# Les Cahiers de Rhéologie

Volume IX, Numéro 4 décembre 1991

Edités par :

Le Groupe Français de Rhéologie

Les Cahiers de Rhéologie



#### COMITE DE REDACTION

Rédacteur : R. GAUDU

#### COMITE DE LECTURE

G. Antonini D. Bourgoin P. Habib C. Huet T.E.R. Jones I. Krieger J-L. Lataillade B. Launav M. Lebouche J. Lemaître D. Lhuillier M. Lucius P. Papon J-M. Pierrard D. Quemada K. Walters J-D. Weber C. Wolff S. Zahorski J. Zarka

#### GROUPE FRANCAIS DE RHEOLOGIE

Président : JM. PIAU

Trésorier : R. BLANC

Secrétaire : R. GAUDU

ENSCPB 351 cours de la Libération 33405 TALENCE CEDEX Tél. 56 84 66 88 Fax. 56 84 66 68

#### SOUSCRIPTION AUX CAHIERS ET ABONNEMENTS

Les Cahiers paraissent deux à trois fois par an.

Les membres du G.F.R. les recoivent gratuitement. Les non membres peuvent obtenir les numéros des Cahires en s'adressant au Secrétariat du Groupe moyennant une participation au frais.

O Une liste de références bibliographiques complètes. Une liste de 5 Mots Clé devra figurer sur la dernière page, après l'article et avant les fig si celles ci ne sont pas incluses dans le texte. La longueur normale du texte ne devrait pas dépa 5 pages du format A4, y compris les résumés, les formules et les illustrations et le bibliograp Cortains articles plus longs pourront être acceptés si le sujet le justifie et sous réserve de l'ac présiable du Comité de Rédaction. Des articles plus court, éventuellement sous forme de 'no seront également les bienvenus. Les figures deivent être fixées de préférence en place dans le t

## Les Cahiers de Rhéologie

SOMMAIRE DU VOLUME IX n° 4 Décembre 1991

## ARTICLES

Rhéologie in situ des sauces de couchage......p. 171 F. VIDAL, Saint-Gobain Papier Bois Recherche D. EGURREGUY, Laboratoire de Mécanique Physique, Bordeaux J. POUYET, Laboratoire de Mécanique Physique, Bordeaux
Méthodes de calcul d'un composite : application au réseau cubique centre.p. 180 O. FASSI-FEHRI, LMM. Université Mohammed V. Rabat (Maroc) S. CHARIF D'OUAZZANE. Dpt d'électromécanique. ENIM. Rabat (Maoc)
Influence de l'humidité et de la température sur les caractéristiques mécaniques radiale et tangentielle à basse fréquence.....p. 190

M. ZIANI, LEMTA. Vandoeuvre-les-Nancy JM. GENEVAUX, LEMTA. Vandoeuvre-les-Nancy D. GUITARD, LRBB. Bordeaux

Etude rhéologique et granulométrique d'une émulsion d'huile de coupe
 II. Comportement complexe des émulsions d'huile de coupe.....p. 200
 L. BENALI, Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse
 R. GAUDU, Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse

J. POUYET, Laboratoire de Mécanique Physique. Bordeaux

## RHEOLOGIE IN SITU DES SAUCES DE COUCHAGE

F. VIDAL, Saint-Gobain Papier Bois Recherche (\*) D. EGURREGUY, J. POUYET, Laboratoire de Mécanique Physique, Bordeaux (\*\*)

#### Résumé

La connaissance du comportement des sauces de couchage à des taux de cisaillement très importants a conduit l'industrie papetière à se pencher sur des méthodes de mesures de plus en plus complexes. Cependant, les viscosimètres à capillaire et autres rhéomètres à buse de cisaillement [1] généralement utilisés ont tous le même défaut : une géométrie circulaire ne correspondant pas au système du couchage à lame. l'idée originale fût donc de transformer le racle d'acier en un rhéomètre intégré à la tête de couchage.

#### Abstract

The knowledge of coating color behaviour for very high shear rates  $(10^6 \text{ s}^{-1})$  has leaded paper industry to investigate in complex methods of measure. Meanwhile, generally used capillary viscosimeter and high-pressure homogenizers with shearing nozzle [1] have all the same defect : a circulary geometry which doesn't correspond to blade-coating. The original idea consists in changing the blade into a rheometer integrated at the coating head.

Le couchage est une des opérations de transformation du papier. Il a pour but de déposer un revêtement (sauce de couchage) à base d'eau, de polymère et de pigments sur la surface du papier brut (eau + fibres + charges) afin d'améliorer son état de surface et sa qualité d'impression. Lors du procédé du couchage, de nombreux problèmes peuvent apparaitre et entraver le bon déroulement de la production : mauvais état de surface, stries, casses...Au-delà de tous les problèmes pratiques que peut rencontrer l'industriel, l'élément essentiel pour pallier ces carences est la connaissance de la rhéologie des sauces de couchage. Le but de cette étude est donc de mettre en évidence le comportement rhéologique des sauces de couchage sur site industriel.

Dans un premier temps, une étude bibliographique nous a permis de modéliser le contact entre lame et sauce. Puis, à l'aide de jauges extensométriques, nous avons transformé la lame de couchage (qui permet de déposer une certaine quantité de sauce) en un capteur de force capable d'évaluer la zone de contact et la pression dynamique exerçée. Ce capteur ainsi confectionné nous a permis d'avoir accès aux contraintes et aux vitesses de cisaillement et ainsi de déterminer le comportement des sauces.

Ces paramètres rhéologiques ont été déterminés à partir de grandeurs mécaniques que l'on a pu mesurer lors d'essais industriels sur coucheuse pilote (vitesse machine, poids de couche, réglages).

(\*) Saint-Gobain Papier Bois Recherche 351, cours de la Libération, 33 405 Talence (\*\*) Laboratoire de Mécanique Physique, Université Bordeaux 1, URA CNRS 867 351, cours de la Libération, 33 405 Talence

#### 1.PRINCIPE DU COUCHAGE

Avant de passer au problème majeur de notre travail, voici representé sur la figure 1 le procédé du couchage.



Figure 1 : principe du couchage.

La sauce est déposée sur le rouleau pressant (film presse) par un rouleau applicateur ; la lame, préréglée par l'utilisateur, fléchit sous l'action de la sauce et permet ainsi d'obtenir le poids de couche escompté. La forme de la lame épouse parfaitement le profil du rouleau comme le montre la figure suivante.



La figure montre que la sauce est en contact avec la lame sur une surface de largeur s. Dans un premier temps, notre travail a été de déterminer cette zone de contact s et la pression dynamique exercée par la sauce sur la lame. Pour cela, nous avons envisagé différentes répartitions de la pression exercée sur la lame de couchage.

#### 2. MODELISATION DE LA REPARTITION DE PRESSION [2],[3]

Dans le but d'atteindre la contrainte de cisaillement exercée par l'écoulement de la sauce, nous calculons la pression exercée par le fluide sur la lame. Il nous est donc nécessaire dans un premier temps de modéliser la pression mécanique dûe à la flexion de celle-ci. Nous analysons ici quatre types de répartition de pression appliquée sur la lame : uniforme, triangulaire, hertzienne, non hertzienne.



Figure 3 : répartition de pression uniforme. P(x) = P0

Figure 4 : répartition de pression triangulaire.

$$P(x) = Po \frac{(x-1+s)}{s}$$

Figure 5 : répartition de pression lors d'un contact hertzien.

$$P(x) = Po[1 - (\frac{2x-21+s}{s})^2]^{\frac{1}{2}}$$

Figure 6 : répartition de pression lors d'un contact non hertzien.

$$E : module d'Young de la lame.s : surface de contact.R : rayon de courbure de la lame.l : longueur de la lame
$$E : module d'Young de la lame.R : rayon de courbure de la lame.h : hauteur de sauce.V: coefficient de PoissonP_0 : pression maximalex : abscisse$$$$

Cette répartition de pression (Figure 6) se rapproche plus de notre modèle que les précédentes. En effet, nous sommes dans le cas où l'épaisseur de sauce (15  $\mu$ m) est faible devant les dimensions de la surface de contact (2 mm).

En comparant ces différentes modélisations à des mesures qualitatives, nous avons conclu que la répartition de pression pour un contact non hertzien était celle qui se rapprochait le plus des mesures expérimentales (les surfaces de contact sont déterminées en mesurant les surfaces d'usure des lames et les pressions à l'aide d'un film Fuji Prescale). Par la suite, nous utiliserons les valeurs de pression moyenne et de surface de contact déduites de ce dernier modèle pour déterminer les contraintes de cisaillement.

Après avoir effectué cette étude comparative, nous nous sommes penchés sur la conception du capteur, c'est-à-dire sur la transformation de la lame applicatrice elle-même en un rhéomètre.

#### 3. MECANIQUE DE LA LAME DE COUCHAGE [4],[5]

Dans un premier temps, la lame est donc instrumentée à l'aide de jauges extensométriques. Ce capteur ainsi confectionné permet de déterminer la force dynamique par unité de largeur de laize qui est appliquée sur la lame dont la géométrie est décrite sur la figure suivante



1	•	longueur.	b	:	laize.
d	:	extension.	e	•	épaisseur.

#### 3.1 Instrumentation

Le capteur est constitué de la manière suivante :

3 jauges sont collées entre l'encastrement et l'appui simple.
3 jauges sont collées entre l'appui et l'extrémité libre du racle.

## 3.2.Méthode de mesure

Les déformations mesurées sur la lame permettent de calculer la surface de contact et la pression moyenne appliquée en utilisant des relations déduites de la statique des lames. Nous obtenons ainsi la déformation des trois jauges situées entre l'encastrement et l'appui simple (1):

$$\epsilon = \frac{3F(d - \frac{3s}{8})e'(1 - v^2)}{Ebe^3} [\frac{3x}{(1 - d)} - 1]$$

et pour la déformation des trois jauges situées entre l'appui et l'extrémité libre (2) :

$$\varepsilon = \frac{6F(1-\frac{3s}{8}-x)(1-v^2) e'}{Ebe^3}$$

£ : déformation. F : force mécanique par unité de laize. e : épaisseur de la lame. x : abscisse des jauges. s : largeur de la surface de contact. E : module d'Young. V : coefficient de Poisson.

e': e' = e + épaisseur de colle.

Un pont de jauges mesure la déformation de chaque jauge ; nous pouvons alors tracer les deux droites  $\varepsilon = f(x)$  pour les deux parties de la lame et ce, pour chaque essai effectué. Les pentes des deux droites obtenues comparées aux équations (1) et (2) permettent d'atteindre F (force appliquée à la lame) et s (largeur de la surface de contact), c'est-à-dire nos deux inconnues.

4 ETUDE DU COMPORTEMENT RHEOLOGIQUE DES SAUCES DE COUCHAGE [6]

Après cette étude purement mécanique de la lame de couchage, nous nous sommes attachés à décrire un modèle sur l'écoulement de la sauce de couchage entre la lame et le rouleau. Le but était de relier les paramètres rhéologiques (vitesse et contrainte de cisaillement) aux valeurs accessibles (force et surface de contact).



τ : contrainte de cisaillement. s : surface de contact. h : dépôt. U : Vitesse du rouleau.

La modélisation sur la pression moyenne étudiée précédemment associée aux mesures faites à l'aide du capteur de force permet la détermination de la pression hydrodynamique appliquée à la lame et de la viscosité apparente du fluide. Pour ce faire, nous appliquons les relations tirées de la mécanique des fluides :

- équation d'état.
- équation de l'énergie.
- équation de continuité.
- équations de Navier-Stockes.

Les conditions aux limites sont les suivantes :

- la vitesse de l'écoulement est nulle au niveau de la lame (condition d'adhérence à la paroi).
- au niveau de la surface du papier, la vitesse de la sauce est prise égale à la vitesse du rouleau (U).

