtonien des huiles minérales sous pression, grâce aux taux de cisaillement élevés obtenus au cours du choc.

La rhéologie des huiles à forts taux de cisaillement revêt de l'importance en ce qui concerne les mécanismes lubrifiés fonctionnant en régime élastohydrodynamique. C'est le cas, par exemple,

d'un roulement à bille fortement chargé tournant à 6 000 tr/mn avec une épaisseur de film d'huile d'environ  $1 \mu$ ; les taux de cisaillement atteignent  $10^7 \text{ s}^{-1}$ . Les résultats obtenus avec l'appareil bille-plaque permettent de penser que des effets non newtoniens peuvent se produire dans ces conditions et réduire l'épaisseur du film. SIBLEY [31] propose d'ailleurs un modèle non newtonien pour décrire la rhéologie probable des lubrifiants sous forte pression, le seuil de cisaillement critique au-delà duquel la viscosité tombe étant d'autant plus bas que la pression est plus forte. Ce modèle est parfaitement en accord avec les résultats obtenus avec l'appareil bille-plaque.

### CONCLUSION

1° *L'appareil pendulaire bille-plaque* permet de réaliser des chocs dans les lubrifiants et d'obtenir pendant des intervalles de temps de  $10^{-3}$  à  $10^{-4}$  s des contraintes de cisaillement atteignant  $10^8 \text{ dynes/cm}^2$ .

Dans ces conditions, l'élévation de température dans le film d'huile ne joue pas de rôle significatif à cause de l'excellente évacuation des calories fournies par les surfaces métalliques.

2° *L'épaisseur du film* est enregistrée au cours du choc par la méthode de la capacité électrique et sa valeur minimale constitue une mesure de la résistance à l'écrasement du lubrifiant considéré.

3° *La comparaison* des épaisseurs mesurées avec les épaisseurs calculées montre que les films sont en réalité plus minces que ce que l'on peut prédire par le calcul, la différence allant en s'accroissant progressivement lorsque la viscosité de l'huile augmente depuis les huiles les plus fluides jusqu'aux polymères.

4° *Cette différence* ne peut pas s'expliquer par des considérations de compressibilité, déformation des surfaces ou échauffement du film. On doit la considérer comme une perte de viscosité temporaire du lubrifiant sous l'action des taux de cisaillement élevés qui existent dans le film. Le caractère non newtonien des huiles minérales apparaît ici pour des taux de cisaillement de  $10^7$ - $10^8 \text{ s}^{-1}$ ; il est d'autant plus important que la viscosité de l'huile est plus élevée et que la molécule a une forme plus allongée.

Ces observations sont en accord avec les déterminations de viscosité par méthode électrique à haute fréquence ( $10^8 \text{ Hz}$ ) et ne sont pas en contradiction avec les mesures de viscosité faites sur les

viscosimètres rotatifs conventionnels, qui sont limités à des contraintes de cisaillement de  $10^5 \text{ dynes/cm}^2$ .

5° *La visco-élasticité* ne joue aucun rôle dans ce genre de choc où les temps de mise en charge restent supérieurs à  $10^{-4}$  s. Le comportement du lubrifiant est purement visqueux.

### REMERCIEMENTS

L'auteur remercie le Docteur R. COURTEL, du C.N.R.S., pour ses conseils, MM. les Professeurs N. P. VINH TUONG et P. SORIN, de l'I.S.M.C.M., pour leur aide expérimentale et M. M. KENNEL, de la Compagnie Française de Raffinage, pour sa participation aux essais.

Il remercie également la Compagnie Française de Raffinage qui lui a permis de publier les résultats.

### BIBLIOGRAPHIE

- [1] E. RABINOWICZ. — *Friction and Lubrication of Solids*, part 1, par Bowden et Tabor, Oxford University Press, pp. 271-272 (1954).
- [2] O. REYNOLDS. — *On the theory of Lubrication*. Trans. Roy. Soc. (London) **177**, 190 (1886).
- [3] P. S. Y. CHU et A. CAMERON. — *J. of Inst. of Petroleum*, vol. 48, **461**, pp. 147-155 (mai 1962).
- [4] F. LAGARDE, N. P. VINH TUONG, R. COURTEL et P. SORIN. — *C.R. Acad. Sciences*, pp. 878-881 (7-1-1963).
- [5] A. N. GRUBIN. — 1949, *Central Scientific Research Institute of Technology and mechanical Engineering*, Book n° 30, Moscou (DSIR translation, Londres, 1956).
- [6] D. DOWSON, R. G. HIGGINSON et A. V. WHITAKER. — *J. Mech. Eng. Sci.*, **4**, 2, 121 (1962).
- [7] E. C. KUHN et C. C. YATES. — *A.S.L.E. Trans.*, vol. 7, n° 3, pp. 299-303 (juillet 1964).
- [8] R. COMOLET. — *First International Symposium on gas-lubricated bearings O.N.R.*, pp. 242-250 (1959).
- [9] H. CHRISTENSEN et Ph. D. THESIS. — *Université de Leeds*.
- [10] GALVIN, NAYLOR et WILSON. — *Second Convention on lubrication and Wear*, IME, paper n° 14 (1964).
- [11] J. F. DEINEGA, G. V. VINOGRADOV et A. V. LOBASTOVA. — « *Kolloidnyj Zhurnal* », t. 25, n° 6, pp. 659-666 (1952).

- [12] A. VOET. — *Journal of Physical Chemistry*, vol. 61, pp. 301-309 (mars 1957).
- [13] A. T. J. HAYWARD. — *Journal of the Inst. of Petroleum*, vol. 1, n° 494, pp. 35-48 (février 1965).
- [14] H. CHRISTENSEN. — *The oil film in a closing gap*. Proc. of the Roy. Soc. (mars 1962).
- [15] OLDROYD. — *Proc. of the Roy. Soc.*, A 218, 122 (1953).
- [16] H. EYRING. — *Journal of Chem. Phys.*, vol. 4, pp. 283-291 (1936).
- [17] SCHREMP, FERRY et EVANS. — *Journal of Applied Phys.*, 22, 711 (1951).
- [18] BUCHE. — *Journal of Chem. Phys.*, 22, 1570 (1954).
- [19] E. O. FORSTER. — *Lub. Engineering*, pp. 523-528 (novembre 1960).
- [20] KRISHNAJI et MANSHINGH. — *Journal of Chem. Phys.*, vol. 42, n° 7, pp. 2503-2508 (1-4-1965).
- [21] E. M. BARBER, J. R. MUENGER, F. J. VILLFORTH. — *Analytical Chemistry*, vol. 27,3, pp. 425-429 (mars 1955).
- [22] S. J. NEEDS. — *Symposium on methods of measuring viscosity at high rates of shear*, Washington, D.C., pp. 24-44 (février 1950).
- [23] R. S. PORTER et J. F. JOHNSON. — *Wear*, 4, 1, 32 (1961).
- [24] C. W. GEORGI. — *Fourth World Petroleum Congress*, Rome, Proceedings, section 6, pp. 211-222 (juin 1955).
- [25] W. P. MASON. — *Trans. A.S.M.E.*, 69.359 (1947).
- [26] J. K. APPELDOORN, E. H. OKRENT et W. PHILIPPOFF. — *Viscosity and elasticity at high pressures and high shear rates*. API Meeting, Division of Refining, San Francisco (14-5-1962).
- [27] A. J. BARLOW et J. LAMB. — *Proc. Roy. Soc.*, A. 253, pp. 52-59 (1959).
- [28] R. SCHNURMANN. — *Erdöl und Kohle*, n° 6, pp. 451-455 (juin 1962).
- [29] F. CHARRON. — *Revue de l'I.F.P.*, vol. 4, n° 1 (1949).
- [30] J. C. BELL, J. W. KANNEL et C. M. ALLEN. — *Journal of Basic Engineering* (sept. 1964), pp. 423-434 et *Trans A.S.M.E., ASLE-ASME Lub. Conf., Rochester* (15-17 octobre 1963), Paper n° 63, lub. 8.
- [31] L. B. SIBLEY. — *Symposium on rolling contact phenomene*, Warren, Michigan, octobre 1960. Elsevier Publisburg Co., pp. 243-250 (1962).

