UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES D'UN ALLIAGE POLYMÈRE MOULÉ PAR INJECTION

par

Stéphane Bourgeois
DÉPARTEMENT DE GÉNIE MÉCANIQUE
ÉCOLE POLYTECHNIQUE

MÉMOIRE PRÉSENTÉ EN VUE DE L'OBTENTION
DU GRADE DE MAÎTRE ÈS SCIENCES APPLIQUÉES (M.Sc.A.)

octobre 1989

c Stéphane Bourgeois 1989

National Library of Canada
Bibliothèque nationale du Canada

Canadian Theses Service
Service des thèses canadiennes

Ottawa, Canada
K1A 0N4

The author has granted an irrevocable non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of his/her thesis by any means and in any form or format, making this thesis available to interested persons.

L'auteur a accordé une licence irrévocable et non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de sa thèse de quelque manière et sous quelque forme que ce soit pour mettre des exemplaires de cette thèse à la disposition des personnes intéressées.

The author retains ownership of the copyright in his/her thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without his/her permission.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège sa thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

ISBN 0-315-58108-5

Canada

UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL

ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Ce mémoire intitulé:

PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES D'UN ALLIAGE POLYMÈRE

MOULÉ PAR INJECTION

présenté par: Stéphane Bourgeois

en vue de l'obtention du grade de: maître ès sciences appliquées (M.Sc.A.)

a été dûment accepté par le jury constitué de:

M. Raymond Gauvin, D.Sc.A., président

M. Bohuslav Fisa, Ph.D.

M. Basil Favis, Ph.D.

SOMMAIRE

Ce projet fait suite à une série de travaux entrepris à l'Institut de Génie des Matériaux sur un alliage polypropylène/polycarbonate (PP/PC). Quatre objectifs ont été fixés avant d'entreprendre ce projet, soit de déterminer les effets de la concentration de la phase dispersée, de l'épaisseur de la pièce moulée, de la présence d'une ligne de soudure et du rapport de viscosité.

Le premier chapitre de ce mémoire couvre plusieurs aspects liés aux mélanges et alliages polymères: quelques définitions, un historique du développement rapide de ces nouveaux matériaux. Les raisons de cet essor sont nombreuses, toutefois c'est la possibilité de générer un matériau unique tant au niveau des propriétés que de la mise en forme qui l'explique. Une revue de la littérature montre que les propriétés des composants et les paramètres de mise en forme sont des plus importants pour déterminer la morphologie et les propriétés des mélanges polymères. Lors du moulage par injection, l'écoulement de type "fontaine" explique en partie la forme et l'orientation des particules de la phase dispersée. Plusieurs théories ont été développées pour déterminer les propriétés élastiques d'un mélange à deux phases. Cependant, la plupart des équations dépendent de la morphologie de la phase dispersée ainsi que

de l'adhésion entre les deux phases.

Pour la fabrication des mélanges, 3 grades de PP et 3 grades de PC ont été choisis. Les diverses combinaisons donnent des concentrations de PC variant de 10% à 40% (en volume) et des rapports de viscosité p variant de 4,55 à 13,7. Les échantillons ont été moulés soit sous forme rectangulaire, à différentes épaisseurs, soit sous forme d'échantillons de traction.

Les résultats expérimentaux montrent que le mélange PP/PC est un mélange immiscible mais dont la nature semi-cristalline du PP en fait un mélange particulier. En effet, les propriétés en traction (module d'élasticité et contrainte au seuil d'écoulement) suivent des équations développées pour des mélanges ayant une adhésion parfaite (Paul et Takayanagi). L'épaisseur a un effet non négligeable sur les propriétés obtenues. La présence d'une ligne de soudure occasionne une très forte diminution de la contrainte et de l'élongation due à l'orientation parallèle des particules de PC au front d'écoulement. L'analyse des propriétés mécaniques et une brève étude morphologique montrent qu'il existe une limite du rapport de viscosité (p=7) autour de laquelle les dimensions de la phase dispersée et les valeurs du module d'élasticité varient.

ABSTRACT

This project follows various studies undertaken at the Industrial Materials Research Institute on a polypropylene/polycarbonate (PP/PC) blend. Four goals were sorted out, that is to say to establish the effects of the dispersed phase concentration, the thickness of the molded part, the weld line and the viscosity ratio.

The first chapter of this study covers some aspects of polymer blends and alloys: several definitions, a review of the rapid growth of these new materials. Reasons of this growth are numerous, however it is the opportunity to generate a unique material as far as properties and processability are concerned that explains it. A literature review shows that properties of components and processing parameters are very important to establish morphology and properties of polymer blends. During injection molding, a fountain flow model explains the shape and the orientation of dispersed phase particles. Several theories were developed to determine elastic properties of a two phase blend. However, most of the equations depend on the dispersed phase morphology and the adhesion between the phases.

To obtain the blends, 3 grades of PP and 3 grades of

PC were chosen. Various combinations give concentration of PC between 10% and 40% (volume) and viscosity ratio between 4,55 and 13,7. Samples were molded in rectangular shape of different thicknesses and in dogbone shape.

Experimental results show that the PP/PC blend is an immiscible blend due to the semi-crystalline nature of PP that makes it a particular blend. As a matter of fact, tensile properties (modulus and yield stress) follow equations developed for blends with perfect adhesion (Paul and Takayanagi). Thickness dependence on properties are not inconsiderable. Weld line reduces considerably tensile strength and elongation due to parallel orientation of PC particles to the melt front. Analysis of mechanical properties and a brief morphological study show that there is a viscosity ratio limit (p=7) around which dimensions of the dispersed phase and values of elasticity modulus, stress and strain change.

REMERCIEMENTS

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à monsieur Bohuslav Fisa, professeur au département de génie mécanique, ainsi qu'à monsieur Basil Favis, chercheur à l'Institut de Génie des Matériaux, tant pour m'avoir permis d'entreprendre cette recherche que pour les conseils et les encouragements reçus.