Les hypothèses proposées sont :

- l'écoulement est laminaire, stationnaire, établi et plan.
- les forces de pesanteur sont négligées.
- le fluide est incompressible :  $\rho$  est une constante.
- la température de la sauce est constante.
- -. l'équation de continuité montre que la seule composante de vitesse u (v=0, w=0) ne dépend que de y .:



- la première équation de Navier-Stockes donne pour un fluide newtonien:  $\frac{\partial P}{\partial x} = \frac{\partial \tau}{\partial y} = \eta \frac{\partial^2 u}{\partial y^2}$ 

On considère que la perte de charge linéique est constante sous la lame et égale à AP/s du fait de l'incompressibilité de la sauce (AP étant égale à la pression mesurée par le capteur et s étant la surface de contact). A partir de la pression moyenne, on peut déterminer la contrainte de cisaillement au niveau de la lame.

Le profil des vitesses est alors tiré de l'équation de Navier-Stockes et des conditions aux limites :

$$u = \frac{U}{h}y - \frac{\partial P}{\partial x} \frac{(hy - y^2)}{2\eta}$$

La contrainte de cisaillement, fonction de la pression du fluide à la paroi est alors :

$$\tau = \frac{\Delta P h}{s} = \frac{P_{dyn}}{s} h$$

h.: hauteur de sauce humide après le passage sous la lame.

s : surface de contact.

P<sub>dyn</sub> : pression mesurée par le capteur en dynamique.

Si nous faisons l'hypothèse que la contrainte de cisaillement est constante le long de la surface de contact, la pseudo-vitesse de cisaillement, en fonction du débit volumique, s'écrit:

$$D = \frac{3Q}{bh^2} = \frac{6U}{5h}$$

Q = 2Ubh/5 (débit volumique). b : laize. U : vitesse de déroulement du papier.

Le débit est calculé directement sous la lame : nous ne considérons donc pas la sauce qui est rejetée (qui ne passe pas sous la lame).

Connaissant la contrainte de cisaillement et le taux de cisaillement, nous pouvons déterminer la viscosité apparente de la sauce. En introduisant le dépôt de sauce dans la formule, on arrive à :

n	de	5	ΔΡ	h <sup>2</sup>	1.60	5	ΔP	$d_e^2$
1	_	6	U	S	-	6	Us	$p^{2}s^{2}$

 $\rho$ : masse volumique de la sauce.  $d_e$ : dépôt (g/m2).

S : pourcentage de matière sèche.

#### 4. ASPECT EXPERIMENTAL

Dans le but d'utiliser les relations précédentes, deux types d'essais sont réalisés :

- Une variation de la vitesse machine entraine une variation du débit volumique sous la lame et ainsi de la vitesse de cisaillement.(essai 1)
  - Une variation de la pression mécanique de la lame joue sur la contrainte de cisaillement. (essai 2)

Ces essais nous permettent de connaître le comportement rhéologique de la sauce utilisée . Pour cela, nous traçons le rhéogramme suivant  $\eta$  = f (log  $\dot{\gamma}$ ).



#### Figure 12 : Rhéogramme de la sauce de couchage $n = f(\log_{\gamma} \gamma)$ .

Ce rhéogramme montre que la sauce utilisée pour nos essais se comporte comme un fluide rhéofluidifiant. Les deux courbes tracées se recoupent bien pour des valeurs de vitesse de cisaillement données aux erreurs expérimentales près. Par contre, les viscosités mesurées paraissent faibles par rapport aux mesures réalisées sur la même sauce avec le rhéomètre à capillaire du centre St-GOBAIN Papier-Bois Recherche de Talence [7]. Ces variations proviennent des conditions d'utilisation différentes : la température de la sauce pour les essais sur le rhéomètre à capillaire était de 26° et de près de 40° pour nos essais sur la coucheuse pilote.

#### Correction sur la vitesse de cisaillement à la paroi :

Lorsque la sauce est newtonienne, D représente la vitesse de cisaillement réelle. Or, dans le cas du procédé du couchage, les sauces sont généralement rhéofluidifiantes ou dilatantes (non newtoniennes) : nous allons donc appliquer une correction semblable à celle due à RABINOWITSCH [8] mais pour un profil de vitesses qui est celui entre lame et rouleau afin de déterminer la vraie vitesse de cisaillement à la paroi  $\dot{Y}$ . Nous obtenons ainsi :



n : indice d'écoulement de la sauce. n est la pente de la courbe log  $\tau = f(\log D)$ .

Cette relation est différente de celle obtenue pour un rhéomètre à capillaire où la vitesse de cisaillement corrigée se met sous la forme :

·	-	3n	+	1	D
1	0.0	4	1n	031	-

de la sauce utilisée . Pour cels, n'us tracons le rhéorrann

Dans les deux cas, la viscosité vraie du fluide est déduite de la relation :  $\eta = \frac{\tau}{i}$ 

CONCLUSION

La modélisation envisagée pour le problème du couchage (lame-papier) et la réalisation d'un capteur extensométrique nous ont permis de déterminer les pressions dynamiques et les zones de contact. Par ailleurs, l'étude effectuée sur l'écoulement de la sauce entre lame et rouleau nous a permis de relier les grandeurs rhéologiques  $\tau$  et  $\dot{Y}$  aux variables accessibles  $P_{dyn}$  (pression dynamique mesurée) et Q (débit volumique) et d'étudier ainsi le comportement des sauces industrielles. Même si en valeur absolue les viscosités peuvent être discutées puisque determinées à partir d'une modélisation de pression, cette approche donne une bonne idée de la forme de la courbe  $\eta = f (\log \dot{Y})$ . De plus, les résultats concernant les surfaces de contact et les pressions dynamiques correspondent aux mesures effectuées sur machine et valident le choix du modèle utilisé pour le contact lame-papier.

Nos résultats ont été comparés à ceux déduits de l'écoulement dans un rhéomètre à capillaire : cette analogie laisse apparaître une certaine différence au niveau de l'ordre de grandeur des viscosités mesurées mais rend compte du même comportement rhéologique des sauces de couchage utilisées (rhéofluidifiant). Les variations sont dues à des conditions d'utilisation des sauces différentes : en effet, les mesures ont été prises pour une température de 25° avec le capillaire alors qu'en application industrielle, la sauce est entre 35° et 40°. Cette augmentation de température peut expliquer la différence de viscosité entre les deux mesures.

Mots clés: Couchage à lame - capteur extensométrique - modélisation de pression non hertzienne - rhéomètre - correction de RABINOWITSCH.

#### Références bibliographiques:

[1] J.RHAMTHUN, G.WALPOTT, D.RAHLWES - Détermination du comportement des sauces de couchage dans le domaine des vitesses élevées à l'aide de nouvelles méthodes de laboratoire. CTP traduction 10980 -Woohbl.papierfabr.-V.116- n°13, p 542-546. Juillet 1988.

[2] K.L. JOHNSON - Contact mechanics. Cambridge University Press, 1985.

[3] B.MICHAU - Effet du champ de contraintes sur la fatigue des surfaces dans les contacts hertziens rugueux. Thèse pour obtenir le titre de Docteur - Ingénieur à l'Université Claude Bernard - Lyon. Novembre 1974.

[4] J.POUYET, S.DUBROCA, F.VIDAL - Etude mécanique d'une tête de couchage S-BLADE. Revue ATIP n°9, Novembre, 1989.

[5] F.VIDAL - Rhéologie et hydrodynamique du couchage à lame. Rapport de DEA de Mécanique. Laboratoire de Mécanique Physique. Juillet, 1989. BORDEAUX.

[6] L.L.TURAI - Analysis of the Blade Coating Process. Tappi.Aout 1971.Vol 54, n°8.

[7] J.P.FAURE - Optimisation d'un rhéomètre à capillaire. Rapport de DEA de Mécanique. Laboratoire de Mécanique Physique. Juillet, 1991. BORDEAUX.

[8] B.RABINOWITSCH - Z.Phys.Chem.1,145 A.1929.

Les Cahiers de Rhéologie Vol IX, Numéro 4, décembre 1991

### METHODES DE CALCUL D'UN COMPOSITE : APPLICATION AU RESEAU CUBIQUE CENTRE

#### FASSI-FEHRI O., CHARIF D'OUAZZANE S.\*

L.M.M., Faculté des sciences, Université Mohammed V B.P. 1014 Rabat - Maroc \* Dep<sup>1</sup> d'Eléctromécanique, Ecole Nationale de l'Industrie Minérale B.P. 753 Rabat - Maroc

#### Résumé

Deux méthodes principales sont actuellement proposées pour la détermination des caractéristiques élastiques linéaires équivalentes d'un matériau composite constitué d'une structure périodique: la méthode self-consistent et la méthode d'homogénéïsation. Une application de ces deux méthodes à une structure périodique constituée de microbilles noyées dans une matrice et disposées selon un réseau cubique centré nous a permis de dégager les remarques suivantes:

- pour des fractions volumiques des inclusions dans la matrice inférieures à 0.3, les deux méthodes sont équivalentes à moins de 15% près,

- au delà de 0.3, les deux méthodes divergent au fur et à mesure que la fraction volumique augmente.

#### Abstract

Two main methods are now proposed for the determination of the equivalent linear elastic caracteristic of a composite material constituated of a periodic structure: the self-consistent method and the homogeneïsation method. An application of those two methods to a periodic structure composed of microball immerged in a matrix and set according to a c. c. latice has lead to the following notices:

- for volumic fractions of the inclusions in the matrix inferior to 0.3, the two methods are equivalent at about les than 15%,

- beyond 0.3, the two methods differe as the volumic fraction increase.

#### INTRODUCTION

D'une manière générale, l'homogénéïsation d'un matériau composite consiste à construire des lois de comportement macroscopiques à partir d'informations sur la microstructure et des lois de comportement des inclusions et de la matrice constituant le matériau hétérogène. Plusieures méthodes de calcul sont ainsi proposées pour résoudre le problème de la détermination des constantes élastiques équivalentes du matériau composite. Les modèles simples de Voigt [1] et de Reuss [2] ne représentent que les bornes supérieures et inférieures des constantes élastiques équivalentes (Hill [3]). Ils ne font intervenir que le taux de remplissage des renforts dans la matrice et leurs comportements élastiques respectifs. Pour tenir compte de la répartition des inclusions dans le composite, deux méthodes essentielles sont actuellement utilisées, la méthode self-consistent proposée par Eshelby [4] dans le cas des polycristaux et développée par Kröner [5] puis par Berveiller et Fassi-Fehri [6,7,8] dans le cas des matériaux composites, puis la méthode d'homogénéïsation proposée par Hashin et Shtrikman [9] et développée par Duvaut [10] et Léné [12].

La comparaison de ces deux méthodes sur un cas particulier de matériau composite étudié par Fassi-Fehri dans son étude sur le shéma self-consistent à N-sites [7] nous montre que pour de faibles taux de remplissage des inclusions dans la matrice, les deux méthodes sont équivalentes. Par contre, plus le taux de remplissage augmente et devient important et plus les deux méthodes divergent.

#### LA METHODE SELF-CONSISTENT A N-SITES

La méthode self-consistent à N-sites est basée sur la méthode self-consistent à 1 site. Elle consiste à calculer les coefficients élastiques équivalents d'un matériau composite contenant des inclusions ellipsoïdales en considérant l'interaction entre une cellule hétérogène élémentaire et le milieu homogénéïsé équivalent recherché. La cellule hétérogène élémentaire est constituée non pas par une inclusion unique, mais par un ensemble d'inclusions représentatif à la fois de l'anisotropie géométrique ( forme des inclusions ) et mécanique ( répartition spaciale ). La présence des autres inclusions est prise en compte par le fait que le milieu homogène choisi est le milieu homogène équivalent recherché.