# RECHERCHES CONCERNANT LES CONTRAINTES INTERGRANULAIRES DANS LES MILIEUX PULVÉRULENTS

## APPLICATION A LA RHÉOLOGIE DE CES MILIEUX (1)

par J. WEBER

INGÉNIEUR DES PONTS ET CHAUSSÉES  
AU LABORATOIRE CENTRAL DES PONTS ET CHAUSSÉES

### RÉSUMÉ

On présente les principaux résultats obtenus dans l'étude par photo-élasticité des contraintes dans un milieu pulvérulent bidimensionnel constitué par un empilement de cylindres de Pyrex : visualisation du mode de transmission des contraintes, étude statistique des contacts et réactions intergranulaires.

En supposant les grains indéformables, on donne une justification de l'hypothèse selon laquelle un échantillon de milieu pulvérulent, soumis à une « histoire des contraintes »  $\sigma_{ij}(t)$  fonction du temps  $t$ , subit à chaque instant  $t$  les mêmes déformations que si cet échantillon avait été soumis à l'histoire des contraintes  $\frac{1}{\lambda} \sigma_{ij}(t)$  ( $\lambda$  est une constante positive arbitraire). Le domaine de validité de cette propriété est étudié par des essais triaxiaux; on examine ensuite ses conséquences sur les lois de similitude à utiliser dans les études sur modèles réduits de problèmes de mécanique des sols pulvérulents.

### INTRODUCTION

Nous exposons les résultats de recherches théoriques et expérimentales effectuées au Laboratoire Central des Ponts et Chaussées, concernant la mécanique des milieux granulaires; on s'est plus particulièrement attaché à l'étude, à l'échelle des

grains, de la transmission des contraintes dans ces milieux, et de leur déformabilité.

Nous décrirons tout d'abord une expérience permettant d'examiner par photo-élasticité la répartition des contraintes dans un empilement de cylindres, représentant un milieu pulvérulent bidimensionnel.

Nous indiquerons ensuite des résultats concernant la statistique des contacts et réactions intergranulaires dans un empilement de grains.

Nous donnerons, enfin, une justification d'une propriété, particulière aux milieux pulvérulents, de la relation contrainte-déformation, et nous étudierons expérimentalement le domaine de validité de cette propriété.

### I. — ÉTUDE PAR PHOTO-ÉLASTICITÉ D'UN EMPILEMENT DE CYLINDRES DANS UN APPAREIL « BIAXIAL »

Dans une communication au IV<sup>e</sup> Congrès International de Mécanique des Sols et des Travaux de Fondations de Londres, en 1957, P. DANTU a montré comment on pouvait adapter la photo-élasticité à l'étude de la transmission des contraintes dans les milieux granulaires.

Ces recherches ont été poursuivies, sous sa direction, par l'étude d'un empilement de cylindres

(1) Conférence au Groupe Français de Rhéologie, le 18 novembre 1965.

de Pyrex, représentant un milieu pulvérulent bidimensionnel, à l'aide d'un appareil « biaxial » dans lequel cet empilement peut être soumis à une contrainte verticale  $\sigma_v$  et à une contrainte horizontale  $\sigma_h$  arbitraires (*fig. 1*) (1).

Les grains qui ne subissent que des contraintes nulles ou très faibles demeurent éteints; par contre, au voisinage d'un contact par lequel se transmet une réaction non négligeable, il apparaît une aigrette lumineuse grâce à laquelle on peut évaluer la réaction