J'exprime également ma reconnaissance à tous les techniciens du laboratoire de la section Design de Machines, plus particulièrement monsieur Pierre Drouin, ainsi qu'à messieurs Ghislain Chouinard et Christian De Granpré, techniciens à l'Institut de Génie des Matériaux, pour m'avoir beaucoup aidé lors de la préparation des expériences. De plus, je remercie l'Institut de Génie des Matériaux pour m'avoir permis d'utiliser tout le matériel nécessaire à la préparation et la fabrication des mélanges polymères.

TABLE DES MATIÈRES

		PAGE
SOMMAIRE		iv
ABSTRACT		vi
REMERCIEMENTS		viii
LISTE DES FIGURES		xi
LISTE DES TABLEAUX		xv
INTRODUCTION -		1
CHAPITRE I	- CADRE THÉORIQUE	3
I-1	Définitions	3
I-2	Historique et développement	6
I-3	Aspect thermodynamique	11
I-4	Influence des propriétés des composants sur la morphologie des mélanges polymères	15
I-5	Influence des paramètres de mise en forme	19
I-6	Propriétés mécaniques des mélanges polymères	24
I-7	Techniques d'observation microscopique	37
CHAPITRE II	- PARTIE EXPÉRIMENTALE	40
II-1	Matériaux utilisés	40
II-2	Système étudié	44
II-3	Préparation des mélanges et des échantillons	51
II-4	Etude des propriétés mécaniques	54
II-5	Etude morphologique	55

II-6 Résultats 56

CHAPITRE III - DISCUSSION 90

III-1 Concentration de PC 90

III-2 Ecoulement dans la cavité 107

III-3 Rapport de viscosité p 122

CONCLUSION - 128

RÉFÉRENCES - 131

ANNEXE 1 - RÉSULTATS DÉTAILLÉS 136

LISTE DES FIGURES

		PAGE
Figure I-1	- Diagramme de phase	12
Figure I-2	- Remplissage de la cavité rectangulaire - vue de haut	21
Figure I-3	- Écoulement "fontaine" - vue de coté	21
Figure I-4	- Courbes typiques composition-propriété .	25
Figure I-5	- Paramètres contrôlant les propriétés ...	29
Figure II-1	- Diamètre moyen en volume d_v - effet du a) rapport de viscosité p et b) du rapport de couple TR (PC: % volumique) .	45
Figure II-2	- Comparaison entre le diamètre moyen en nombre d_n et en volume d_v (PC: % volumique)	45
Figure II-3	- Diamètre moyen en nombre d_n et en volume d_v - effet de la concentration de PC (% massique)	47
Figure II-4	- Courbes de distribution du diamètre des particules de PC - effet de la concentration de PC (% massique)	48
Figure II-5	- Courbes de distribution du diamètre des particules de PC - effet du rapport de viscosité p pour un mélange à 23% PC (% massique)	49
Figure II-6	- Diamètre moyen en nombre d_n et en volume d_v pour un rapport de viscosité inférieur à 1	49
Figure II-7	- Courbes de traction typiques - effet de la concentration de PC	62
Figure II-8	- Rapport de module E_2/E_1 - effet de la concentration de PC	63
Figure II-9	- Rapport de contrainte $\sigma_{é2}/\sigma_{é1}$ - effet de la concentration de PC	64
Figure II-10	- Rapport d'élongation $\epsilon_{é2}/\epsilon_{é1}$ - effet de la concentration de PC	65

Figure II-11 - Élongation à la rupture - effet de la concentration de PC 66

Figure II-12 - Rapport de module E_{f2}/E_{f1} - effet de la concentration de PC 67

Figure II-13 - Module de traction - effet d'une ligne de soudure 68

Figure II-14 - Contrainte à l'écoulement - effet d'une ligne de soudure 69

Figure II-15 - Élongation à l'écoulement - effet d'une ligne de soudure 70

Figure II-16 - Rapport de module E_2/E_1 - effet du rapport de viscosité p 71

Figure II-17 - Rapport de contrainte $\sigma_{é2}/\sigma_{é1}$ - effet du rapport de viscosité p 72

Figure II-18 - Rapport d'élongation $\epsilon_{é2}/\epsilon_{é1}$ - effet du rapport de viscosité p 73

Figure II-19 - Élongation à la rupture - effet du rapport viscosité p 74

Figure II-20 - Rapport de module E_{f2}/E_{f1} - effet du rapport de viscosité p 75

Figure II-21 - Photographie au centre - surface perpendiculaire au sens de l'écoulement
a: 397-20 p=4,55; b: 407-20 p=5,57; 76
c: 507-20 p=7,02; d: 395-20 p=7,22; 77
e: 405-20 p=8,83; f: 403-20 p=13,7 78

Figure II-22 - Photographie au centre - surface parallèle au sens de l'écoulement
a: 397-20 p=4,55; b: 407-20 p=5,57; 79
c: 507-20 p=7,02; d: 395-20 p=7,22; 80
e: 405-20 p=8,83; f: 403-20 p=13,7 81

Figure II-23 - Photographie au centre - surface perpendiculaire au sens de l'écoulement
a: 407-10 p=5,57; b: 407-30 p=5,57; 82
c: 407-40 p=5,57 83

Figure II-24 - Photographie au centre - surface perpendiculaire au sens de l'écoulement
a: 403-10 p=13,7; b: 403-30 p=13,7; 84
c: 403-40 p=13,7 85

Figure II-25 - Photographie près de la paroi - surface perpendiculaire (Pd) ou parallèle (Pl) au sens de l'écoulement
403-10 p=13,7 a: Pd; b: Pl 86
403-30 p=13,7 c: Pd; d: Pl 87

Figure II-26 - Photographie près de la paroi - surface parallèle au sens de l'écoulement
a: 397-20 p=4,55; b: 393-20 p=11,2 88

Figure II-27 - Photographie à la ligne de soudure
403-40 p=13,7 89

Figure III-1 - Rapport de module E_2/E_1 - effet de la concentration de PC - modèles théoriques 94

Figure III-2 - Rapport de module E_2/E_1 - effet de la concentration de PC - modèle proposé ... 98

Figure III-3 - Rapport de contrainte $\sigma_{é2}/\sigma_{é1}$ - effet de la concentration de PC - modèles théoriques 102