Les constantes élastiques équivalentes s'écrivent:

 $C^{e}_{ijkl} = C^{M}_{ijkl} + f.(C^{I}_{ijmn} - C^{M}_{ijmn}).A^{I}_{mnkl}$ 

où f est la fraction volumique des inclusions dans la matrice ( $f = V_I/V_{tot}$ ), C<sup>I</sup> et C<sup>M</sup> sont respectivement les constantes élastiques des inclusions et de la matrice, et A<sup>I</sup> est le tenseur de localisation qui s'écrit:

$$A^{I}_{mnkl} = \{ \delta_{mk} \cdot \delta_{nl} + \frac{1}{V_{I}} \cdot \Delta C^{I}_{ijmn} \cdot (T^{II}_{klij} + \sum_{J} T^{IJ}_{klij}) \}^{-1}$$

- l'exposant I représente une inclusion du milieu hétérogène, la sommation sur l'indice J représente l'influence des premières inclusions voisines de I,

- VI est le volume de l'inclusion I.

- les tenseurs T<sup>II</sup> et T<sup>IJ</sup> sont fonctions de la forme des inclusions, de leur répartition spaciale et des constantes élastiques du milieu homogénéïsé équivalent [7].



Interactions du milieu sur l'inclusion I

La détermination du tenseur de localisation  $A^{I}$  est dûe à l'approche faite par Muschovidis et Mura [11] et qui consiste à remplacer le champ de déformations total dans les inclusions par sa valeur moyenne sur le volume V<sub>I</sub> des inclusions.

#### LA METHODE D'HOMOGENEISATION

La méthode d'homogénéïsation suppose la périodicité de la structure. Elle consiste à associer à chaque point x du matériau hétérogène un volume représentatif de la géométrie des inclusions et de leur répartition spaciale, c'est la cellule de base Y.

Il apparaît ainsi deux échelles, l'une macroscopique liée au matériau composite, et l'autre microscopique liée à la cellule de base Y.

A l'échelle macroscopique, si le matériau est soumis à des efforts volumiques imposés  $\{f_i\}$ , des efforts surfaciques  $\{F_i\}$  sur une partie  $\partial V_F$  de sa frontière  $\partial V$ , et à un déplacement u imposé sur le reste de la frontière, le problème d'élastostatique à résoudre est:



On effectue alors un développement asymptotique à double échelle (x, y) du champ de déplacement. u(x) peut s'écrire de la manière suivante:

$$u(x) = u^{0}(x,y) + e.u^{1}(x,y) + e^{2}.u^{2}(x,y) + ... /y = x/e$$
(2)

les fonctions un(x,y) sont Y-périodiques par rapport à la variable y,

e est une quantité très faible devant l'unité mettant en rapport les dimensions de la cellule de base aux dimensions de la structure.

En substituant (2) dans le problème (1) et en identifiant les différentes puissances de e, on aboutit au problème suivant [10]:

 $\begin{cases} \operatorname{div}_y \sigma^1 = 0. \\ \sigma^1 = C(y). \{ \epsilon^Y(u^1) + \epsilon^X(u^0) \} \\ u^1 \text{ Y-périodique en y, } \sigma^1(n) \text{ Y-antipériodique en y} \end{cases}$ 

Par linéarité du problème, on cherche une solution sous la forme:

$$\begin{cases} u^{1} = -\chi^{kl}(y).\varepsilon^{X}_{kl}(u^{0}) \\ \sigma^{1} = S^{kl}(y).\varepsilon^{X}_{kl}(u^{0}) \end{cases}$$

les nouvelles inconnues ( $\chi^{kl}$ ,  $S^{kl}$ ) sont alors solutions du problème ( $P^{kl}$ ) posé sur la cellule de base Y:

183

$$\begin{cases} S^{kl}_{ij,j} = 0. & \text{dans Y} \\ (P^{kl}) \begin{cases} S^{kl}_{ij} = C_{ijkl}(y) - C_{ijpq}(y).\epsilon^{Y}_{pq}(\chi kl) & \text{dans Y} \\ \chi kl & Y\text{-périodique et } S^{kl}(u) & Y\text{-antipériodique en y} \end{cases}$$

Les coefficients homogénéïsés sont les coefficients qui relient la moyenne sur la cellule de base Y de la contrainte  $\sigma^1$  à la déformation  $\epsilon^{X}(u^0)$  [10] :

$$<\sigma^{1}_{ij}> = \varepsilon^{X}_{kl}(u^{o})$$

d'où:

$$C^{e}_{ijkl} = \langle S^{kl}_{ij} \rangle = \langle C_{ijkl} \rangle - \langle C_{ijpq} \cdot \varepsilon^{Y}_{pq}(\chi^{kl}) \rangle$$

Les coefficients C<sup>e</sup> apparaissent comme étant la somme de deux termes, un premier terme qui est la moyenne sur la cellule de base Y des coefficients élastiques correspondant à chacun des constituants, et d'un terme correcteur.

#### APPLICATION A UN RESEAU PERIODIQUE CUBIQUE CENTRE

Nous considérons un matériau composite contenant des inclusions sphériques de même rayon r qui constituent un réseau cubique centré. Les inclusions et la matrice sont supposées isotropes. Le choix d'un arrangement cubique centré nous permettra d'obtenir un taux de remplissage en microbilles supérieur à 60% ( 68% ).



Fig. 1: Le réseau cubique centré

Les valeurs des constantes élastiques C<sup>I</sup> et C<sup>M</sup> des inclusions et de la matrice sont données par les constantes de Lamé suivantes:

pour l'inclusion	$\mu^{\rm I} = 0.15 \text{ x } 10^{12} \text{ N/m}^2$
	$\lambda^{\rm I} = 0.10 \times 10^{12}  \text{N/m}^2$
pour la matrice	$\mu^{\rm M} = 0.15 \times 10^{10}  \rm N/m^2$
	$\lambda^{\rm M} = 0.10 \times 10^{10}  {\rm N/m^2}$

On pourra utiliser également les couples (  $E^{I}$ ,  $v^{I}$ ) et ( $E^{M}$ ,  $v^{M}$ ) représentant respectivement les modules d'Young et les coefficients de Poisson des inclusions et de la matrice. On rapelle que:

$$\lambda = \frac{E.v}{(1+v).(1-2.v)}$$
 et  $\mu = \frac{E}{2.(1+v)}$ 

Les modules d'Young sont alors les suivants:

$$E^{I} = 0.36 \times 10^{12} \text{ N/m}^{2}$$
 et  $E^{M} = 0.36 \times 10^{10} \text{ N/m}^{2}$ 

Les coefficients de Poisson des inclusions et de la matrice sont égaux:

$$v^{I} = v^{M} = 0.2$$

On calcule les valeurs des coefficients d'élasticité équivalents C<sup>e</sup> pour différentes fractions volumiques f des inclusions dans la matrice telles que f soit inférieure à 0.68, condition de non interférence des inclusions:

$$\mathbf{f} = 0.1 - 0.2 - 0.3 - 0.4 - 0.5 - 0.6$$

La cellule de base que nous avons retenue pour modéliser le milieu est représentée sur la figure ci-dessous:



Fig. 2: La cellule de base Y

Compte-tenu des symétries géométriques de la cellule de base et des hypothèses d'isotropie faites sur ses constituants, on déduit que la cellule présente à la fois les plans médiateurs et les trois plans diagonaux comme plans de symétrie matérielle. Dans ces conditions, on montre [10] que l'on peut ramener les calculs sur le huitième de cellule (figure 3).





La génération automatique du maillage du huitième de la cellule de base obtenue pour une fraction volumique f = 0.1 est représentée sur la figure 4. La figure 5 représente le même maillage montrant l'empreinte des inclusions dans la matrice. La figure 6 représente une reconstitution du réseau cubique centré sans inclusions et la figure 7 la position des inclusions dans la matrice.

Remarquons que chaque fraction volumique (f = 0.1 à f = 0.6) nécessite un maillage différent. Il existe ainsi six maillages du huitième du réseau cubique. Tous les maillages ainsi que les calculs de structures par éléments finis nécessaires à l'application de la méthode d'homogénéïsation ont été effectués à l'INRIA sur le code de calcul MODULEF [11]. Les coefficients homogénéïsés sont le résultat du programme COEFHOM [12].



Les résultats obtenus pour le module d'Young et le module de cisaillement équivalents  $E^e$  et G<sup>e</sup> par les méthodes self-consistent à N-sites et la méthode d'homogénéïsation, pour les différentes fractions volumiques (f = 0.1 à 0.6), sont résumés dans les tableaux I et II. Ces tableaux sont complétés par les résultats du modèle de Reuss, du shéma self-consistent à 1 site et du modèle de Voigt.

méthodes f	0.	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6
Reuss	0.36	0.398	0.448	0.511	0.595	0.713	0.885
1 site	0.36	0.446	0.590	0.857	1.50	3.60	8.60
N sites	0.36	0.438	0.547	0.762	1.24	2.58	6.70
homog.	0.36	0.517	0.680	0.867	1.04	1.33	1.81
Voigt	0.36	3.924	7.488	11.05	14.61	18.18	21.74

tableau I: Module d'Young E ( x 10<sup>10</sup> N/m<sup>2</sup> ) par différentes méthodes de calcul ( réseau cubique centré )

méthodes f	0.	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6
Reuss	0.15	0.166	0.187	0.213	0.248	0.297	0.369
1 site	0.15	0.186	0.246	0.357	0.625	1.50	3.59
N sites	0.15	0.186	0.258	0.406	0.790	1.77	4.28
homog.	0.15	0.218	0.291	0.380	0.472	0.632	0.920
Voigt	0.15	1.635	3.12	4.605	6.09	7.57	9.06

tableau II: Module de cisaillement G ( x 10<sup>10</sup> N/m<sup>2</sup> ) par différentes méthodes de calcul ( réseau cubique centré ) Les figures 8 et 9 représentent respectivement l'évolution du module d'Young E<sup>e</sup> et du module de cisaillement G<sup>e</sup> en fonction de la fraction volumique f par les différentes méthodes de calcul.



Fig. 8: Variation du module d'Young E par différentes méthodes de calcul



différentes méthodes de calcul

#### CONCLUSION

Par comparaison des valeurs des constantes élastiques obtenues par les différentes méthodes de calcul, nous remarquons que:

- les modèles de Voigt et de Reuss constituent des limites extrèmes, l'une supérieure, l'autre inférieure,

- pour des valeurs relativement faibles des fractions volumiques f des inclusions dans la matrice (f < 0.3), la méthode d'homogénéïsation est équivalente à moins de 15% près à la méthode self-consistent. Au delà, une nette divergence des deux méthodes se dégage au fur et à mesure que f augmente.

Seule une expérimentation dans laquelle la fraction volumique des microbilles dans la matrice sera élevée nous permettra de comparer les résultats donnés par les deux méthodes, selfconsistent et d'homogénéïsation, avec les résultats de l'expérience.

Actuellement, la méthode self-consistent à N-sites a pour avantage, pour des fractions volumiques inférieures à 0.3, d'être simple à utiliser et permet, contrairement à la méthode d'homogénéïsation, de traiter des problèmes de structures non périodiques tout en tenant compte de la répartition spaciale et géométrique des inclusions.