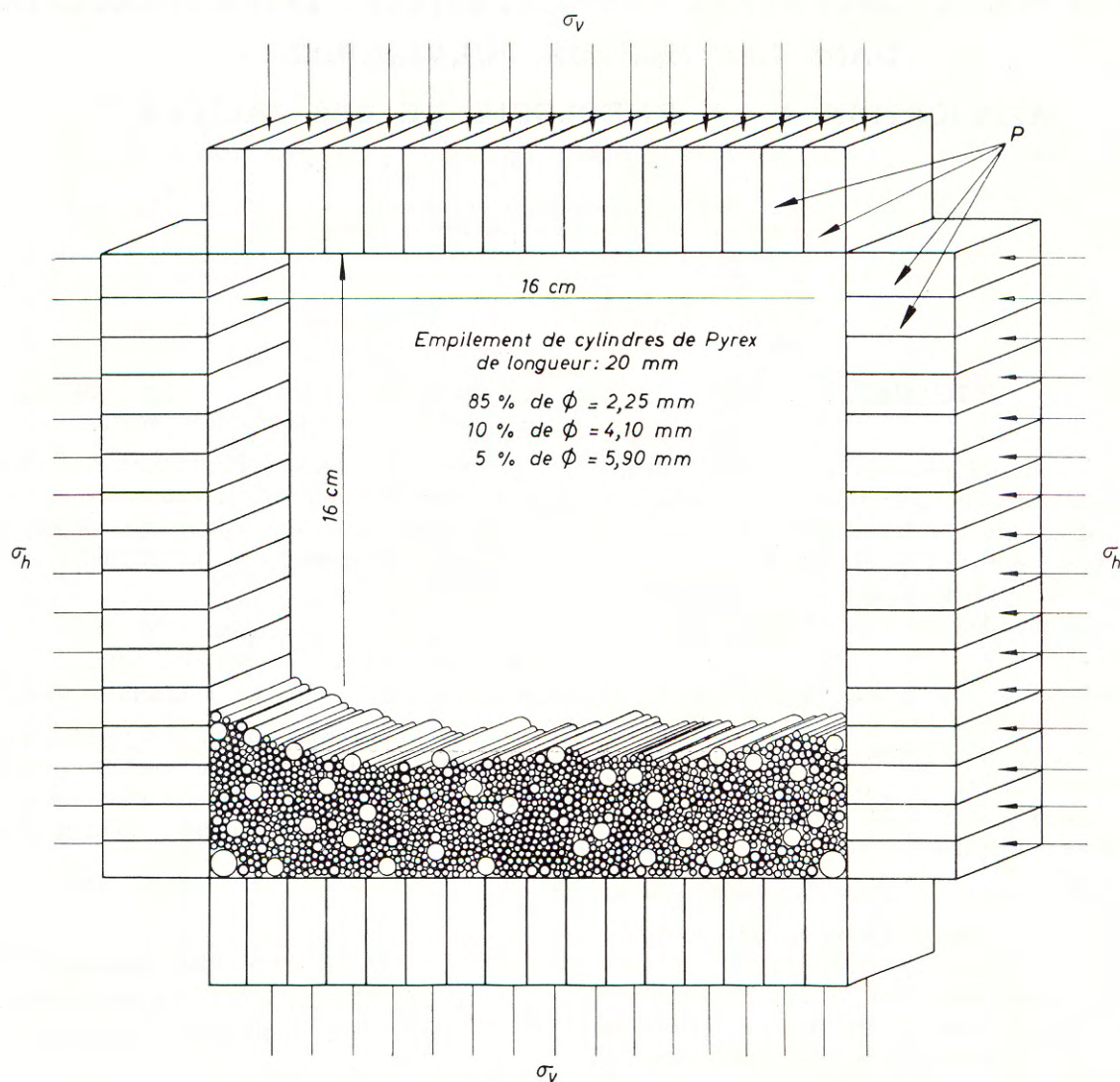


Fig. 1. — Étude d'un empilement de cylindres dans un appareil biaxial

L'empilement n'est que partiellement représenté, il remplit en fait tout le carré de 16 cm  $\times$  16 cm. Les contraintes  $\sigma_v$  et  $\sigma_h$  sont exercées par l'intermédiaire des plaquettes métalliques P pouvant coulisser sur roulements à billes; sur ces plaquettes agissent des membranes en caoutchouc (non représentées) mises en pression grâce à deux circuits hydrauliques

L'empilement sous contrainte est observé entre un polariseur et un analyseur croisés, en lumière polarisée circulaire (*fig. 2* et 3).

intergranulaire. Les grains les plus contraints sont presque entièrement lumineux; on voit sur les *figures 2* et 3 qu'ils se répartissent suivant des chaînons.

(1) Les contraintes bidimensionnelles  $\sigma_v$  et  $\sigma_h$  ont les dimensions d'une force divisée par une longueur.

Sous contrainte isotrope (*fig. 2*) la disposition des chaînons est statistiquement isotrope; lorsqu'on

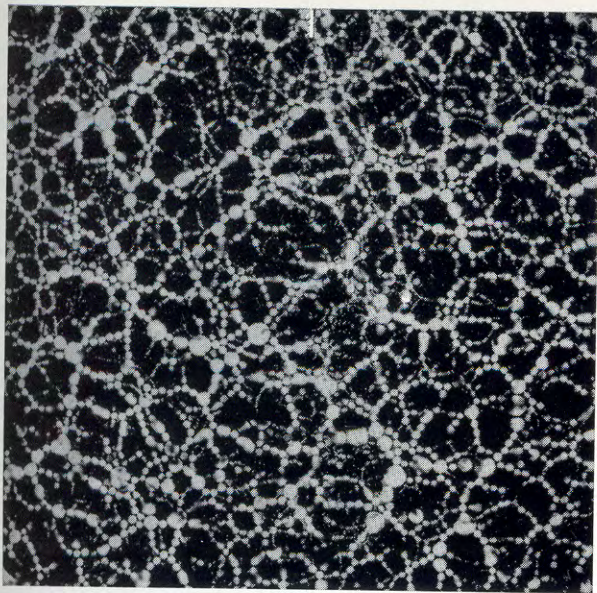


Fig. 2. — Empilement de cylindres de Pyrex, observé en lumière polarisée circulaire, soumis aux contraintes  $\sigma_h = \sigma_v = 8 \cdot 10^6$  dynes/cm

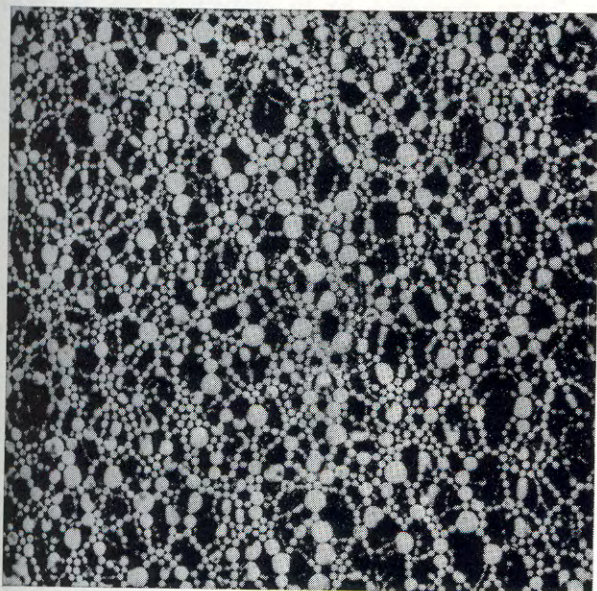


Fig. 3. — Empilement de cylindres de Pyrex, observé en lumière polarisée circulaire, soumis aux contraintes  $\sigma_h = 8 \cdot 10^6$  dynes/cm  $\sigma_v = 18 \cdot 10^6$  dynes/cm

fait varier la contrainte isotrope, la configuration de l'empilement de grains demeure pratiquement inchangée, et sa déformation, due à la seule élasticité des grains, est très faible; au cours de cycles successifs,

les chaînons de transmission des contraintes conservent des positions invariables.

Il n'en est pas de même sous l'effet d'un déviateur : lorsque, maintenant constante la contrainte  $\sigma_h$ , on fait croître  $\sigma_v$ , l'empilement passe par un très grand nombre de configurations successives, les chaînons tendant à s'orienter dans le sens de la contrainte la plus forte, c'est-à-dire verticalement (fig. 3).

L'équilibre limite est atteint pour un rapport  $\frac{\sigma_v}{\sigma_h}$  de l'ordre de 2,7, ce qui correspond à un angle de frottement interne de  $28^\circ$ .

Ces expériences ont été filmées.

## II. — STATISTIQUE DES CONTACTS ET RÉACTIONS INTERGRANULAIRES

### a) Étude théorique de la statistique des contacts intergranulaires (1).

Considérons un ensemble de grains bidimensionnels de formes quelconques, supposés indéformables, et imaginons qu'on les empile un à un de la façon suivante (fig. 4) :

1° chaque grain G est mis en contact avec deux au moins des grains déjà empilés;

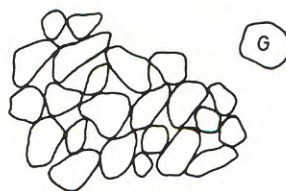


Fig. 4. — Construction d'un empilement de grains bidimensionnels de forme quelconque

2° ce grain est ensuite soudé aux grains déjà empilés; de cette façon, tout ensemble partiel de grains empilés constitue une structure indéformable.