Figure III-4 - Faciès de rupture possibles 104

Figure III-5 - Rapport de contrainte $\sigma_{é2}/\sigma_{é1}$ - effet de la concentration de PC - modèle proposé 106

Figure III-6 - Orientation des particules a: pour une cavité rectangulaire, b: pour une cavité ASTM D638 108

Figure III-7 - Représentation schématique de la répartition des particules (section perpendiculaire à l'écoulement)
a: cavité rectangulaire, 6 mm
b: cavité rectangulaire, 3 mm
c: cavité ASTM D638, 3 mm 109

Figure III-8 - Représentation schématique de la structure 110

Figure III-9 - Représentation schématique de la forme de la phase dispersée pour un mélange PP/PC. a: 90/10, b: 70/30, c: 50/50
d: 30/70, e: 10/90 112

Figure III-10 - Courbes de traction typiques pour les différentes structures présentes 115

Figure III-11 - Orientation des particules à la ligne de soudure 119

Figure III-12 - Représentation schématique de la forme des particules de PC selon le rapport de viscosité p 124

Figure III-13 - Rapport de module E_2/E_1 - effet du rapport de viscosité p - modèle proposé 126

LISTE DES TABLEAUX

PAGE

Tableau I-1 - Exemples de mélange et les améliorations visées 8

Tableau II-1 - Propriétés du polypropylène 41

Tableau II-2 - Propriétés du polycarbonate 42

Tableau II-3 - Autres propriétés du polypropylène et du polycarbonate 43

Tableau II-4 - Mélanges et rapports de viscosité ... 51

Tableau II-5 - Conditions de fabrication lors de l'extrusion et du moulage par injection 53

Tableau II-6 - Résultats des tests de traction pour des échantillons ASTM D647 - effet de la concentration de PC 58

Tableau II-7 - Résultats des tests de flexion pour des échantillons ASTM D790 - effet de la concentration de PC 58

Tableau II-8 - Résultats des tests de traction pour des échantillons ASTM D638 type IV avec ligne de soudure (l.s.) ou sans ligne de soudure 59

Tableau II-9 - Résultats des tests de traction pour des échantillons ASTM D647 avec ligne de soudure (l.s.) ou sans ligne de soudure 59

Tableau II-10 - Résultats des tests de traction pour des échantillons ASTM D647 - effet de l'épaisseur 60

Tableau II-11 - Résultats des tests de traction pour des échantillons ASTM D647 - effet du rapport de viscosité 61

Tableau II-12 - Résultats des tests de flexion pour des échantillons ASTM D790 - effet du rapport de viscosité 61

INTRODUCTION

Les mélanges polymères existent depuis le début du développement des matériaux plastiques. Si toutefois au départ les mélanges étaient peu nombreux, au cours des dix dernières années, ils ne cessent d'augmenter en nombre et en volume de production. Leurs avantages se font sentir dans tous les domaines d'utilisation des matériaux plastiques. Maintenant les mélanges et les alliages polymères ont atteint un niveau d'importance tel que leur étude est considérée comme une partie bien distincte dans la science des polymères.

Au début, les recherches sur les mélanges polymères ont été concentrées sur les procédés de fabrication, puis sur la classification des mélanges et leurs applications possibles. Maintenant les efforts sont tournés vers l'étude de l'influence des propriétés des composants et des paramètres de mise en forme sur la morphologie et les propriétés des mélanges polymères.

Le but de ce travail de recherche est d'explorer les paramètres contrôlant les propriétés mécaniques d'un alliage polymère moulé par injection. Quatre objectifs ont été fixés avant d'entreprendre ce projet, soit de déterminer les

effets de la concentration de la phase dispersée, de l'épaisseur de la pièce moulée, de la présence d'une ligne de soudure et du rapport de viscosité. Ce projet fait suite à une série de travaux entrepris à l'Institut de Génie des Matériaux sur un alliage polypropylène/polycarbonate (PP/PC).

CHAPITRE I

CADRE THÉORIQUE

I-1 Définitions

Dans ce premier chapitre, plusieurs définitions touchant au domaine des mélanges polymères sont énumérées afin d'éviter certaines confusions et d'éclaircir plusieurs points. Ces définitions sont nécessaires, d'autant plus que le manuel de référence "Polymers Handbook 1975" de Brandrup et Immergut [1] n'accorde que trois pages au domaine des mélanges et des alliages polymères malgré son importance reconnue dans le domaine de la recherche ainsi que les applications nombreuses de ces matériaux. Pour les termes "alliage" et "mélange", le dictionnaire donne ces définitions:

-alliage : produit métallique obtenu en incorporant à un métal un ou plusieurs éléments.

-mélange : ensemble résultant de l'union d'éléments divers.

Toutefois lorsque ces termes sont utilisés dans le

domaine des polymères, ils ont une signification plus précise [2,3]:

-mélange polymère: mélange physique de deux ou plusieurs polymères ou copolymères.

-alliage polymère: une classe des mélanges polymères, immiscibles, de nature hétérogène, avec des propriétés interfaciales et une morphologie obtenues par compatibilisation.

-compatibilisation: toute action physique ou chimique qui résulte dans la stabilisation de la morphologie et des propriétés d'un mélange polymère.

-mélange polymère miscible: mélange se comportant comme un système uniphasé jusqu'à de faibles niveaux de dispersion, généralement associé à une enthalpie de mélange inférieure à zéro.

-mélange polymère compatible: terme utilisé pour désigner un mélange ayant un certain attrait commercial, c'est à dire un système homogène, à vue d'oeil, avec des propriétés physiques rehaussées.

-polymère technique: polymère capable d'être mis en

forme à des dimensions stables et précises tout en ayant des propriétés mécaniques élevées lors d'utilisation à des températures au dessus de 100°C.

-mélange polymère technique: mélange montrant des propriétés d'une résine technique, qu'il n'en contienne ou pas.