#### mots clé

matériaux composites - homogénéïsation - shéma self-consistent - comparaison sur r.c.c. -

#### Bibliographie

- W. Voigt Wied. Ann. Mech. Vol. 10 226 (1930) [1]
- A. Reuss Math. Mech. Vol. 9 (1929) [2]
- [3] R. Hill Proc. Roy. Soc. A 65 (1950)
- J. D. Eshelby Prog. in Solid Mec. Amsterdam (1961) E. Kröner Z. Phys. 151,504 (1958) [4]
- [5]
- M. Berveiller A. Zaoui 15ème C.G.R RNPC Paris (1980) [6]
- O. Fassi-Fehri Thèse d'Etat Metz (1985) [7]
- [8]
- O. Fassi-Fehri & Al. Int. J. Engng. Sc. Vol. 27 N°5 Z. Hashim et S. Shtrikman J. Mech. Phys. Solids 11 (1963) [9]
- G. Duvaut Theoritical and Applied Mech. (1976) [10]
- Z. A. Moschovidis et T. Mura J. Applied Mech. (1975) [11]
- [12] F. Lene Thèse d'Etat Paris VI (1984)
- D. Begis et P. Perronet Présentation du club Modulef INRIA (1980) [13]
- A. Ben Hamida Thèse de l'unversité Paris VI (1989) [14]

## INFLUENCE DE L'HUMIDITE ET DE LA TEMPERATURE SUR LES CARACTERISTIQUES MECANIQUES RADIALE ET TANGENTIELLE A BASSE FREQUENCE

M. ZIANI,	Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée. LEMTA - CNRS UREA 875. 2 Avenue de la forêt de Haye.
	BP 160 - 54501 Vandoeuvre-les-Nancy Cédex 5 0000 al eb tes il molte
JM. GENEVAUX,	Laboratoire d'Energétique et de Mécanique Théorique et Appliquée.
	LEMTA - CNRS UREA 875. 2 Avenue de la forêt de Haye.
	BP 160 - 54501 Vandoeuvre-les-Nancy Cédex
D. GUITARD,	Laboratoire de Rhéologie du Bois de Bordeaux.
DEGUNE	Université Bordeaux 1. IUT A. 355, Avenue de la Libération.
RESUME :	33 405 Talence Cédex

Les sollicitations d'ordre sismique sont composées de basses fréquences très énergétiques. Pour dimensionner une structure, il est donc important de connaître la part d'énergie qui peut être dissipée dans le matériau, par exemple le bois. Une étude est faite sur le comportement mécanique radial et tangentiel d'éprouvettes cubiques (50 mm d'arrête) de sapin, d'épicéa et de peuplier, pour des fréquences de 0,005 à 0,05Hz, des températures de 20 à 70 °C et des taux d'humidité variant de 0% à l'état vert. Dans la plage d'humidité comprise entre 6 et 22%, une comparaison de nos résultats avec les modules élastiques calculés à partir des modèles proposés par la littérature est

faite. Le suivi de tg $(\delta)$  nous permet de confirmer l'existence des transitions  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$  par rapport aux transitions repérées par d'autres auteurs. Nous comparons les caractéristiques mécaniques obtenues, d'une part durant le séchage d'un bois vert issu d'un arbre fraîchement abattu, d'autre part durant la réhumidification.

Mots clés : module dynamique, frottement interne, température, humidité, basse fréquence, bois vert.

#### INTRODUCTION:

Le bois est un composite naturel constitué principalement de trois polymères: la lignine, les hémicelluloses et la cellulose. La variation de la température et de l'humidité dans ce matériau entraîne une variation de son comportement physico-mécanique. Cette variation est anisotrope et dépend des directions privilégiées du bois [KOLLMANN 1968, GUITARD 1987, TAHANI 1988,...]. L'augmentation de ces deux paramètres entraîne la diminution des modules élastiques et dynamiques [BECKER-NOACK 1968, LAUNAY-GILLETA 1988, GUERRIN 1990, ZIANI 1991,...], l'augmentation du fluage [GENEVAUX 1989] et l'apparition des maxima du frottement interne [SALMEN 1984, GUERRIN 1990, ZIANI 1990, ZIANI 1991,...] et de la vitesse de fluage [GENEVAUX 1989]. Ces maxima correspondent aux transitions de différents polymères constitutifs du bois. Les caractéristiques mécaniques sont influencées aussi par la fréquence de sollicitation [SADOH 1981, SALMEN 1984, GUERRIN 1990...].

L'objectif de cet article est de dégager l'influence de l'humidité et de la température sur les caractéristiques mécaniques radiale et tangentielle aux basses fréquences, de comparer les caractéristiques avec les modèles proposés par la littérature. L'influence des fortes humidités, pour le cas du bois vert de l'arbre et du bois vert réhumidifié, sera aussi traitée.

#### MATERIEL ET METHODE:

La méthode utilisée est l'essai de compression sur cube unique. Les essais sont effectués sur des cubes d'arrête 50 mm environ taillés suivant les trois directions principales du bois (Radiale, Tangentielle et Longitudinale). La machine d'essai utilisée est celle de compression mise au point par SEICHEPINE (1980). L'effort est appliqué au cube suivant les directions radiale et tangentielle à l'aide d'un vérin M.T.S. à asservissement électo-hydraulique. Il est de la forme :

$$F(t) = F_0 + \frac{\Delta F}{2} \sin(wt)$$

Le déplacement résultant est déphasé d'un angle  $\delta$  (appelé angle de perte) par rapport à l'effort. Il est de la forme :

$$d(t) = d_0 + \frac{\Delta d}{2} \sin (wt - \delta)$$

avec  $w = 2\pi N$  N étant la fréquence de sollicitation. Le tracé de l'effort en fonction du déplacement, après accommodation, représente une ellipse dont l'aire correspond à l'énergie dissipée  $\Delta W$  au cours d'un cycle. Le module dynamique est déterminé de la façon suivante :

$$E_i = \frac{K_i L_i}{L_j L_k}$$
 avec i,j et k = 1, 2, 3

avec  $K_i$ : rigidité dynamique déterminée à partir de la pente  $F_i = f(d_i)$ ;  $L_i$ ,  $L_j$  et  $L_k$  sont les côtes du cube. imensionner une structure, il

Le frottement est calculé comme suit:

$$tg(\delta) = \frac{1}{2\pi} \frac{\Delta W}{We}$$

avec We : variation d'énergie au cours d'un cycle. Elle est estimée par l'aire du triangle de tg(8) nous permet de com (figure1).

Celui-ci est la somme de deux frottements, interne et externe. En effet, l'effet de poisson implique à la surface du cube en contact avec la mâchoire, un glissement dans la direction radiale (ou tangentielle). Ce niveau de frottement externe, difficilement évaluable, sera considéré constant avec la fréquence, la température et l'humidité



figure 1 : allure de la courbe effort en fonction du déplacement.

Le conditionnement des éprouvettes en température a été effectué dans une enceinte climatique. Celui en humidité (durant le séchage du bois vert) dans des enceintes contenant des solutions salines à une température voisine de 20°C. Afin de préserver les éprouvettes des pertes d'humidité lors des essais, ces dernières ont été recouvertes par une feuille d'aluminium.

#### **RESULTATS ET DISCUSSION:**

Les essais de compression à différentes températures (20-70°C) sont menés sur du peuplier suivant la direction tangentielle. Ceux en humidité variant de l'état vert à l'état anhydre sont menés sur de l'épicéa et du sapin dans les directions radiale et tangentielle.

#### Influence de la température :

Les figures 2 et 3 représentent respectivement l'évolution des modules dynamiques et des frottements internes, issus des éprouvettes de peuplier dans la direction tangentielle, en fonction de la température (20-70°C), pour un taux d'humidité de 12%, pour les trois fréquences de sollicitations (0.005, 0.01 et 0.05 Hz). Il apparaît que les modules dynamiques chutent de 40% environ pour des températures allant de 20 à 70°C.



figure 2 : évolution des rigidités dynamiques en fonction de la température.

Pour les frottements internes, si on ne tient pas compte du niveau de frottement interne mais des évolutions en température des réponses aux trois fréquences, on remarque (figure 4) que le comportement est observé entre deux transitions. La première est proche de 70°C pour la fréquence 0.005 Hz, l'autre en dessous de 10°C pour 0.05Hz. L'identification de ces dernières sur les espaces transitionnels [GENEVAUX 1989, GUERRIN 1990] montre que la première correspond à la transition  $\alpha_1$  et la seconde à  $\alpha_2$ .

Les figures 5 et 6 illustrent l'allure des modules dynamiques radiaux et tangentiels en inection de l'humidité. L'analyre de ces courbes montre que les modules dynamiques augmentent égèrement pour des humidités intérieures à 10%, passent par un maximum au volsinage de 10% fiminment quasi-linéairement jusqu'à 24% environ puis au delà de 30% se stabilisent à une voleur catiquement constante.

Dans le domaine hygroscopique et plus precisement pour des numatites comprises entre 10% et le point de saturation des fibres, les molécules d'eau catraînent la rupture des ponts d'hydrogène liant les chaînes cellulosiques, ce qui favorite la mobilisation de ces demières d'où l'affaiblissement de la régidité du matériau. Pour des humidités inférieures à 10%, la baisse de l'humidité implique une diminution des modules. Ceci sernit explicable par l'apparition de microfissures au niveau de 15 paroi cellulaire ou par la détorption de leau des groupes hydroxyles des régions amorphes du bois [GUEREIN 1990].





figure 4 : superposition des courbes de frottements internes pour les trois fréquences (H=12%).

#### Influence de l'humidité

Les figures 5 et 6 illustrent l'allure des modules dynamiques radiaux et tangentiels en fonction de l'humidité. L'analyse de ces courbes montre que les modules dynamiques augmentent légèrement pour des humidités inférieures à 10%, passent par un maximum au voisinage de 10%, diminuent quasi-linéairement jusqu'à 24% environ puis au delà de 30% se stabilisent à une valeur pratiquement constante.

Dans le domaine hygroscopique et plus précisément pour des humidités comprises entre 10% et le point de saturation des fibres, les molécules d'eau entraînent la rupture des ponts d'hydrogène liant les chaînes cellulosiques, ce qui favorise la mobilisation de ces dernières d'où l'affaiblissement de la rigidité du matériau. Pour des humidités inférieures à 10%, la baisse de l'humidité implique une diminution des modules. Ceci serait explicable par l'apparition de microfissures au niveau de la paroi cellulaire ou par la désorption de l'eau des groupes hydroxyles des régions amorphes du bois [GUERRIN 1990].



figure 5 : évolution des modules dynamiques radial et tangentiel en fonction de l'humidité pour l'épicéa.



figure 6 : évolution des modules dynamiques radial et tangentiel en fonction de l'humidité pour le sapin.

Concernant l'influence de l'humidité sur les modules dans le domaine hygroscopique et dans une plage comprise entre 6 et 22%, la littérature [PALKA 1973, GUITARD 1987, FOURNIER 1989] propose des modèles linéaires. Les coefficients de correction donnés par les trois auteurs sont très proches. Les figures suivantes présentent la comparaison de nos résultats avec ceux calculés à partir des modèles GUITARD. Ces modèles sont en accord avec nos résultats dans une plage d'humidité comprise entre 10 et 22%.(figures 7 et 8). Au dessous de cette plage, nous avons observé une différence car la décroissance des modules avec la diminution de l'humidité n'était pas prise en compte par les auteurs.



figure 7 : comparaison des modules mesurés et calculés à partir des modèles GUITARD.



figure 8 : comparaison des modules mesurés et calculés à partir des modèles GUITARD.

L'évolution des frottements internes radiaux et tangentiels (figure 9) obtenus pour les fréquences de sollicitations 0.05 et 0.01 Hz augmentent jusqu'au P.S.F : on s'approche de la transition  $\alpha_1$ . Au delà du P.S.F, il y a une stabilisation de tg( $\delta$ ). Le maximum de la transition n'est donc pas visible. Néanmoins pour la fréquence 0.01Hz, un léger maximum à 10% d'humidité est observable.



figure 9 : évolution des frottements internes tangentiels en fonction de l'humidité pour l'épicéa.