La position dans le plan d'un grain bidimensionnel de forme quelconque dépend de trois paramètres; imposer à un grain d'être en contact avec un grain de l'empilement partiellement construit, revient à se donner une relation entre ces trois

(1) Nous nous inspirons ici de recherches antérieures de P. DANTU, qui n'ont pas été publiées.



paramètres. La position du grain ne peut donc plus varier lorsqu'il est en contact avec trois grains.

Sans doute pourrait-il se trouver alors, par hasard, en contact avec un quatrième grain, mais on peut considérer que cette éventualité est infiniment peu probable si les grains sont de forme quelconque, et indéformables.

Le nombre de contacts dans l'empilement une fois construit, est donc compris entre deux et trois fois le nombre total de grains; le nombre moyen de points de contact par grain est, par conséquent, compris entre 4 et 6 (lorsqu'on passe en revue les grains de l'empilement et que l'on dénombre les contacts de chacun d'eux, on compte deux fois chaque contact de l'empilement).

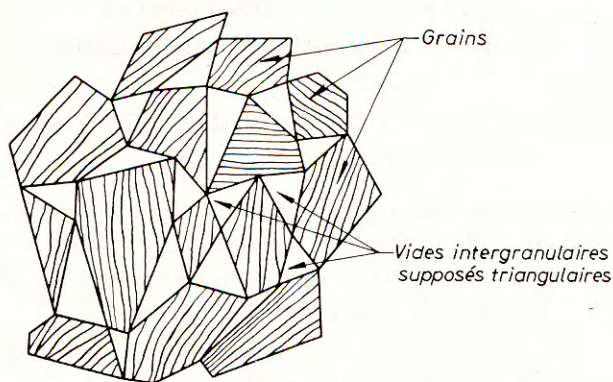


Fig. 5. — Assimilation de la surface d'un polyèdre à un empilement de grains bidimensionnels

En reprenant les considérations précédentes dans le cas de grains indéformables de formes circulaires et de rayons quelconques, empilés suivant le processus indiqué, on établit que le nombre moyen de points de contact par grain est égal à 4 (la position dans le plan d'un grain de forme circulaire dépendant de deux paramètres).

De même, dans le cas d'un empilement de grains tridimensionnels indéformables de formes quelconques, empilés suivant le processus indiqué, le nombre moyen de points de contact par grain ne peut dépasser 12 (la position dans l'espace d'un grain de forme quelconque dépendant de six paramètres).

REMARQUE. — Pour établir que, dans le cas de grains bidimensionnels de forme quelconque, le nombre moyen de points de contact par grain ne peut dépasser 6, nous avons dû supposer que les grains étaient indéformables, que leur forme était quelconque (ce qualificatif étant d'ailleurs

imprécis) et qu'ils étaient empilés suivant un certain processus.

Démontrons, sans faire aucune de ces suppositions, que si tous les vides intergranulaires de l'empilement sont des triangles (à côtés curvilignes) le nombre moyen de points de contact par grain est égal à 6 : nous établissons pour cela une correspondance entre l'empilement de grains et la surface d'un polyèdre convexe, certaines faces représentant les grains, d'autres les vides intergranulaires (triangulaires), les sommets du polyèdre étant assimilés aux contacts intergranulaires (fig. 5); le résultat s'obtient en appliquant la relation classique  $C = F + S - 2$  entre le nombre  $C$  des côtés du polyèdre, le nombre  $F$  de ses faces et le nombre  $S$  de ses sommets.

Or, si tous les grains de l'empilement sont de forme convexe, les vides intergranulaires sont toujours des polygones (à côtés curvilignes) comptant au moins trois côtés; il en résulte que, dans un empilement de grains convexes, le nombre moyen de points de contact par grain ne peut dépasser 6.

#### b) Étude théorique de la statistique des réactions intergranulaires.

Les grains de l'empilement étant numérotés de 1 à  $N$ , soit  $\bar{R}_{ij}$  la force que le grain  $i$  exerce sur le grain  $j$  ( $\bar{R}_{ij} = 0$  si les grains ne sont pas en contact),  $A_i$  un point choisi arbitrairement à l'intérieur de la surface du grain  $i$ ,  $S$  la surface totale de l'empilement (somme de la surface des grains et des vides).

Nous allons démontrer que le tenseur statistique des contraintes  $\bar{\sigma}$  s'exprime en fonction des réactions intergranulaires, par la formule

$$(1) \quad \bar{\sigma} = \frac{1}{2S} \sum_{ij} \bar{R}_{ij} \times \overline{A_i A_j},$$

$\bar{R}_{ij} \times \overline{A_i A_j}$  désignant le produit tensoriel des vecteurs  $\bar{R}_{ij}$  et  $\overline{A_i A_j}$ .

Si  $\bar{n}$  est un vecteur unitaire quelconque,  $\bar{\sigma}(\bar{n})$  la contrainte s'exerçant suivant un élément perpendiculaire à  $\bar{n}$  ( $\bar{n}$  étant dirigé vers le côté passif de l'élément), la formule (1) peut s'écrire

$$(2) \quad \bar{\sigma}(\bar{n}) = \frac{1}{2S} \sum_{ij} \bar{R}_{ij} (\overline{A_i A_j} \cdot \bar{n}),$$

$\overline{A_i A_j} \cdot \bar{n}$  désignant le produit scalaire des vecteurs  $\overline{A_i A_j}$  et  $\bar{n}$ .

Considérons une droite D perpendiculaire à  $\bar{n}$  et partageant le plan en deux demi-plans 1 et 2 (fig. 6).

Soit  $k$  l'un des grains que rencontre D, le point  $A_k$  se trouvant dans le demi-plan 1 et soit  $C_{kl}$  l'un des contacts de ce grain avec un grain voisin,  $C_{kl}$  se trouvant dans le demi-plan 2 : d'où  $\overline{A_k C_{kl} \cdot \bar{n}} > 0$ . La somme  $\bar{F}$  des forces que le demi-plan 1 exerce sur le demi-plan 2 à travers tous les grains que rencontre D, comprend en particulier la réaction  $\overline{R_{kl}}$ .

Supposons que la droite D se déplace parallèlement à une droite fixe  $D_0$ , et soit repérée par sa distance  $h$  à cette droite,  $h$  variant de  $h_0$  à  $h_1$  lorsque D balaye tout l'empilement.

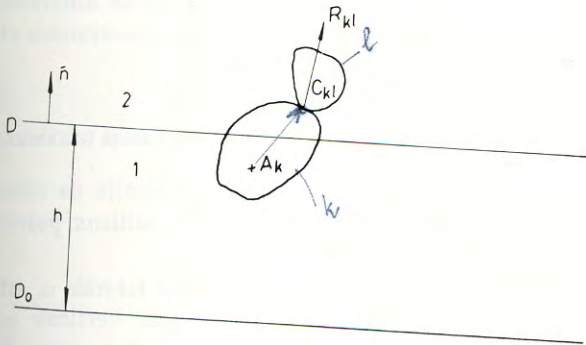


Fig. 6. — Section d'un empilement de grains par une droite D

Dans l'intégrale  $\int_{h_0}^{h_1} \bar{F}(h) dh$ , la réaction  $\overline{R_{kl}}$  apparaît avec un coefficient égal à  $\overline{A_k C_{kl} \cdot \bar{n}}$ .