Les mélanges polymères peuvent être miscible ou immiscible. Les mélanges miscibles sont divisés en mélanges homogènes (mélanges avec le même polymère); par exemple un mélange de polystyrène (PS) et mélanges hétérogènes (mélanges avec des polymères structurellement différents); par exemple un mélange nylon/polyéthylène (PA/PE). Il est à noter que les termes miscible et immiscible sont utilisés dans leur sens thermodynamique.

Parmi les mélanges immiscibles il y a un sous-groupe de mélanges compatibles. La compatibilité indique des mélanges d'une valeur commerciale. Les alliages polymères doivent être considérés comme une sous-classe des mélanges polymères immiscibles, mis en forme lors de l'un des nombreux procédés de compatibilisation qui existent. Les raisons principales de la compatibilisation sont la génération et la stabilisation d'une morphologie qui optimise les performances du produit fini.

I-2 Historique et développement

L'histoire des mélanges polymères remontent au début de l'industrie du caoutchouc; ainsi en 1846, Hancock [4] a découvert que l'amélioration des performances du caoutchouc naturel peut être obtenue grâce à l'addition de poix et de gutta-percha. Au début du vingtième siècle, les mélanges sont devenus importants avec le développement des caoutchoucs synthétiques. En 1942, le premier brevet d'un mélange polymère thermoplastique apparait: polychlorure de vinyle (PVC) mélangé avec du caoutchouc nitrile (NBR). Lors de la période 1970-1980, presque toutes les grandes compagnies se sont intéressées à cette nouvelle possibilité de développement et plusieurs mélanges apparaissent sur le marché: les polyamides super tenaces contenant du caoutchouc (PA/NBR) et les polycarbonates mélangés avec de l'acrylo-butadiène styrène (PC/ABS) par exemple. Depuis 1980, l'apparition de nouveaux mélanges est quatre fois plus rapide que celle de nouveaux polymères.

Avant 1980, les efforts ont été portés au niveau de la compréhension des phénomènes thermodynamiques impliqués et à la classification des mélanges (miscible, immiscible, compatible). Les références traitant en détail ces sujets sont nombreuses [5-13].

Au point de vue de mise en forme les mélanges miscibles sont préférables, mais selon la mécanique de rupture, les mélanges immiscibles compatibilisés (alliages) sont supérieurs lorsque les propriétés mécaniques entrent en jeu. Plus récemment ce sont les relations entre les conditions de mises en forme, les propriétés mécaniques et les aspects morphologiques des mélanges qui sont étudiées.

Pour de nombreuses raisons, le développement de nouveaux matériaux grâce aux mélanges et aux alliages polymères est dans une période de croissance très dynamique. Selon Perron [14] de nouveaux mélanges sont offerts presqu'à chaque semaine afin de remplir des applications bien précises. La possibilité de produire un matériau fait sur mesure avec des propriétés uniques, grâce à la combinaison d'autres matériaux existants, est la principale raison de cette croissance.

Les mélanges avec des résines techniques sont ceux qui sont les plus développés et qui retiennent le plus d'attention. Un taux de croissance de 17% est prévu pour l'utilisation commerciale des mélanges avec des résines thermoplastiques, ce qui représente le secteur le plus actif pour l'industrie des plastiques [2] qui elle n'a qu'un taux de croissance de 5%. De plus les alliages et les mélanges représentent 16% de la consommation des plastiques, soit une

vente de 20 millions de tonnes pour les Etats-Unis en 1985 [15,16].

Souvent les résines techniques sont mélangées avec d'autres résines afin de combler une déficience au niveau de certaines propriétés. En général, les caractéristiques visées sont: la résistance à l'impact, la facilité de mise en forme, la résistance thermique, la résistance chimique et bien sur le coût. Le tableau I-1 donne un exemple pour chaque catégorie.

Tableau I-1 - Exemples de mélange et les améliorations visées [14].

propriété améliorée	mélange	marque de commerce et fabricant
impact	ABS/PVC	Cycovin (Borg-Warner)
mise en forme	PPO[1]/PS	Noryl (General Electric)
résistance à la chaleur	ABS/SMA[1]	Cadon (Monsanto)
résistance chimique	PC/PBT[1]	Xenoy (General Electric)
coût	PC/SMA	Arloy (Arco)

[1]: PBT = polybutylène téréphtalate, PPO = polyphénylène oxyde, SMA = copolymère d'anhydrure maléique et de styrène.

Voici les principales raisons qui poussent les compagnies à créer des mélanges:

- générer un matériau unique tant au niveau des propriétés que de la mise en forme.
- obtenir de meilleures performances avec un investissement raisonnable.
- améliorer les performances de certaines résines coûteuses.
- obtenir des résultats beaucoup plus rapidement plutôt que de développer une nouvelle résine.
- avoir la possibilité d'utiliser la même machinerie de transformation.

Le dernier point est très important car il représente un avantage marqué par rapport aux matériaux composites qui demandent de nouvelles techniques de mise en forme.

En 1985, il y avait au moins 58 mélanges commerciaux produits par 29 compagnies [17]. De plus, il y a à chaque année environ 4500 nouveaux brevets concernant les alliages et les mélanges dont environ 1000 traitant des mélanges contenant des résines techniques. En général ces brevets protègent et révèlent les compositions des mélanges, toutes autres informations concernant les procédés de fabrication sont jalousement gardées.

La préparation des mélanges est produite principalement par des manufacturiers de résines (65%) et des compagnies spécialisées en compoundage (25%), le reste étant directement fait par les fabricants de produits finis [17].

Les mélanges et les alliages peuvent être préparés par mélange mécanique, dissolution dans des solvants, coagulation des mélanges des latex, dissolution d'un polymère dans le monomère de l'autre composant du mélange et par diverses méthodes utilisées dans les systèmes du type IPN ("interpenetrating polymer networks"). De toutes ces méthodes, c'est la première qui prédomine. L'équipement utilisé pour le compoundage se divise en deux catégories: les mélangeurs par lot (mélangeurs internes, calandres) et les mélangeurs continus (extrudeuses: mono-vis et bi-vis) et autres machines spécialisées.

I-3 Aspect thermodynamique

Les alliages polymères sont caractérisés au niveau du comportement de leurs phases qui sont soit miscibles ou immiscibles. En principe, les lois thermodynamiques permettent la prédiction de la miscibilité des polymères.