#### Comparaison du bois vert et du bois réhumidifié :

La comparaison des comportements mécaniques du bois vert issu de l'arbre et de celui réhumidifié (figures 10 et 11), montre que dans le domaine hygroscopique il n'y a aucune différence significative. Par contre au dessus du P.S.F il y a une grande différence entre les modules radiaux et tangentiels, ce qui avait été souligné par THIBAUT (1988). Cette différence pourrait être due à la différence des profils d'humidités dans l'éprouvette qui ne sont pas les mêmes dans les deux cas [ZIANI 1991].









La comparaison des comportements mécaniques du bois vert issu de l'arbre et de celui réformidifié (figures 10 et 11), montre que dans le domaine hygroscopique il n'y a aucune différence significative. Par contre au dessus du P.S.F il y a une grande différence entre les modules radiaux et tangentiols, ce qui avait été souligné par THIBAUT (1988). Cette différence pourrait être due à la différence des profils d'numidités dans l'éprouvette qui ne sont pas les mêmes dans les deux cas [ ZIANI 1994].



figure 10 : comparaison des modules tangentiels issus des deux pois : veit et tentariation

#### **CONCLUSION** :

L'effet de la température et de l'humidité sur les caractéristiques mécaniques radiale et tangentielle issues de l'essai de compression sur cube unique a été analysé.

La température entraîne l'apparition de deux maxima de frottement interne qui correspondent aux transitions  $\alpha_1(0.005 \text{ Hz}, 70^{\circ}\text{C})$  et  $\alpha_2(0.05 \text{ Hz}, \text{ inféreure à } 10^{\circ}\text{C})$  pour un taux d'humidité de 12%. Parallèlement les modules tangentiels chutent de 40% environ entre 20 et 70°C.

Une variation d'humidité de 0 à 10% s'accompagne d'une augmentation des modules dynamiques radiaux et tangentiels. Ces derniers diminuent alors quasi-linéairement jusqu'à 24% et au delà de P.S.F restent pratiquement constant. Elle entraîne aussi l'augmentation des frottements internes radiaux et tangentiels dans le domaine hygroscopique. Ces derniers se stabilisent au delà du P.S.F. Ceci pour une température de 20°C.

La comparaison des comportements mécaniques du bois vert issu de l'arbre et du bois vert réhumidifié, montre que dans le domaine hygroscopique il n'y a aucune différence significative. Par contre dans le domaine vert, les modules dynamiques dans le cas de la réhumidification sont inférieurs de 35% à ceux du cube vert.

## BIBLIOGRAPHIE

#### M.FOURNIER 1989

Mécanique de l'arbre sur pied: Maturation, poids propre, contraintes climatiques dans la tige standard.

Doctorat de l'INPL Nancy.

#### J.M.GENEVAUX 1989

Le fluage à température linéairement croissante: caractérisation des sources de viscoélasticité anisotrope du bois Doctorat de l'INPL Nancy.

#### G.M.GUERRIN 1990

Caractérisation en flexion quasi statique et dynamique d'un matériau thermo-hygroviscoélastique: le bois. Doctorat de l'INPL Nancy.

#### D.GUITARD 1987

Mécanique du matériau bois et composites. Collection Nabla. Cepadues-Editions.

#### J.LAUNAY - F.GILLETTA 1988

L'influence de la température et du taux d'humidité sur les constantes élastiques d'un épicéa de sitka.

Actes du colloque scientifique européen organisé par le Groupement Scientifique Rhéologie du Bois. Bordeaux 8 et 9 Juin.

#### KOLLMANN 1968

Principles of wood science and technology Volume I: Solide Wood. Spinger-Verlag Heidelberg New York.

#### L.C.PALKA 1973

Predicting the effect of specific gravity, moisture content, température and strain rate on the elastic properties of softwoods. Wood Science and Technology 7:127-141.

#### L.SALMEN 1984

Viscoelastic properties of in situ lignin under water-saturated conditions. Journal of Materials Science. 19: 3090-3096.

#### J.L.SEICHEPINE 1980

Mise au point d'une méthode expérimentale destinée à l'identification de la matrice des complaisances élastiques des solides anisotropes: Application au matériau bois. Thèse de docteur ingénieur. INPL Nancy.

#### N.TAHANI 1988

Modélisation des contraintes internes dans les matériaux orthotropes: séchage d'un billon soumis à un gradient radial d'humidité . Thèse docteur INPL NANCY.

#### B.THIBAUT 1988

Le processus de coupe du bois par déroulage. Thèse de Doctorat d'Etat, mention "Science". U.S.T.L Monpellier.

#### **M.ZIANI 1991**

Influence de l'humidité sur le comportement physico-mécanique à basses fréquences du bois : état hygroscopique - état vert. Thèse docteur INPL NANCY.

#### AM GUERRIN 1990

Caractérisation en flexion quasi statique et viscoélastique: le bois. Doctorat de l'INPL Nancy.

#### D.GUITARD 1987

Mécanique du matériau boas et composites. Collection Mabla. Cepadues-Éditions.

#### 11. AUNAY - F.GILLETTA 1988

L'influence de la température et du taux d'humidité sur les constantes elastiques d'ait optioni

Actes du colloque scientifique européen organisé par le Oroupement Scientifique Européen européen organisé par le Oroupement Scientifique Européen européen organisé par le Oroupement Scientifique Européen européen européen organisé par le Oroupement Scientifique Européen européen organisé par le Oroupement Scientifique Européen européen européen organisé par le Oroupement Scientifique Européen européen européen organisé par le Oroupement Scientificue Européen européeen européen europ

#### ROLLMANN 1968

Principles of wood science and technology Volume I: Solide Wood, Spinger-Verlag Heidelberg New York

#### 1 CPALKA 1973

Predicting the effect of specific gravity, moisture content, temperature and submittee on an elastic properties of softwoods. Les Cahiers de Rhéologie Vol IX, Numéro 4, décembre 1991

ETUDE RHEOLOGIQUE ET GRANULOMETRIQUE D'UNE EMULSION D'HUILE DE COUPE II. COMPORTEMENT COMPLEXE DES EMULSIONS D'HUILE DE COUPE

#### AUTEURS:

L. BENALI, R. GAUDU

#### ADRESSE:

Institut de Mécanique des Fluides de Toulouse -UA 005-Avenue du Professeur Camille Soula, 31400 TOULOUSE

Résumé: Aux faibles concentrations d'huile, les émulsions étudiées présentent un comportement généralisé, tandis qu'aux concentrations moyennes le comportement est plastique. L'effet viscoélastique se manifeste aux concentrations très élevées. Toutes les émulsions étudiées présentent un effet thixotropique plus ou moins important à l'exeption de l'émulsion à 95% qui est caractérisée par une forte antithixotropie.

Abstract: For low oil concentration a Structural behavior has been observed whereas, for medium oil concentration a plastic behavior is found. For high oil concentration, the emulsions are characterized by viscoelastic behavior. All emulsions are thixotropic unless the emulsion for 95% which has exhibited a considerable effect of antithixotropy

Mots clés: émulsion d'huile de coupe, concentration volumique d'huile, viscoélasticité, thixotropie, antithixotropie

I. INTRODUCTION (200 - 2

Un nombre assez important de matériaux biologiques (sang humain, salive, fluide duodénal, etc..) et industriels (polymère fondu, émulsions concentrées, etc..) ont un comportement thixotropique et viscoélastique, simultanément. Il est intéressant de nôter que la plupart des études, dans ce domaine, été souvent consacrés à l'étude du sang humain qui semble présenter ce comportement rhéologique.

Sous des conditions d'écoulement permanent, les essais rhéologiques donnent la viscosité. La viscoélasticité est déterminée à partir des essais oscillatoires. Alors que les temps de relaxation sont souvent cités dans les écoulements transitoires. Thurston [1] et Quémada [2] ont élaboré des concepts qui permettent de relier toutes ces propriétés rhéologiques. L'analyse des rhéogrammes obtenus a été réalisée au moyen du logiciel Carri-Med qui dispose, pour le cas de l'écoulement, de sept modèles classiques qui relient la contrainte de cisaillement au gradient de vitesse. Le critère de choix du modèle qui décrit le mieux les courbes d'écoulement est basé sur la plus faible dispersion et du plus grand coefficient de régression obtenus. Alors que les courbes de fluage ont été analysées en utilisant la méthode dite "d'Inokuchi".

#### II. MARERIELS ET METHODES

#### 1. Préparation des émulsions

L'huile de coupe utilisée est une huile minérale. Le tensioactif qui stabilise l'émulsion est un sulfonate cationique qui est préablement contenu dans l'huile minérale. Le PH de la solution huile-tensioactif est de l'ordre de 8.7.

L'émulsification a été réalisée en ajoutant progressivement des faibles quantités l'huile de coupe au volume d'eau distillée correspondant et en utilisant soit un agitateur magnétique pour les émulsions de faible consistance (10% à 50% d'huile) ou une agitation manuelle pour les émulsions plus consistante (60% à 95% d'huile). A nôter qu'aux très faibles concentrations d'huile, l'émulsification est presque spontanée.

#### 2. Matériel utilisé

Les mesures d'écoulement et de fluage ont été réalisées en utilisant un rhéomètre à contrainte imposée (CS 100 version 4.3). La contrainte de cisaillement varie approximativement de 0.05 Nm<sup>-2</sup> à  $2.3 \times 10^2$ Nm alors que les vitesses de cisaillement varient dans une plage de  $10^{-5}$  à  $5 \times 10^{-3}$  sec<sup>-1</sup>. Le système Peltier est utilisé pour contrôler la température de l'échantillon à tester. Deux cônes ont été utilisés dans cette étude : un cône standard en acrylique (diamètre = 6 cm et angle de cône = 2 deg) utilisé pour la plage des concentrations de 10% à 50% d'huile et un cône métallique (diamètre = 4 cm et angle de cône = 4 deg) utilisé pour la plage des concentrations de 60% à 85% d'huile.

Les essais transitoires de formation de contrainte de cisaillement ont été effectués au moyen d'un viscosimètre rotatif de type "Rotovisco RV2". Le système de mesure MV1 a été utilisé dans cette étude. Afin d'obtenir des rhéogrammes continus, l'appareil de base "Rotovisco" a été relié à un programmateur "PG146" et à un traceur "Helwet Packard". La température de l'échantillon a été maintenue constante au moyen d'un bain thermostaté à circulation "réfrigéré" D8-G (20  $\pm$  0.1 °C). La réponse du viscosimètre a été contrôlée au moyen de deux huiles étalons.

#### III. RESULTATS EXPERIMENTAUX

Des mesures rhéologiques préliminaires au moyen du viscosimètre rotatif "Rotovisco RV2" ont montré que les émulsions concentrées (70% à 95%) présentent un comportement viscoélastique important (rhéogrammes irréguliers et de forme oscillatoire). A nôter que l'effet viscoélastique nous a obligé à réduire considérablement le gradient de vitesse maximum utilisé, afin d'éviter l'effet "Weissenberg" qui pourrait provoquer l'évidement partiel de la fente annulaire.

#### 1. Analyse des courbes d'écoulement

#### 1.1 Conditions expérimentales et résultats

Afin d'effectuer des mesures de viscosité avec une bonne sensibilité sur la plage entière des concentrations d'huile, nous avons utilisé les deux géométries qui sont représentées dans le tableau 1.