On démontre qu'il en serait de même pour une réaction  $\overline{R_{kl}}$  telle que  $\overline{A_k C_{kl} \cdot \bar{n}} < 0$ .

D'où :

$$S \bar{\sigma}(\bar{n}) = \sum_{kl} \overline{R_{kl}} (\overline{A_k C_{kl} \cdot \bar{n}}).$$

Additionnons cette formule avec celle obtenue par permutation de  $k$  et  $l$  :

$$2 S \bar{\sigma}(\bar{n}) = \sum_{kl} [\overline{R_{kl}} (\overline{A_k C_{kl} \cdot \bar{n}}) + \overline{R_{lk}} (\overline{A_l C_{lk} \cdot \bar{n}})].$$

Tenant compte des relations  $\overline{R_{lk}} = -\overline{R_{kl}}$  et  $\overline{A_k C_{kl}} - \overline{A_l C_{lk}} = \overline{A_k A_l}$ , on obtient la formule (2).

Les formules (1) et (2) s'appliquent à un empilement de grains tridimensionnels, lorsqu'on y remplace la surface S de l'empilement par son volume V.

Dans le cas d'un empilement isotrope de grains bidimensionnels de formes circulaires soumis à une contrainte isotrope  $p$ , on établit à partir de (1) la formule suivante :

$$(3) \quad p = \frac{1}{2S} \sum_c r_c d_c,$$

la sommation s'étendant non plus aux grains, mais aux contacts intergranulaires  $c$ .

$r_c$  désigne la composante normale aux grains de la réaction intergranulaire correspondant au contact  $c$  ( $r_c \geq 0$ );

$d_c$  est la distance des centres des grains en contact correspondants.

La formule (3) suggère de définir une valeur moyenne  $r_m$  des réactions intergranulaires (moyenne qui n'a pas de raison de s'identifier à la moyenne arithmétique) par la formule

$$(4) \quad r_m = \frac{2S}{\sum_c d_c} p.$$

#### c) Étude expérimentale de la statistique des contacts et des réactions intergranulaires.

On a effectué des comptages de contacts et des mesures de réactions intergranulaires (par photoélasticité) sur une partie de l'empilement placé dans l'appareil biaxial, et soumis à une contrainte isotrope  $\sigma_v = \sigma_h = p = 8 \cdot 10^6$  dynes/cm.

Sur 426 grains contigus, on a dénombré 882 contacts intergranulaires, soit en moyenne 4,14 contacts par grain. (L'écart par rapport à la valeur théorique de 4 peut être dû au comptage de certains « faux contacts » ou au fait que la section des grains n'est pas rigoureusement circulaire et qu'ils ne sont pas parfaitement indéformables).

La valeur moyenne des réactions intergranulaires, déterminée par application de la formule (4) est de  $2 \cdot 10^6$  dynes.

Les valeurs des 882 réactions intergranulaires observées se répartissent comme suit :

Valeurs des réactions (unité : $10^6$ dynes)	0	1,55	2,80	4,05	5,30	6,55	7,80	9,05
Nombre de réactions .....	518	195	71	27	10	10	22	29

### III. — ÉTUDE D'UNE PROPRIÉTÉ, PARTICULIÈRE AUX MILIEUX PULVÉRULENTS DE LA RELATION CONTRAİNTE-DÉFORMATION

#### a) Énoncé et justification de la propriété.

Considérons deux empilements identiques A et B de grains bidimensionnels ou tridimensionnels, que nous supposons rigoureusement indéformables (fig. 7).

Imaginons que les grains périphériques de l'empilement A soient soumis à des forces  $\overline{F}_p$ , les grains périphériques homologues de l'empilement B étant soumis aux points homologues, à des forces  $\frac{1}{\lambda} \overline{F}_p$  ( $\lambda$  désigne une constante positive arbitraire).

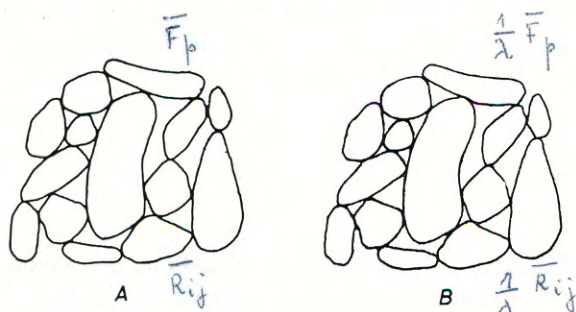


Fig. 7. — Exemple d'empilements identiques

On peut penser que si l'empilement A est en équilibre, les réactions intergranulaires étant  $\overline{R}_{ij}$ , l'empilement B est lui aussi en équilibre, les réactions intergranulaires étant  $\frac{1}{\lambda} \overline{R}_{ij}$ .

En effet, le système des  $\overline{R}_{ij}$  dans l'empilement A étant statistiquement admissible et compatible avec les lois de frottement de Coulomb, il en est de même du système des  $\frac{1}{\lambda} \overline{R}_{ij}$  dans l'empilement B (1).

Plus généralement, supposons que les forces  $\overline{F}_p$  agissant sur les grains périphériques de l'empilement A varient au cours du temps, de sorte que cet empilement passe par une succession de configurations.

(1) L'argument présenté n'est pas valable en toute rigueur, car le système des réactions intergranulaires ne peut, en général, être déterminé de façon unique, à partir des seules équations d'équilibre et des lois de frottement de Coulomb. Il est, en fait, très difficile de formuler des conditions nécessaires et suffisantes d'équilibre d'assemblages de corps en contact avec frottement.

On peut penser que, sous l'effet des forces  $\frac{1}{\lambda} \overline{F}_p$ , l'empilement B passe par la même succession de configurations, de sorte qu'à tout instant les empilements A et B ont même configuration (2).

De là l'idée que les milieux pulvérulents, dont les grains sont en général peu déformables, pourraient approximativement obéir à la loi suivante :

— si un échantillon, soumis à partir de l'instant  $t = 0$ , à l'histoire des contraintes  $\sigma_{ij}(t)$ , subit la déformation  $\varepsilon_{ij}(t)$ , ce même échantillon, soumis à partir de  $t = 0$  à l'histoire des contraintes  $\frac{1}{\lambda} \sigma_{ij}(t)$ , subit la même déformation  $\varepsilon_{ij}(t)$ .

Notons que cette loi est totalement différente de celle de l'élasticité, dans laquelle contraintes et déformations sont proportionnelles.

#### b) Vérification de la propriété par des essais triaxiaux.

Afin d'étudier le domaine de validité de cette propriété on a effectué, avec divers milieux pulvérulents, une série d'essais triaxiaux.