Les propriétés mécaniques, thermiques et rhéologiques d'un mélange polymère dépendent fortement de son état de miscibilité. Cet état est déterminé par les interactions entre chaque composant du mélange. Ces interactions dépendent des structures physiques et chimiques des composants. Un mélange ne doit pas forcément être miscible pour avoir de bonnes performances, toutefois une bonne adhésion entre les phases est nécessaire pour avoir un produit intéressant.

Les auteurs traitant ce sujet sont nombreux [5-13]. Barlow et Paul [18] couvrent en détail les diverses équations possibles (une vaste revue bibliographique est incluse dans leur travail). Voici un bref aperçu des équations qui gouvernent la compréhension de la miscibilité d'un mélange polymère. Le tout se base dans un contexte thermodynamique à partir de l'énergie libre de mélange de Gibbs, ΔG_m (voir figure I-1).

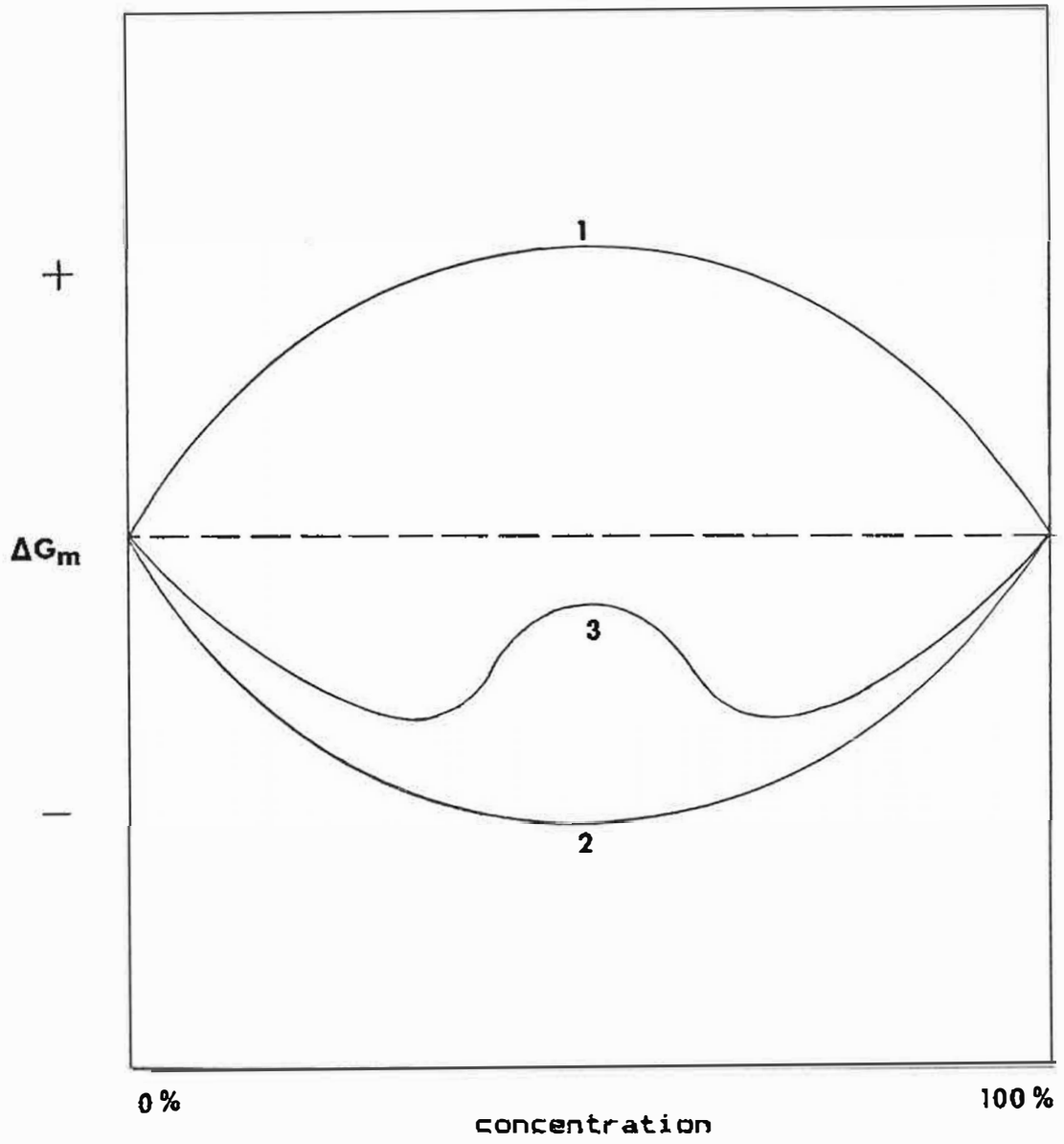


Figure I-1 - Diagramme de phase.

Pour un mélange à deux phases, ΔG_m varie avec la composition. Une miscibilité complète existe uniquement si

$$\Delta G_m < 0 \qquad \text{(I-1)}$$

et

$$\partial^2 \Delta G_m / \partial \phi_2{}^2 > 0 \qquad \text{(I-2)}$$

Ces deux critères sont remplis par la courbe 2 pour toutes les compositions. Les mélanges représentés par la courbe 1 ne respectent pas l'équation I-2, ils sont complétement immiscibles. Pour la courbe 3, les mélanges sont partiellement miscibles (une seule phase amorphe est formée) pour les compositions à la droite et à la gauche des minima. Au centre, un système à deux phases est formé.

Le terme ΔG_m peut être exprimé en fonction des contributions enthalpique et entropique lors du mélange.

$$\Delta G_m = \Delta H_m - T\Delta S_m \qquad \text{(I-3)}$$

ΔH_m : enthalpie de mélange

ΔS_m : entropie de mélange

T : température

Les termes de cette équation sont sujet à beaucoup de recherche pour les exprimer uniquement en fonction des propriétés des composants du mélange.