#### Tableau 1 : Caractéristiques des systèmes de mesure utilisés

GEOMETRIE	ENTREFER (Micro m.)	FACTEUR DE CONTRAINTE	FACTEUR DE GRADIENT
Cone 6 Cm et 2 Deg	61.10	28.64	0.01768
Cone 4 Cm et 4 Deg	104.0	14.30	0.05968

Tablem 4 : Evolution de la thixelropie avec la concentration

Les rhéogrammes obtenus sont composées d'une courbe ascendante, d'un palier et d'une courbe descendante qui sont caractérisées par les protocoles d'essai présentés ci-dessous (tableau 2). L'analyse de la courbe ascendante et de la courbe descendante a été faite au moyen des modèles classiques suivants : newtonien, loi de puissance (Ostwald-deWaele), Bingham, Casson, Hershel-Bulkley et loi polynomiale. Ces modèles sont largement présentés dans la littérature [3]. Enfin, les contraintes de cisaillement à imposer (tableau 3) et qui permettent de réduire les contraintes normales ont été déterminées après plusieurs essais.

#### Tableau 2 : Protocole d'essai en écoulement

Température initiale	20 Deg C
Température finale	20 Deg C
Temps d'attente	1-2 Min
Temps de monté	2 Min
Temps de palier	1 Min
Temps de descente	2 Min

#### Tableau 3 : Contrainte imposée fonction de la consistance de l'émulsion

C <sub>oil</sub> (%)	GEOMETRIE UTILISEE	CONTRAINTE DE CISAILLEMENT (N/m <sup>2</sup> )
10	Cone 6 Cm et 2 Deg	3.000
20	all aup rate ( . ( .	3.501
30		5.000
40	=	15.00
50	=	60.00
60	Cone 4 Cm et 4 Deg	200.0
70	=	200.0
75	=	300.0
80	tiscosit	200.0
85	a concentrations	50.00
90	Cone 6 Cm et 2 Deg	5.000
95	=	170.0
100	=	70.00

Afin d'avoir une idée plus précise de l'évolution de la thixotropie avec la concentration d'huile, nous avons considéré la surface d'hystérisis par l'unité de gradient de vitesse (tableau 4).

C <sub>oil</sub> (%)	Surface thixotropique (N.s/m <sup>2</sup> )	Gradient de vitesse max. (S <sup>-1</sup> )	Rapport: $S_t / \dot{\gamma}_m$ (N.s <sup>2</sup> /m <sup>2</sup> )
10	325.6	1200	0.2713
20	263.4	1000	0.2634
30	285.0	1000	0.2850
40	630.5	1200	0.5254
50	1047	1200	0.8725
60	1391	700.0	1.9871
70	17.69	5.000	3.5380
75	52.18	2.250	23.191
80	81.36	3.000	27.120
85	791.7	70.00	11.310
90	2.375	8.000	0.2968
95	-2688	120.0	-22.40
100	75.82	900.0	0.0842

Tableau 4 : Evolution de la thixotropie avec la concentration d'huile

203

Un des plus grands avantages du rhéomètre utilisé c'est qu'il est capable de déterminer directement la contrainte seuil des émulsions étudiées. Ceci se fait par incrémentation de la contrainte de cisaillement imposée. La première série de valeurs du tableau 5 a été obtenue par les modèles qui lissent le mieux les rhéogrammes, alors que la deuxième série de valeurs a été relevée directement des graphes en ayant recours, suivant les cas, à des extrapolations manuelles des rhéogrammes.

C <sub>oil</sub> (%)	Valeur donnée par (N/m <sup>2</sup> )	les modèles	Valeur extrapolée des rhéogrammes (N/m <sup>2</sup> )
10	anoo dunag n0.1177	(808 & 903)	0.0889
20	100100 00.00.1055		0.0508
30	0.1198		to no waso so 0.1100 isoli iniog
40	0.1301		0.1500 dell dee
50	4.1900		3.0000
60	29.230		17.000
70	000 1 0000 31.020	nobi enémor	32.200
75	99.790		109.00
80	66.900	ntée en ch	79.300 moldanto 79.300
85	22.880	recter ef	15.670 de trues
90	0.3636	pour ce c	0.4000
95	5.6780	a une compét	5.2000
100	0.1134	de l'emisio	reconstruction de la scructure

Tableau 5 : Contrainte seuil fonction de la concentration d'huile

1.2 Interprétation des résultats et discussion

Aux faibles concentrations volumiques d'huile (10%, 20% et 30%), les émulsions d'huile de coupe sont caractérisées par un comportement généralisé. La courbe ascendante de la figure la présente trois comportements différents : un comportement fluidifiant aux faibles vitesses de cisaillement, un comportement épaissisant aux vitesses de cisaillement élevées et un comportement newtonien dans une plage intermédiaire. Ce type de comportement se manifeste souvent dans les solutions de macromolécules, les suspensions et certaines huiles de lubrification. Il est aussi présenté par Gouarraze [4] comme un écoulement généralisé dont le rhéogramme peut être constitué de quatre régions. Il existe un comportement newtonien aux très faibles vitesses de cisaillement qui n'a pas été obtenu, parceque dans ce cas il était difficile d'explorer les très faibles gradients de vitesse. On peut également remarquer dans la figure 1a que la courbe descendante est caractérisée par un gradient de vitesse à contrainte nulle. Ceci est dû, probablement, à la vitesse d'entrainement du système de mesure qui se manifeste dans les émulsions de faible viscosité.

Aux concentrations volumiques d'huile plus élevées (≥ 40%), les émulsions d'huile de coupe ont un comportement plastique. D'après Sherman [5], une émulsion plastique est constituée d'agrégats qui renferment une certaine partie de la phase continue, d'autre part, les constituants d'agrégats se portent ensemble au moyen de forces attractives de van der Walls. Aux gradients de vitesse élevées, la structure de l'émulsion est fortement influencée par le cisaillement. Dans ce cas, la viscosité de l'émulsion chûte parceque les agrégats se cassent et la phase continue qui y est incluse est libérée.

Dans les figures 1b et 1c, on peut remarquer que les émulsions à 40% et 60% d'huile qui ont un comportement plastique sont aussi caractériséees par une thixotropie qui est réversible; c'est à dire qu'il ya régénération intégrale de la structure. Ceci n'est pas le cas des émulsions très concentrées (70% à 90%), où on peut constater dans les figures 1d et 1e que le point initial du rhéogramme ne coincide pas avec le point final. Dans ce cas, on dit que la thixotropie est irréversible ( ceci est lié à l'échelle de temps de l'expérience).

L'émulsion à 95% d'huile présente une antithixotropie très prononcée et qui est en outre associée d'un "breakpoint" (figure 1f). Faurel [6] a trouvé un phénomène identique dans l'étude d'un kaolin d'arvor. Cet auteur explique les propriétés antithixotropiques par la formation d'une structure orientée en chaines d'écailles. D'autre part, Bourret et coll [7] expliquent le retour du tracé du rhéogramme au point initial (qui a été observé pour ce cas) par le fait que la couche protectrice d'hydratation peut se reconstituer dès que le cisaillement cesse. Dans ce cas, il ya bien une compétition entre la destruction et la reconstruction de la structure de l'émulsion.

Comme on l'a constaté précédemment, la majorité des rhéogrammes des émulsions étudiées sont caractérisés par des boucles d'hystérisis. La surface de la boucle est équivalente à l'énergie absorbée par l'émulsion pour obtenir l'effrondement de sa structure. Dans le tableau 3 on peut voir que l'effet thixotropique devient de plus en plus important avec l'augmentation de la concentration d'huile; la valeur maximale est atteinte pour la concentration de 85%. Alors que la valeur négative de la surface thixotropique de l'émulsion à 95% d'huiles signifie que, dans ce cas, c'est le phénomène d'antithixotropie qui prédomine.

Dans le tableau 4, on peut remarquer que la contrainte seuil augmente avec la concentration d'huile. La valeur maximale est atteinte à la concentration de 75% : ce qui correspond parfaitement à la concentration d'empilement maximal [8]. La contrainte seuil peut être déterminée théoriquement à partir de l'équation de relaxation de contrainte [9].



Figure 1. Quelques rhéogrammes représentatifs des émulsions d'huile de coupe. T = 20 °C 2. Essais transitoires : formation de contrainte de cisaillement

Les mesures effectuées en écoulement ont montré que les émulsions d'huile de coupe très concentrées présentent un comportement qui est simultanément thixotropique et viscoélastique : ce type de comportement est dit "comportement élasto-thixotropique". D'après Jezequel et coll [11], le comportement élasto-thixotropique des émulsions est caractérisé par une courbe de relaxation, qui présente une forme de cloche. Stoltz et Lucius [11] ont donné une bonne présentation du comportement élasto-thixotropique. Il est intéressant de nôter qu'en plus des quatre paramètres déterminés par les mesures en écoulement permanent [12], il faut quatre paramètres supplémentaires pour décrire le comportement élasto-thixotropique.

Les essais transitoires de formation de contrainte ont été effectués dans la plage des concentrations où les émulsions d'huile de coupe semblent présenter un comportement élasto-thixotropique important (70% à 95%). La figure 2 montrent des courbes de formation de contrainte qui ont été obtenues en appliquant aux échantillons des vitesses de cisaillement constantes. La vitesse de tracé des courbes est de 10 sec/cm et l'amortissement est égal à 5 (qui est une valeur moyenne). Toutes les émulsions ont été examinées après 20 heures de repos afin d'assurer que tous les réseaux ont été complètement formés. Nous avons varié la vitesse de cisaillement de 2 à 38 sec <sup>-1</sup> pour les émulsions de forte consistante (70% à 85%) et de 2 à 300 sec <sup>-1</sup> pour les émulsions d'huile qui ont relativement une faible consistance (90% et 95%).

Les figures 2a et 2e montrent une augmentation rapide de la contrainte de cisaillement qui atteint ensuite une valeur d'équilibre qui correspond à la désagrégation complète de la structure de l'émulsion. Dans les figures 2b, 2c et 2d, on peut remarquer l'existance d'un "overshoot" qui, d'après Jezequel et coll, caractérise la composante thixotropique du comportement des émulsions et qui résulte des effets de mémoires. La hauteur du pic augmente avec la vitesse de cisaillement ; par contre, le retard décroit. Ceci montre que la composante élastique de l'émulsion n'est pas assez grande, aux vitesses de cisaillement élevées; ce qui est normal, puisque l'élasticité de l'émulsion dépend de la taille des gouttelettes et de la fraction volumique de la phase dispersée. De plus, elle est liée à l'arrangement des réseaux pour les faibles vitesses de cisaillement. La largeur du pic décroit avec l'augmentation de la vitesse de cisaillement, diminution des caractéristiques des temps de montrant ainsi, une désagrégation. Ceci correspond à une accélération de la rupture structurelle. Après la forme de cloche, un plateau est observé.

A la différence des résultats obtenus précédemment, les courbes de formation de contrainte de l'émulsion à 95% (figure 2f) sont caractérisées par des contraintes de cisaillement qui augmentent rapidement dans les premières secondes d'essai et qui continuent à croitre progressivement pour le reste du temps de l'expérience. Ceci confirme parfaitement le comportement viscoélastique et thixotropique de cette dernière émulsion.



Figure 2. Formation de contrainte de cisaillement à gradient de vitesse constant. T = 20 °C

#### 3. Détermination des paramètres dynamiques

Les mesures de fluage fournissent des informations pour des temps assez longs (basses fréquences). Tandis ce que les fréquences élevées (temps courts) ne sont accessibles que par des essais dynamiques. Afin d'analyser le comportement viscoélastique des émulsions sur une plage de fréquences assez large, il est nécessaire d'unifier, sous la forme d'une courbe unique, les mesures de fluage qui sont transformées en des paramètres dynamiques et les mesures oscillatoires [13]. Sur une plage intermédiaire de fréquences, on dispose d'une zône de recouvrement qui correspond aux mesures de fluage et aux mesures oscillatoires. L'avantage de l'unification des deux méthodes de mesures viscoélastiques est l'obtention d'une description précise du comportement rhéologique de l'émulsion sur la plage entière des fréquences et par un seul type de fonction réponse. Barry [14] donne les formules de transformation des données de fuage en des paramètres dynamiques.