Dans chaque essai, la contrainte latérale  $\sigma_h$  est maintenue constante, et la contrainte verticale  $\sigma_v$  croît d'une valeur initialement égale à  $\sigma_h$ , jusqu'à celle pour laquelle l'équilibre limite est atteint.

On a donné à  $\sigma_h$  une gamme de valeurs étendue, allant de 0,2 à 10 bars.

Les résultats sont donnés sous la forme de graphiques (fig. 8, 9, 10) dans lesquels on a porté en abscisse la déformation verticale  $\varepsilon$  de l'éprouvette, et en ordonnée la quantité  $\frac{\sigma_v - \sigma_h}{\sigma_h}$ . Les points expérimentaux, très nombreux et pratiquement confondus avec les courbes, n'ont pas été représentés.

D'après la propriété énoncée en a), les courbes obtenues avec un même sable, et correspondant aux différentes valeurs de  $\sigma_h$ , devraient être confondues.

En fait, ces courbes se disposent dans un fuseau relativement étroit. On peut remarquer que les courbes correspondant aux plus fortes valeurs de  $\sigma_h$  se placent sensiblement au-dessous des autres; le milieu est donc un peu plus déformable sous de fortes contraintes, que ne le laisse prévoir la propriété énoncée en a); cet écart est peut-être dû à la déformabilité des grains.

(2) Cette justification n'est pas rigoureuse pour les mêmes raisons que celles indiquées dans la note (1); en outre, il faut ici admettre qu'au cours de l'évolution de la configuration des empilements, les forces d'inertie demeurent négligeables.

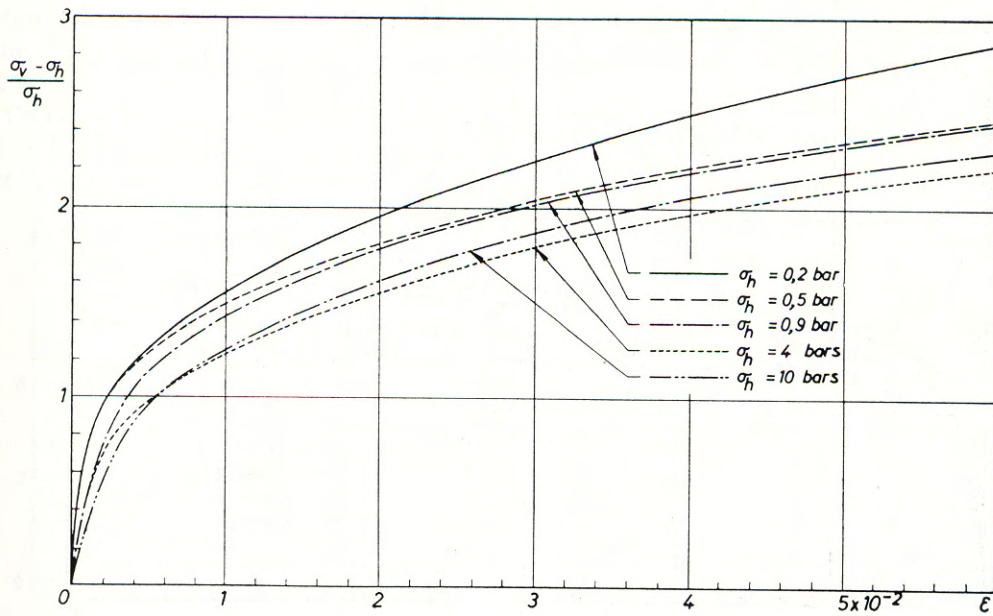


Fig. 8. — Courbes  $\left(\frac{\sigma_v - \sigma_h}{\sigma_h}, \epsilon\right)$  correspondant à différentes valeurs de  $\sigma_h$   
 Sable de Fontainebleau sec  $\gamma_d = 1,59$   
 Dimension des grains inférieure à  $300 \mu$  dans la proportion pondérale de 90 %  
 (Sans correction de section des éprouvettes)

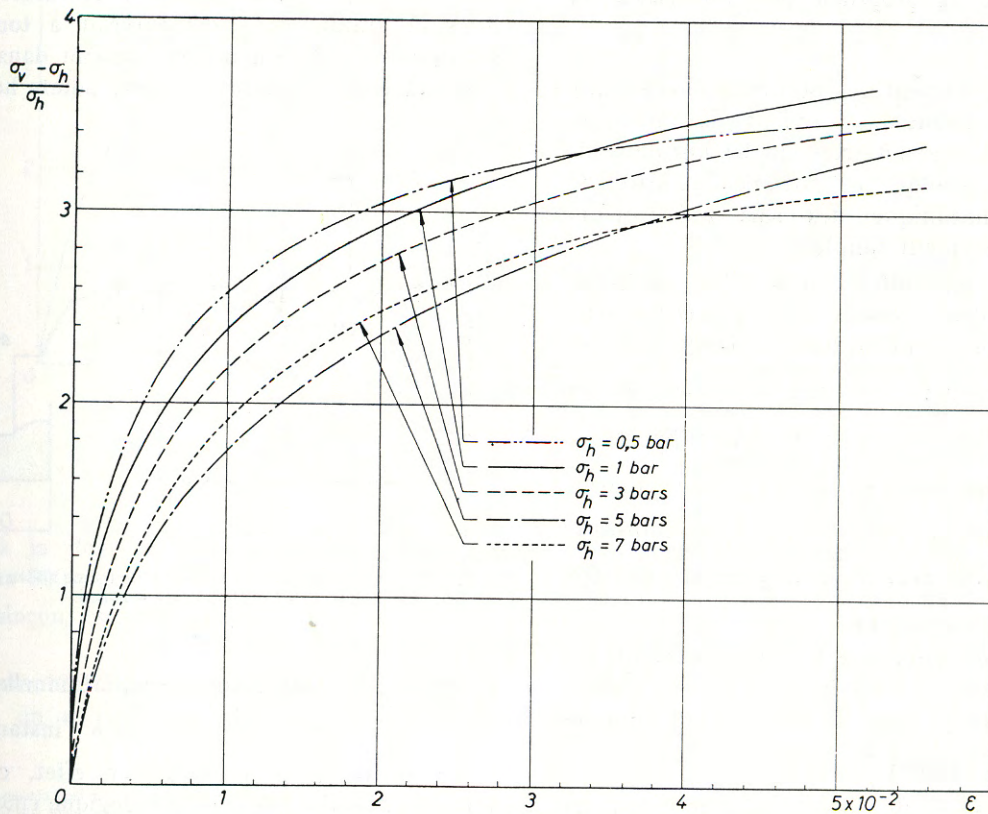


Fig. 9. — Courbes  $\left(\frac{\sigma_v - \sigma_h}{\sigma_h}, \epsilon\right)$  correspondant à différentes valeurs de  $\sigma_h$   
 Sable de Leucate sec  $\gamma_d = 1,63$ . Dimension des grains comprise entre 0,2 et 1 mm  
 (Sans correction de section des éprouvettes)