L'équilibre entre les phases est nécessaire pour pouvoir appliquer les lois thermodynamiques. Cette condition est rarement rencontrée lors des opérations usuelles de mise en forme dont notamment le moulage par injection. Le non-équilibre est du à la grande viscosité des polymères et à la faible stabilité thermique. De plus, le terme de la dérivée seconde de l'équation (I-2) ne dépend pas que de la pression et de la température mais aussi de la polydispersité, des additifs, des impuretés et de l'énergie mécanique fournie. Expérimentalement, il est très difficile de déterminer quantitativement les diagrammes de phase (figure I-1). La théorie existante est plutôt inadéquate pour régir tous les phénomènes impliqués.

I-4 Influence des propriétés des composants sur la morphologie des mélanges polymères

Malgré la grande importance de contrôler la grandeur et la forme de la phase dispersée lors de la mise en forme, peu de travaux ont été consacrés à ce sujet. Lors de cette étape, plusieurs facteurs sont importants pour déterminer la grandeur et la forme finale de la phase mineure: la composition, la tension interfaciale, le temps de mélange, la contrainte en cisaillement, le taux de cisaillement, l'élasticité des composantes et le rapport de viscosité entre la phase dispersée et la matrice.

Il a été montré que le rapport de viscosité est un des facteurs des plus importants pour contrôler la morphologie d'un mélange. Plusieurs chercheurs [19-26] ont étudié l'effet de ce rapport sur divers mélanges. Ainsi, il en résulte que pour des rapports de viscosité élevés, les dimensions des particules de la phase dispersée ainsi que la polydispersité augmentent. Favis et al. [26] ont étudié l'effet du rapport de viscosité p variant de 0,06 à 17,3 pour un mélange PP/PC. Les dimensions de la phase dispersée varient beaucoup selon le rapport de viscosité: le diamètre moyen en volume d_v passe de 1,3 μm pour p=4,5 à 7,7 μm pour p=17,3.

La tension interfaciale joue également un grand rôle dans la détermination des dimensions de la phase dispersée. Son rôle a été étudié par plusieurs auteurs, voici les tendances observées: 1) l'addition d'un compatibilisant tend à diminuer les dimensions de la phase mineure puisque la tension interfaciale est réduite [27], 2) plus l'adhésion augmente plus il devient difficile de distinguer les phases lors d'observations miscroscopique [28], 3) une morphologie finement dispersée peut être obtenue en concentrant l'agent interfaciale dans la phase mineure tout en utilisant un procédé de mélange à deux étapes [29,30]. Wu [24] a trouvé pour un mélange polyamide/caoutchouc que les dimensions des particules sont directement proportionnelles à la tension interfaciale.

Van Oene [31] a étudié les effets de l'élasticité. Il a montré que la contribution de celle-ci, à la tension interfaciale, peut entraîner la phase ayant une plus grande élasticité, à envelopper l'autre phase. Il a de plus montré qu'il est généralement difficile de déformer un matériau ayant une grande élasticité.

Tokita [32] a dérivé des expressions pour l'analyse des dimensions des particules de la phase dispersée dans un mélange. Cette étude est particulièrement intéressante puisqu'elle considère l'effet de la composition sur les

dimensions obtenues. La théorie est basée sur le fait que l'action de mélanger implique une division et une coalescence continuelles des particules dispersées. Les particules atteignent un équilibre lorsque les taux de division et de coalescence s'équivalent.

$$a = [12p\sigma\phi_2/(\pi\sigma_{12})[1+4p\phi_2 \; E_r/(\pi\sigma_{12})] \qquad \text{(I-4)}$$

$a \equiv$ rayon des particules, $\sigma_{12} \equiv$ taux de cisaillement,
$\sigma \equiv$ tension interfaciale, $E_r \equiv$ énergie de rupture,
$\phi_2 \equiv$ fraction volumique de la phase dispersée,
$p \equiv$ rapport de viscosité.

La concentration de la phase dispersée a un effet très marqué sur les dimensions. Ainsi Favis et al. [25] ont montré pour un mélange PP/PC, que le diamètre moyen en volume d_v augmente de 1,2 μm pour 10% PC à 5,8 μm pour 40% PC. Lors de l'inversion de phase des mélanges polymères, la présence d'une morphologie de type co-continue peut être avantageuse. En effet, les deux phases peuvent être sous forme de structure continue (fibreuse ou lamellaire) offrant ainsi une meilleure imperméabilité à certains produits. Toutefois ce genre de structure ne présente que de faibles propriétés mécaniques, dues aux éventuels problèmes de délamination.

Selon l'équation de Taylor [33], la contrainte de cisaillement et le rayon des particules de la phase mineure sont directement reliés.

$$a = 2\sigma(\eta_2+\eta_1)/\alpha\eta_1(19\eta_2/4+4\eta_1) \qquad \text{(I-5)}$$

$\alpha \equiv$ paramètre lié au taux de cisaillement,

$\eta_1 \equiv$ viscosité de la matrice,

$\eta_2 \equiv$ viscosité de la phase dispersée.

Toutefois, tous les résultats expérimentaux de certains auteurs [19,26,34] ne confirment pas la validité de cette équation; en effet, la variation de la contrainte de cisaillement, par un facteur de deux ou trois n'a que peu ou pas d'effet [19,26].

I-5 Influence des paramètres de mise en forme

Plusieurs paramètres choisis lors de la mise en forme des alliages polymères peuvent modifier la morphologie et par le fait même les propriétés. Ce sont la température, la pression d'injection, la vitesse d'injection et la température du moule. Il y a bien sûr la viscosité des polymères en présence, qui joue un rôle important.

Selon les conditions de mise en forme, des sphères, des ellipsoides, des fibres ou des rubans peuvent être obtenus. En général, les dimensions varient de 0.1 μm à 20 μm. Selon certaines conditions, l'obtention de phases dispersées continues est possible. Du comportement rhéologique des mélanges, il est déduit que la morphologie dépend de l'histoire thermique du mélange, donc de la mise en forme. Les propriétés mécaniques étant reliées à la structure des phases, il faut s'attendre à ce que le comportement mécanique d'une pièce dépende donc des procédés de fabrication du mélange et de sa mise en forme. Toutefois le contrôle de ces paramètres est très difficile et reste peu investigué. Comme l'importance commerciale de ces mélanges polymères s'agrandit, il est important de bien comprendre comment contrôler la morphologie lors de la mise en forme.