#### 3-1 Conditions expérimentales

Des faibles déformations ont été utilisées afin d'étudier la structure des émulsions d'huile de coupe dans leur état de base; ceci permet d'utiliser l'analyse de la viscoélasticité linéaire pour obtenir les paramètres viscoélastiques fondamentaux.

CO TIND I D	
Géométrie utilisée	Cone 4 Cm et 4 Deg
Température	20 Deg C
Temps d'attente	2 Min
Temps de retard	30 Min

#### Tableau 6 : Protocole d'essai en fluage

#### Tableau 7 : Protocole d'essai en oscillation

Géométrie utilisée	Cone 4 Cm et 4 Deg			
Inertie du système	27.66 Micro N.m/sec <sup>2</sup>			
Déformation imposée	5.000 milli radians			
Température	20 °C			
Fréquence initiale	10 <sup>-3</sup> Hz			
Fréquence finale	10 Hz			

#### 3-2 Résultats expérimentaux et discussion

Le tableau 8 représente les paramètres de fluage qui ont été obtenus en utilisant la méthode d'Inokuchi. Nous avons obtenu par l'analyse manuelle une bonne description du comportement viscoélastique, des émulsions étudiées, par le modèle de Kelvin-Voigt à trois éléments.

Coil (%)	70	75	80
η <sub>o</sub> (Pa.s)	30430	59750	720800
J <sub>o</sub> (Pa <sup>-1</sup> )	3.75x10 <sup>-5</sup>	4.50x10 <sup>-4</sup>	2.25x10 <sup>-4</sup>
η <sub>1</sub> (Pa.s)	12670	10560	25950
J <sub>1</sub> (Pa <sup>-1</sup> )	0.02075	0.02718	7.46x10 <sup>-3</sup>
θ <sub>1</sub> (Sec)	262.9	286.9	193.5
η <sub>z</sub> (Pa.s)	1123	15.68	1772
J <sub>2</sub> (Pa <sup>-1</sup> )	3.11x10 <sup>-3</sup>	3.43x10 <sup>-3</sup>	1.65x10 <sup>-3</sup>
θ <sub>2</sub> (Sec)	3.50	5.38	2.92

lableau o . Parametres obtenus a partir des essais de	de fl	de	115	essai	des	partir	a	obtenus	Paramétres	:	ableau 8	Ta
---	-------	----	-----	-------	-----	--------	---	---------	------------	---	----------	----

En Général, on peut observer dans la figure 3 un bon accord entre les paramètres expérimentaux de stockage et de perte obtenus par les essais oscillatoires et ceux obtenus par transformation des paramètres de fluage (le prolongement d'une série de points à l'autre est assez correct). Ceci confirme que la structure des émulsions a été bien étudiée dans son état de base par les deux méthodes de mesure. Néanmoins, on peut remarquer une déviation du point expérimental obtenu par les essais oscillatoires à 10<sup>-3</sup> Hz. Ceci est dû, probablement, aux limites techniques du rhéomètre et aux effets d'évaporation d'eau pour les essais très long.

L'évolution des coubes de viscosité dynamique  $(\eta')$  et du module de rigidité (E') avec la fréquence  $(\omega)$  est conforme à la théorie. Aux fréquences élevées, le comportement élastique prédomine parceque le temps nécessaire pour les déformations visqueuses est assez petit. Par contre, lorsque le temps (période) augmente, c'est le comportement visqueux qui prédomine. Dans ce cas, le module de rigidité décroit rapidement, ce qui se traduit par le fait que l'énergie emmagasinée par cycle est négligeable par rapport à l'energie dissipée. Tandis que les courbes obtenues par les essais oscillatoires ont une forme linéaires (représentation log-log), les courbes complémentaires qui ont été obtenues par transformation des paramètres de fluage sont caractérisées par une simple ou une double inflexion.



Figure 3. Emulsions : I C<sub>011</sub> = 70%, II C<sub>011</sub> = 75%, III C<sub>011</sub> = 80%. Variation de la (a) viscosité dynamique, η', et du (b) module de rigidité, E', avec la fréquence, ω. T = 20 °C

#### IV. CONCLUSION

Suivant la concentration volumique d'huile  $(C_{oil})$ , le comportement rhéolologique des émulsions étudiées est un comportement non-newtonien qui peut être soit généralisé, plastique ou élasto-thixotropique. L'évolution de la contrainte seuil et de la thixotropie avec la concentration volumique d'huile présente des maximums (75% et 85%) qui sont proches du point critique de concentration d'empilement maximale. Finalement, l'émulsion à 95% est caractérisée par une antithixotropie importante.

La présence de "l'overshoot" dans les courbes de formation de contrainte a confirmé l'effet thixotropique qui se manifeste dans les émulsions d'huile de coupe. La hauteur du pic croit avec la vitesse de cisaillement, par contre sa largeur décroit. Ceci montre une diminution des temps caractéristiques de désagrégation. Les émulsions à 70% et à 90% sont les moins thixotropiques. Enfin, les courbes de formation de contrainte de l'émulsion à 95% d'huile illustrent bien le phénomène d'antithixotropie présenté par cette dernière émulsion.

La transformation des données de fluage en des paramètres dynamiques nous a permi d'étendre la plage des fréquences utilisées pour décrire le comportement viscoélastique de ce type d'émulsion. Dans cette plage de fréquences, la variation de la viscosité dynamique et du module de rigidité avec la fréquence est conforme à la théorie. Nous avons obtenu un bon accord entre les paramètres viscoélastiques en utilisant les deux méthodes de mesure.

## Références dolla le color de la colorada de la colorada

- G. B. Thurston "Rheological parameters for the viscosity, viscoelasticity and thixotropy of blood". Biorheology, vol.16, n°3, p.149-162, 1979.
- 2. D. Quemada "Towards a unified model of elasto-thixotropy of biofluids". Biorheolgy, vol.21, n°4, p.423, 1984.
- R. Darby "Viscoelastic fluids. An introduction to their properties and behavior". Marcel Dekker, Inc. 1976, New York.
- G. Gouarraze, J. L. Grossiord "Initiation à la rhéologie". Technique et documentation, Lavoisier, 1983.
- P. Sherman "Rheology of emulsions". Emulsion Science, Academic Press, chap.4, New York, 1968.

- X. Faurel "Une double anomalie : la thixotropie et l'antithixotropie simultanée d'un kaolin d'arvor". Rhéologie des fluides hétérogènes.
   C.R. 21è colloque G.F.R., p.5-9/5-17, 1986.
- E. Bourret, C. Rueda-Rodriguez, R. Fortune et L. Bardet "Comportement rhéologique de sols d'acide polysilicique. I- Influence des facteurs ph, concentration et temps". Rheol. Acta, vol.27, p.52-60, 1988.
  - L. Benali "Rheological and granulometrical studies of a cutting oil emulsion. I- The effects of oil concentration". Papier soumis à Rhélogica Acta en Avril 1991.
- D. Qemada, R. Droz "Blood viscoelasticity and thixotropy from stess formation and relaxation measurments a unified model". Biorheology, vol.20, n°5, p.635-651, 1983.
  - P. H. Jezequel, P. Flaud, D. Quemada "Viscoelastic and thixotropic behavior of crude oil emulsions". Proc. IX Intern. Congress on Rheology, Mexico, p.183-189, 1984.
  - 11. J. F. Stoltz and M. Lucius "Viscoelasticity and thixotropy of humain blood". Biorhology, vol.18, n°3-6, p.453-473, 1981.
    - D. Quemada, P. Flaud, P. H. Jezequel "Rheological properties and flow of concentrated disperse media. I- Modelling of steady and unsteady behavior". Chem. Eng. Commun., vol.32, p.61-83, 1985.
    - 13. G. M. Eccleston, G. W. Barry, S. S. Davis "Correlation of viscoelastic functions for pharmaceutical semisolids: Comparaison of creep and oscillatory tests for oil-in-water cream stabilized by mixed emulsifiers". J. of Pharmac. Sci., vol.62, n°12, p.1954-1961, dec.1973.
    - B. W. Barry "Viscoelastic properties of concentrated emulsions". Adv. Coll. Int. Sci., vol.5, n°1, p.37-75, 1975.

#### VIEILLISSEMENT NATUREL ET ARTIFICIEL DE FILMS EN POLYETHYLENE (PE) UTILISES COMME COUVERTURES DE SERRES AGRICOLES

#### M. SEBAA, M. LASSIAZ, J. POUYET

#### Laboratoire de Mécanique Physique, URA CNRS 867 351, Cours de la libération, 33405 Talence Cedex, France.

#### Résumé

Les variations des propriétés physiques et mécaniques d'usage du matériau dans des conditions d'expositions naturelles ou artificielles sont principalement associées à l'évolution irréversible de sa structure, de sa composition et de sa morphologie.

L'étude du vieillissement de films de PE utilisés pour la couverture de serres agricoles est réalisée sur deux formules du polymère; avec et sans stabilisation.

Ce travail est axé sur trois points essentiels:

1-Comparaison du vieillissement des deux nuances de films en expositions naturelles. Celles-ci se feront sur deux sites:

a-Site saharien à Laghouat (Algérie) b-Site méditerranéen à Bandol (France).

2-Comparaison du vieillissement des deux nuances en expositions artificielles; photovieillissement accéléré sous lumière artificielle ( la source utilisée est une lampe à vapeur de mercure moyenne pression).

3-Identification des mécanismes d'évolutions et recherches de corrélations.

## INTRODUCTION

Le vieillissement climatique influence les propriétés mécaniques et physiques du matériau. Il combine les effets de l'oxygène, de la lumière et de la température. L'humidité, la pluie, le vent, la poussière, l'ozone, la pollution chimique sont d'autres agents aussi importants. Les problèmes induits ne sont pas simples à cause de la grande variétés des sites climatiques, de la nature de chaque polymère et de ses formulations, des performances requises, etc.

La complexité du problème justifie le fait que l'exposition sur le terrain présente l'avantage d'une expérimentation dans des conditions identiques à celles d'utilisation. L'inconvénient majeur est la longue durée des essais et la difficulté parfois d'associer les résultats obtenus aux phénomènes impliqués. Le photovieillissement accéléré, au laboratoire, permet de réaliser des expériences représentatives des conditions naturelles si elles sont simulées correctement et ceci dans des délais convenables.

Mots clés: Films P.E, Vieillissement naturel et artificiel, essais mécaniques.

#### EXPERIMENTATION

Le processus de photodégradation est suivi par l'évolution des propriétés mécaniques (module et caractéristiques à la rupture en traction uniaxiale), de la composition chimique et du taux de cristallinité.

Les expositions naturelles ont été réalisées à Laghouat (Algérie) et à Bandol (France). Les films sont pincés entre deux trames en bois peints en blancs et montés sur des panneaux d'expositions inclinés à 45° par rapport à l'horizontale et orientés vers le sud (NF T51-165). Les expositions à Laghouat ont débuté en septembre 1989 et février 1990 et celles de Bandol en février 1990.

Les tests de photovieillissements accélérés ont été réalisés au niveau du CNEP à l'université de Clermont-Ferrand et au laboratoire de mécanique physique dans des enceintes, régulées à une température de 60°C et utilisant comme source des lampes à vapeur de mercure moyenne pression.

Les propriétés mécaniques sont mesurées au moyen d'une machine de traction INSTRON 1186 (20<T(°C)<25, 40<HR(%)<45). Les vitesses d'allongements des mors sont de 2 mm/mn (1,7%/mn) pour la mesure du module et de 200 mm/mn (170%/mn) pour la mesure des caractéristiques à la rupture (NF T54-102). Les essais d'analyses enthalpiques différentielles ont été réalisés sur un appareil METTLER TA 3000. Le taux de cristallinité est mesuré par diffraction de rayons X et par analyse enthalpique differentielle où il est calculé sur la base d'une enthalpie de fusion  $(\Delta H^{\circ} = 285 \text{ J/g})$  d'un PE 100% cristallin [14]. Les spectres IR ont été réalisés sur un spectromètre PERKIN ELMER 683 couplé à un micro-ordinateur.