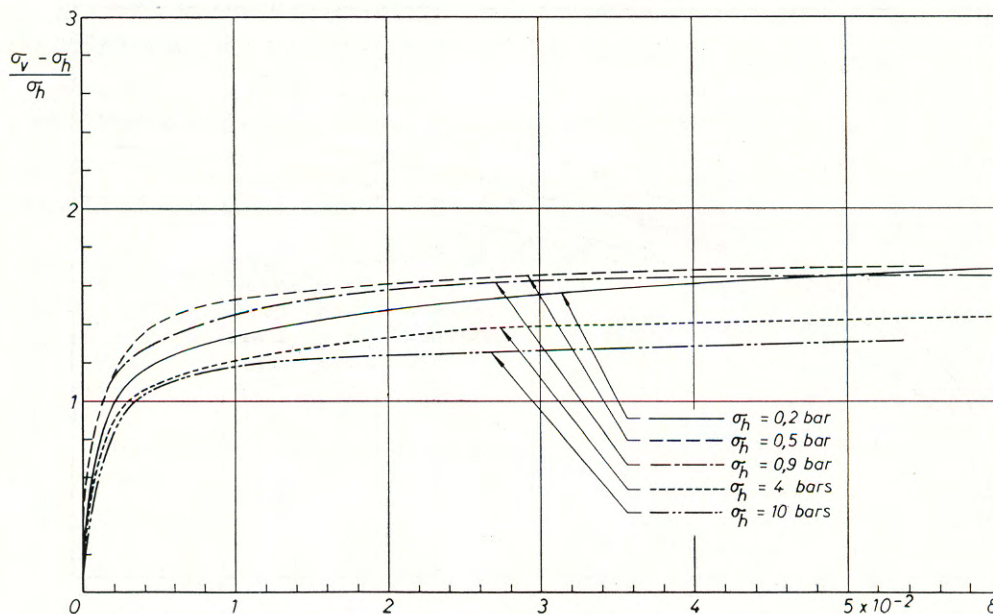


Fig. 10. — Courbes  $\left(\frac{\sigma_v - \sigma_h}{\sigma_h}, \varepsilon\right)$  correspondant à différentes valeurs de  $\sigma_h$ .  
Sable de billes de verre sec  $\sigma = 160$  à  $250 \mu$   $\gamma_{d.} = 1,82$   
(Sans correction de section des éprouvettes)

### c) Vérification de la propriété par des essais de similitude.

L'intérêt que présente la propriété rhéologique qui vient d'être examinée provient du fait que, si elle était vérifiée en toute rigueur, les lois de similitude dans les études sur modèles réduits de problèmes de mécanique des sols pulvérulents seraient particulièrement simples.

Supposons, en effet, que l'on effectue simultanément deux essais de poinçonnement d'un même milieu pulvérulent à deux échelles différentes (les cuves contenant le milieu et les poinçons étant homothétiques dans le rapport  $\frac{1}{\lambda}$ ), de sorte que l'enfoncement relatif  $\frac{h}{\Phi}$  du poinçon agissant sur le grand modèle soit à tout instant égal à l'enfoncement relatif  $\frac{h'}{\Phi'}$  du poinçon agissant sur le petit modèle (fig. 11).

A l'instant où commence le poinçonnement, les contraintes en deux points homologues du milieu (dues au poids propre de ce milieu) sont proportionnelles dans le rapport  $\frac{1}{\lambda}$ .

Si la propriété rhéologique énoncée en a) s'appliquait en toute rigueur, la configuration

(macroscopique) du milieu pulvérulent contenu dans la grande cuve demeurerait à tout instant semblable à celle du milieu contenu dans la petite cuve, et les contraintes en deux points homologues

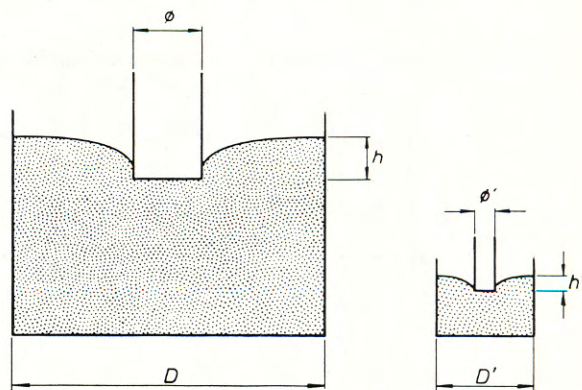


Fig. 11. — Essai de poinçonnement d'un même milieu pulvérulent effectué à deux échelles

seraient à tout instant proportionnelles dans le rapport  $\frac{1}{\lambda}$ , comme elles le sont à l'instant initial : cette loi de similitude est, en effet, compatible à la fois avec la propriété rhéologique énoncée en a) et avec les équations d'équilibre.

Pour étudier le domaine de validité de cette loi, on a effectué des essais de poinçonnement de sable de Leucate, aux échelles 1, 1/3 et 1/6 (1).

Dans l'essai à l'échelle 1, la cuve est un cylindre de 1400 mm de diamètre, construit en tôle d'acier de 5 mm d'épaisseur. Le sable de

relatif  $\frac{h}{\Phi}$  du poinçon, et en ordonnée la pression moyenne exercée sur lui.

D'après la loi de similitude précédente, on devrait observer, pour un même enfoncement relatif  $\frac{h}{\Phi}$  des poinçons dans les différents modèles,