L'étude de l'écoulement dans la cavité du moule est très importante, car il a un effet des plus marquant sur la structure de la phase mineure et sur les propriétés du mélange. Lorsque le polymère pénètre dans la cavité, il entre en contact avec les parois du moule, il se solidifie instantanément et forme alors une couche solidifiée. Lors de l'avancement du front, la couche s'étend le long des parois et le front se répend circulairement cherchant à atteindre d'abord les parois des cotés puis celles de l'autre l'extrémité. La représentation schématique du remplissage de la cavité (figure I-2) reste toutefois très générale. Tadmor [35] a proposé un modèle appelé écoulement "fontaine" ou "volcan" pour le remplissage d'une cavité (voir figure I-3).

Ho et Salovey [36] ainsi que Thamm [37] ont également suggéré ce modèle pour des mélanges polymères. Selon le profil de vitesse de l'écoulement, les particules au centre de la cavité avance plus rapidement que la vitesse moyenne, jusqu'à ce qu'elles atteignent le front d'écoulement. Puis elles vont s'étirer en poussant le front d'écoulement vers les parois de chaque coté de la cavité où elles vont former une couche solidifiée. L'écoulement se poursuit jusqu'à ce qu'il atteigne le fond de la cavité. L'écoulement de type "fontaine" se répand donc de façon circulaire (tel qu'il est montré à la figure I-2) mais il occasionne une déformation appréciable des particules le long du front d'écoulement et

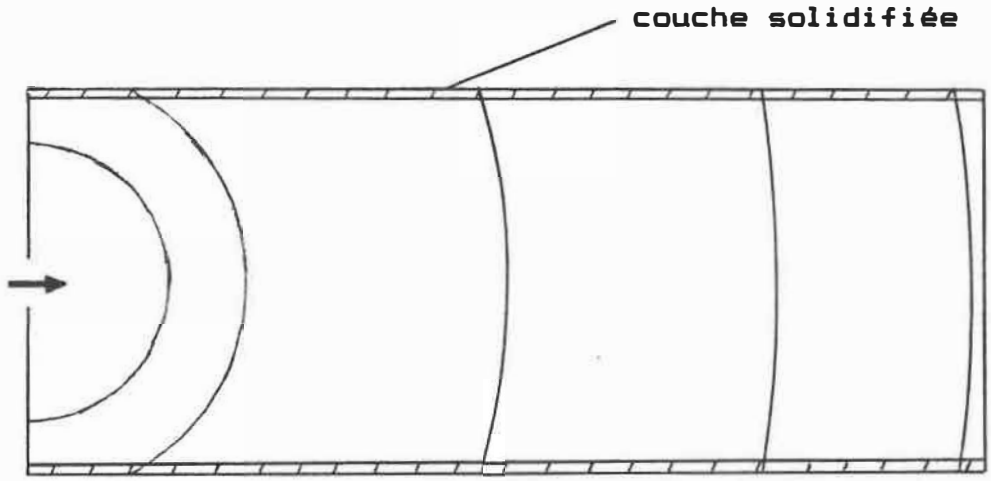


Figure I-2 - Remplissage de la cavité rectangulaire - vue de haut.

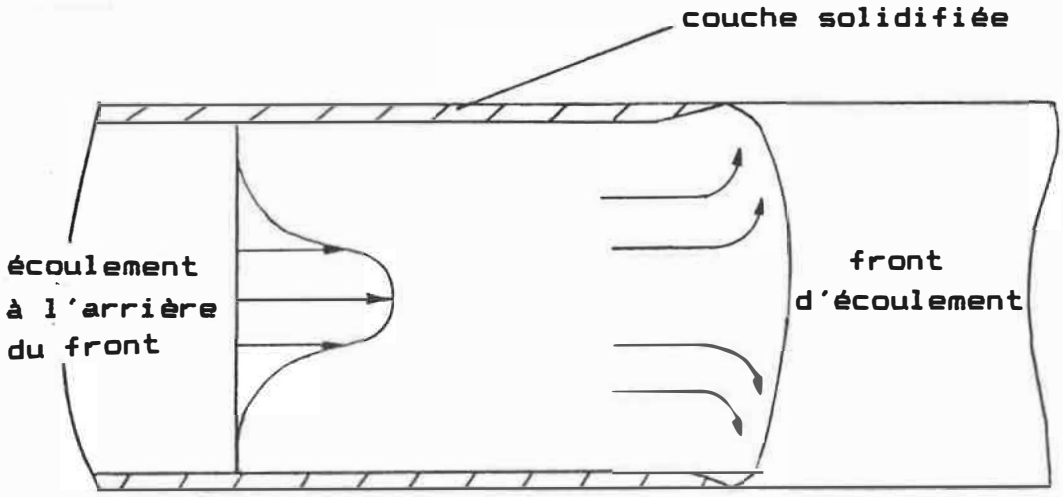


Figure I-3 - Écoulement "fontaine" - vue de coté.

surtout près des parois de la cavité. La force de cisaillement est considérable lorsque l'écoulement entre en contact avec les parois et se solidifie.

A l'intérieur d'une pièce moulée, la morphologie de la phase mineure peut donc varier considérablement. Pour des mélanges PP/terpolymère éthylène-propylène-diène (EPDM), Ho et Salovey [36] ont observé que les goutelettes de EPDM observées au centre de l'échantillon deviennent des rubans étirés dans la direction de l'écoulement à moins de 400 μm de la surface du moule. Karger-Kocsis et al. [21-23] lors de leurs études sur les mélanges PP/EPDM, en sont arrivés aux mêmes résultats et ont déterminé la répartition suivante: 1) une peau extérieure d'environ 5 à 10 μm de PP vierge, 2) une peau intérieure plus épaisse avec des particules fortement orientées et déformées selon le sens de l'écoulement, 3) un noyau riche en particules de forme sphérique. Cielo et al. [38] ont également trouvé des fibres allongées près de la surface et des sphères au centre pour des mélanges PC/PP, même si la viscosité du PC est beaucoup plus élevée que celle du PP. Cet effet est plus prononcé pour des vitesses d'injection plus élevées [23,38].