Deux nuances de films de Polyéthylène basse densité (PEbd) ont été étudiées; échantillon A (type Riblène sans stabilisation) et echantillon B (type Lotrène stabilisé).Dans la suite du texte les symboles suivants seront utilisés: (Lag) exposition naturelle à Laghouat; (Ban) exposition naturelle à Bandol; (Lab) essais réalisés au laboratoire; (CF) essais réalisés au CNEP à l'université de Clermont Ferrand.

#### **RESULTATS ET DISCUSSIONS**

Nous avons reporté dans le tableau 1 les caractéristiques mécaniques et physiques des deux polymères. Le polyéthylène stabilisé (éch.B) a un plus fort taux de cristallinité ce qui lui confèrerait une meilleure rigidité au détriment d'une plus faible déformation à la rupture que le non stabilisé.

icture, di ogie.	Ech.A	Ech.B	mévers tion et c	Ech. A	Ech.B
Or (MPa)	13	19	Tg(℃)	-115	-130
Er (%)	617	546	Tf(℃)	112	109,7
Es(1%) (MPa)	152	162	X(%)	39	45

Tab. 1 Caractéristiques mécaniques et physiques des deux polymères.

La contrainte à la rupture (éch.A) augmente durant les premières semaines d'exposition à Bandol et à Laghouat. Sur ce dernier site sa valeur passe par un palier entre 12 et 24 semaines d'exposition correspondant à la période hivernale. Ensuite elle chute aux trois quart de sa valeur initiale (fig 2a). Par contre en photovieillissement accéléré une tendance à la baisse apparait dés les premières heures d'expositions suivi par une fluctuation autour d'une valeur moyenne pratiquement égale à 13 MPa (fig 2b). Concernant l'échantillon B, la contrainte à la rupture chute durant les premiers instants et ceci pour les deux types d'expositions.



Fig.2b Evolution de la contrainte à la rupture en fonction de la durée d'exposition en vieillissement naturel (a) et artificiel (b).

Les déformations à la rupture décroissent régulièrement en vieillissement naturel (fig.3a) et en photovieillissement accéléré (fig.3b) pour l'échantillon A tandis que l'échantillon B montre une meilleure tenue à l'agression photochimique.

Nous avons reporté les valeurs de la variation de la densité optique ( $\Delta DO$ ) à 1720 cm<sup>-1</sup> au cours du vieillissement naturel (fig.4a) et du photovieillissement accéléré de l'échantillon A (fig.4b). La comparaison de ces courbes montre que les cinétiques d'oxydation du matériau en photovieillissement accéléré et en exposition naturelle à Bandol sont similaires. Elles montrent une période d'incubation plus ou moins longue, suivant le type d'exposition, suivi d'un amorçage assez rapide de la réaction d'oxydation du matériau. La courbe correspondant à l'exposition sur le site de Laghouat montre un fléchissement entre 16 et 24 semaines d'expositions, probablement dû à une baisse de l'énergie solaire pendant la période hivernale, l'encadré de la figure 4a représente la variation des températures moyennes mensuelles des maxima journaliers à Laghouat pour la période allant de Septembre 1989 à Septembre 1990 et à Bandol de Février 1990 à Septembre 1990. Ce phénomène apparait aussi sur les figures 2a et 3a donnant respectivement les contraintes et les déformations à la rupture en fonction de la durée d'exposition sur le site naturel.



Fig.3a Evolution de la déformation à la rupture en fonction de la durée d'exposition en vieillissement naturel.



Fig.3b Evolution de la déformation à la rupture en fonction de la durée d'exposition en vieillissement artificiel.



Fig.4a Variation de la DO à 1720 cm<sup>-1</sup> en fonction de la durée d'exposition en vieillissement naturel.



Fig.4b Variation de la DO à 1720 cm<sup>-1</sup> en fonction de la durée d'exposition en vieillissement artificiel.

L'échantillon B présente une très légère évolution de son état d'oxydation que ce soit en vieillissement naturel après 24 semaines d'expositions, ou en photovieillissement accéléré après 600 heures d'expositions. La figure 5 représente la comparaison de l'évolution des spectres IR dans le domaine de vibrations des carbonyles. Notons dans tous les cas, la disparition d'un additif absorbant vers 1680 cm<sup>-1</sup>. L'évolution du spectre à 1720 cm<sup>-1</sup> traduit en fait celle de la matrice du polymère et de l'additif.



Fig.5 Evolution du spectre IR dans le domaine de vibration des carbonyles en vieillissement naturel

Sur la figure 6 nous avons reporté, pour l'échantillon A, la variation de la densité optique à 910 cm<sup>-1</sup> (Vinyls) en fonction de celle à 1720 cm<sup>-1</sup> (Carbonyles) pour les deux sites d'expositions naturelles.

Les relations entre les déformations à la rupture, rapportées à la valeur initiale, et la variation de la densité optique à 1720 cm<sup>-1</sup> de l'echantillon A sont reportées sur la figure 7 pour les deux types de vieillissement.



Fig.6 Variation de la DO à 910 cm<sup>-1</sup> en fonction de la DO à 1720 cm<sup>-1</sup> en expositions naturelles à Laghouat.

même valeur de ADO rechantilon est complètement dégradé. Certaines études [3] ont montré an bon accord entre le comportement photochimique de films exposés en enceintes ou sur sites esturels.

L'échantillon E est caractérisé par une meilleure tenue au vieillissement que l'échantillon A et une évolution de son état d'oxydation pratiquement nulle durant toute la durée de ses expositions.



Fig.7 Relation entre les déformations à la rupture ,ramenées à la valeur initiale, et la DO à 1720 cm<sup>-1</sup> en vieillissement naturel



Fig.7 Relation entre les déformations à la rupture ,ramenées à la valeur initiale, et la DO à 1720 cm<sup>-1</sup> en vieillissement artificiel.

L'analyse de ces différents résultats peut susciter les commentaires suivants: - L'augmentation du module et de la contrainte à la rupture de l'echantillon A durant les premières semaines d'expositions en site naturel ne semble pas être reliée au taux de cristallinité dont la valeur reste pratiquement constante 29 à 33% (par DSC) et 39 à 40% (par RX). On attribue généralement cette augmentation à la réticulation du matériau qui intervient durant les premiers stades d'exposition [4][12], ce résultat n'étant pas toujours confirmé [9][10]. Par contre en photovieillissement accéléré, nous avons remarqué que la valeur du taux de cristallinité passe environ de 39 à 45% (par RX) à partir de 175 heures d'expositions. Cette variation du taux de cristallinité est controversée. Billingham [1] souligne que ce taux augmente durant le vieillissement. D'autres auteurs [8][11] remarquent l'augmentation de la densité due au fait que les courts segments provenant de la scission des chaînes macromoléculaires peuvent donner lieu à une cristallisation (chimie-cristallisation). Des études menée s sur des films de

PEbd vieillis sur site naturel ont montré que le taux de cristallinité restait pratiquement constant durant toute la durée d'exposition alors que la masse moléculaire moyenne diminuait [9] [10]. - La relation linéaire qui existe entre la

formation des groupements vinyls et celle des groupements carbonyles, pour l'échantillon A exposé sur le site de Laghouat (fig.6), indique que la photolyse des cétones a lieu pratiquement suivant la réaction de Norrish II bien connue. Cette linéarité est mise à défaut après 28 semaines d'expositions. Nous remarquons qu'à ce stade avancé de l'oxydation du matériau, il y a altération dans la région des insaturations, caractérisée par l'augmentation des groupements RHC=CHR (966 cm<sup>-1</sup>) et RHC=CH<sub>2</sub> (910-993 cm<sup>-1</sup>). Sur le site de Bandol (fig.6), cette relation entre l'évolution des groupements vinyls et carbonyles n'est pas simple. La photolyse des cétones peut avoir lieu simultanément suivant Norrish I et II.

- Il n'apparait pas de relation simple entre les propriétés mécaniques (déformation à la rupture) et la variation de la densité optique à 1720 cm<sup>-1</sup> en vieillissement naturel et en photovieillissement accéléré (fig.7), sur la courbe correspondant au vieillissement naturel, quand la valeur de  $\Delta DO$  atteint environ 0,2 il y a une chute très prononcée des propriétés mécaniques. Ceci pourrait s'expliquer par le fait que certains actes chimiques (ruptures de chaines) ont pu affecter des sites "stratégiques" sur le plan de la cohésion mécanique du polymère ou alors qu'il existe un nombre critique de ruptures de chaînes pour lequel la dégradation du matériau s'accélère. Cette chute est encore plus accentuée en photovieillissement accéléré puisque pour la même valeur de ADO l'échantillon est complètement dégradé. Certaines études [3] ont montré un bon accord entre le comportement photochimique de films exposés en enceintes ou sur sites naturels.

- L'échantillon B est caractérisé par une meilleure tenue au vieillissement que l'échantillon A et une évolution de son état d'oxydation pratiquement nulle durant toute la durée de ses expositions. 1 BILLINGHAM N.C., PRENTICE P., WALKER T.J. :

Some effects of morphology on oxidation and stabilisation of polyolefins, J. of Polym. Sc.:Symp., n°57, 287-297 (1976).

2 CASSIDY P.E., AMINABHAVI T.M. Enhanced environmental degradation of plastics, J. Macromol. Sc. Rev. Macromol. Chem., Vol. C21,n°1,pp.89-133 (1981).

3 FANTO E., ATHENOR B., SENEIRA H., ARNAUD R., LEMAIRE J.

Veillissement naturel et photoveillissement accéléré, Caoutchouc et Plastiques, n°659, pp.135-139, Avril (1986).

4 GUILLET J.E. :

Studies of the mecanism of polyolefin photodegradation, Pure and Appl. Chem., Vol.52, pp.285-294 (1980).

5 HAMID S.H., MAADHAH A.G., QURESHI F.S., AMIN M.B. :

Weather-induced degradation of polyethylene: Infrared spectroscopic studies, The Arabian Journal for Sc. and Engin., Vol.13,n°4,pp.503-531 (1988). 6 PERENYI K., VERDU J. :

Photooxydation du polyéthylène basse densité en échantillons multicouches, Matériaux et Techniques, Mars (1981).

7 SEVERINI F., GALLO R., IPSALE Some aspect of the environmental photodegradation of LDPE, Polym. Degrad. and stability, Vol.22,pp.53-61 (1988). 8 SEVERINI F., GALLO R., IPSALE Environmental degradation of polyolefins, The Arabian Journal for Sc. and Engin., Vol.13,n°4, October (1988).

9 SEVÈRINI F., GALLO R., IPSALE S., DEL FANTI N. :

Environmental degradation of stabilized LDPE: Initial step, Polym. Degrad. and stability, Vol.14,pp.341-350 (1986).

10 SEVERINI F., GALLO R., IPSALE S., DEL FANTI N. :

Environmental degradation of stabilized LDPE: Later stages, Polym. Degrad. and stability, Vol.17,pp.57-64 (1987).

11 VERDU J. :

Comportement des films en polyéthylène basse densité Plastiques Modernes et Elastomères, Mars (1973).

12 VERDU J. :

Veillissement des plastiques, AFNOR (1984).

13 WINSLOW F.H., MAREYEK W., TROZZOLO A.M.:

Weathering of PE, Pölymer Preprint, ACS Division of Polymer Chem., 10 (2),pp.1271 (1969)

14 WUNDERLICH B., CORMIER C.M. :

Note-Heat of fusion of polyethylene, J. of Polym. Sc. Part A-2, Vol.5 (1967).