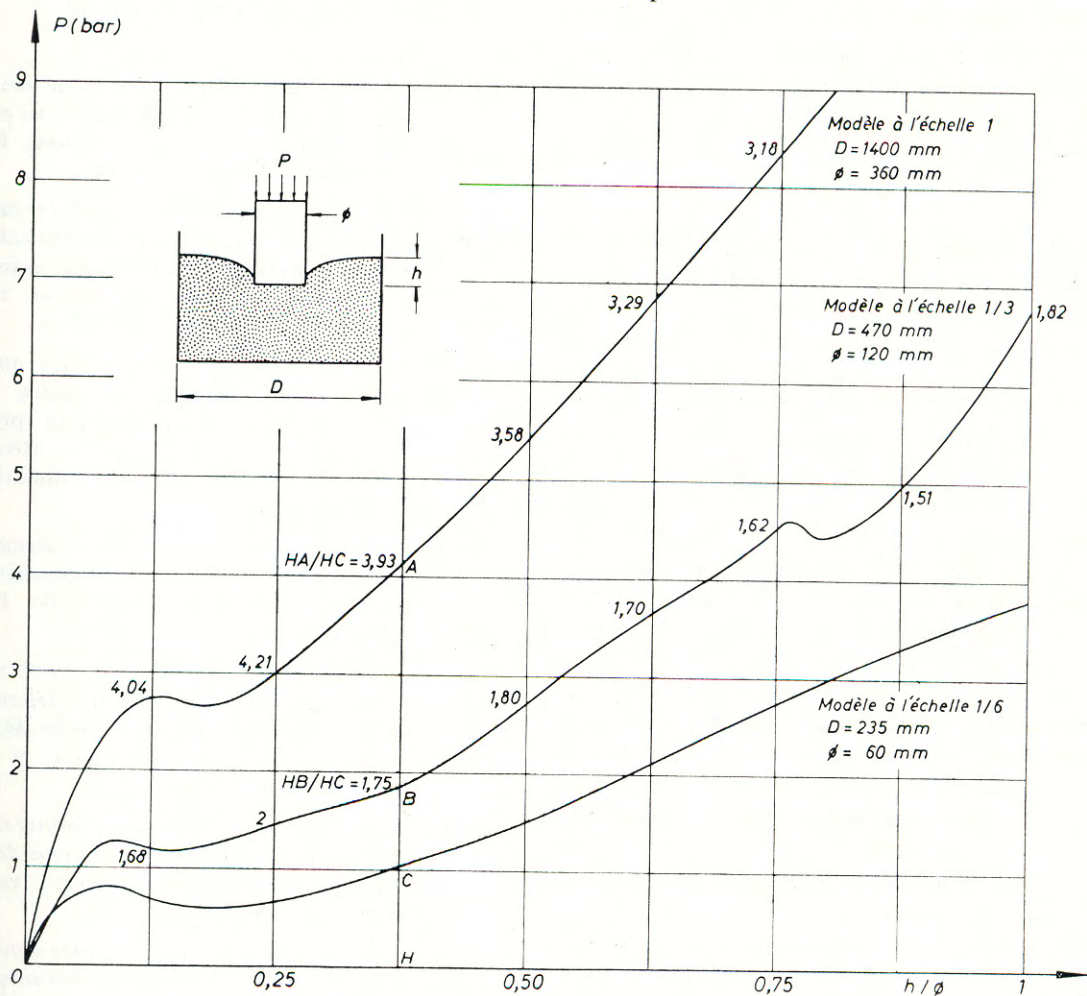


Fig. 12. — Essais de poinçonnement de sable de Leucate  
Le rapport  $\frac{D}{\phi}$  est égal à 3,9 dans les trois essais Densité du sable : 1,63

Leucate, à la densité 1,63, la remplit sur une hauteur de 900 mm.

Le poinçon, en tôle d'acier, a un diamètre de 360 mm.

La figure 12 donne les résultats relatifs aux trois modèles : on a porté en abscisse l'enfoncement

des pressions s'exerçant sur les poinçons, proportionnelles aux dimensions linéaires des modèles.

On observe, en fait, que pour une même valeur de  $\frac{h}{\Phi}$ , les pressions croissent un peu moins vite que les dimensions des modèles : le rapport  $\frac{HA}{HC}$  a des valeurs de l'ordre de 4, alors que le rapport devrait être égal à 6 d'après la loi de similitude théorique (l'écart est de 35 %); de plus  $\frac{HA}{HC}$  tend à décroître

(1) Ces essais ont été effectués à la Section des Sols du Laboratoire Central des Ponts et Chaussées, par MM. GUÉGAN et LEGEAY. Nous n'en décrivons ici qu'une partie.

lorsque  $\frac{h}{\phi}$  augmente, ce qui montre que la divergence par rapport à la loi de similitude s'accroît lorsque l'ordre de grandeur des contraintes augmente.

De même, le rapport  $\frac{HB}{HC}$  est de l'ordre de 1,75 alors que ce rapport devrait être égal à 2 d'après la loi de similitude (écart de 12,5 %).

Notons que si ces essais de poinçonnement étaient effectués avec un milieu cohérent et non pesant, les trois courbes de la *figure 12* seraient confondues.

\* \* \*

L'étude expérimentale des milieux pulvérulents par des mesures à l'appareil triaxial et des essais de poinçonnement fait donc apparaître un certain écart que présentent ces milieux par rapport à la propriété énoncée en *a*) : leur déformabilité sous de fortes contraintes est un peu supérieure à celle que l'on évaluerait, à partir d'essais sous des contraintes homothétiques plus faibles, en appliquant cette propriété théorique.

Des études sur modèle réduit de problèmes de mécanique des sols pulvérulents peuvent apporter dans de nombreux cas des éléments d'information intéressants (poussées s'exerçant sur une galerie, un mur de soutènement, évaluation de tassements, etc.); cependant, d'après les résultats précédents, la loi de similitude simple, dont nous avons donné une justification, ne pourra être utilisée que si les contraintes les plus élevées ne dépassent pas quelques bars; on risquerait de commettre des erreurs très importantes en l'appliquant à des problèmes dans lesquels les contraintes dépassent cet ordre de grandeur.

Il sera nécessaire, avant d'entreprendre une étude sur modèle réduit, de soumettre le milieu pulvérulent à une série d'essais triaxiaux, qui permettront de préciser quelque peu le domaine de validité de la loi de similitude.

\* \* \*

Nous tenons à remercier M. DIRUY, attaché de recherches et M<sup>lle</sup> GRÉSINSKI, assistante à la Section d'Optique du L.C.P.C., qui ont mis au point l'appareil

biaxial et participé à l'interprétation des résultats; ainsi que MM. GUÉGAN et LEGEAY, techniciens supérieurs de la Section des Sols, qui ont effectué les essais de poinçonnement de sable à différentes échelles.

## BIBLIOGRAPHIE

- J. BIAREZ. — *Contribution à l'étude des propriétés mécaniques des sols et des matériaux pulvérulents*. Thèse de Doctorat ès Sciences, Faculté des Sciences de Grenoble (1962).
- P. DANTU. — *Contribution à l'étude mécanique et géométrique des milieux pulvérulents*. Communication présentée au IV<sup>e</sup> Congrès International de Mécanique des Sols et des Travaux de Fondations, Londres (1957).
- P. DANTU. — *Étude mécanique d'un milieu pulvérulent formé de sphères égales de compacité maximale*. Communication présentée au V<sup>e</sup> Congrès International de Mécanique des Sols et des Travaux de Fondations, Paris (1961).
- P. HABIB et Y. TCHENG. — *Force portante et déformations des fondations superficielles. Essais de portance in situ*. Annales de l'I.T.B.T.P., n° 163-164 (juillet-août 1961).
- P. LE TIRANT et J. P. SARDA. — *Contribution à l'étude des relations contrainte-déformation dans les milieux pulvérulents*. Bulletin de Liaison des Laboratoires routiers, Ponts et Chaussées, n° 6 (mars-avril 1964).
- J. MANDEL. — *Essais sur modèles réduits en mécanique des terrains. Étude des conditions de similitude*. Revue de l'Industrie Minérale, vol. 44, n° 9 (septembre 1962).
- M. ROCHA. — *Condition de similitude dans l'étude sur modèles de problèmes de mécanique du sol*. Annales de l'I.T.B.T.P., n° 86 (février 1955).
- F. SCHLOSSER. — *Étude expérimentale du domaine élastique d'un milieu pulvérulent*. Cahiers du Groupe Français de Rhéologie, n° 1, t. I (septembre 1965).
- A. ZELIKSON. — *Sur un procédé de similitude nouveau, applicable notamment en mécanique des sols*. C.R.A.S. t. 256, pp. 3003-3004. Séance du 1<sup>er</sup> avril 1963.