Pour les mélanges polymères lorsqu'il y a des lignes de soudure (deux fronts d'écoulement entrant en contact [39]), trois phénomènes expliquent les faiblesses mécaniques

rencontrées dans les échantillons moulés [35,40-42]: 1) diffusion lente des molécules des polymères après la jonction des deux fronts écoulement, 2) molécules orientées parallèlement à la ligne de soudure dues à l'écoulement "fontaine", 3) présence d'une entaille en "V" dans l'échantillon due à l'air emprisonné.

I-6 Propriétés des mélanges polymères

La figure I-4 montre les relations typiques qui existent entre les propriétés et la composition du mélange; presque tout est possible. Pour les mélanges miscibles, les propriétés obtenues sont en général proches de celles que l'extrapolation linéaire des propriétés de chaque composant donnerait. La connaissance des lois des mélanges est importante pour déterminer les propriétés des mélanges polymères. Ces lois dépendent de l'état de miscibilité du mélange. Les propriétés des mélanges miscibles sont fonction de la composition et des interactions entre chaque composant du mélange.

Pour un mélange miscible, les interactions exothermiques entre les phases mènent à la formation d'une seule phase donc d'un produit transparent et ayant une seule température de transition vitreuse T_g. L'équation de Flory-Fox permet de prédire T_g du mélange:

$$1/T_g = \phi_1/T_{g1} + \phi_2/T_{g2} \qquad \text{(I-6)}$$

T_{gi} : T_g du composant i

ϕ_i : fraction du composant i

Plus en général, la loi des mélanges donne:

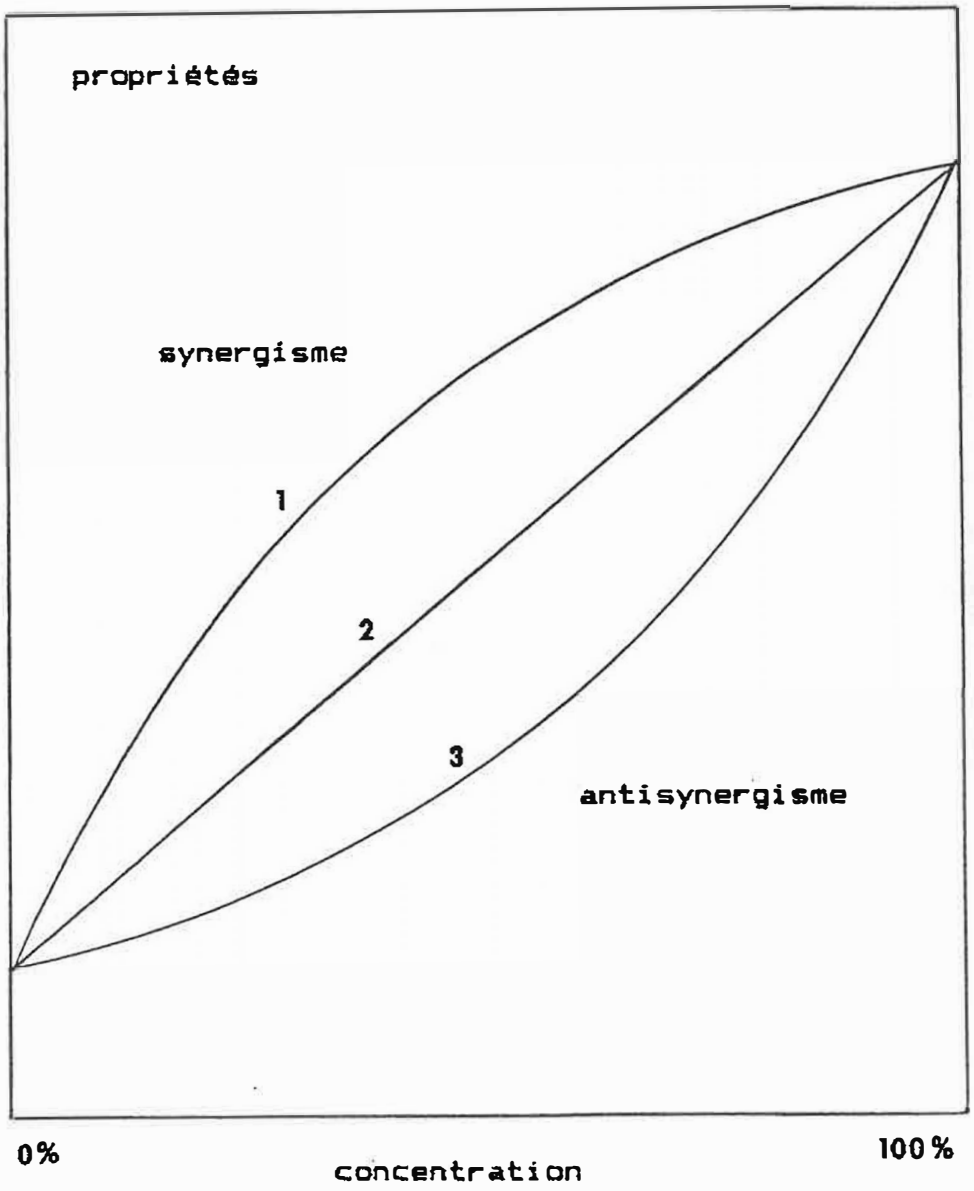


Figure I-4 - Courbes typiques composition-propriété.

$$P = \phi_1 P_1 + \phi_2 P_2 + \phi_1 \phi_2 \Delta P \qquad \text{(I-7)}$$

P_1 : propriété de la matrice

P_2 : propriété de la phase dispersée

ϕ_1 : fraction volumique de la matrice

ϕ_2 : fraction volumique de la phase dispersée

ΔP: déviation par rapport à la loi d'additivité, reliée à la force d'interaction entre les composants.

Pour ΔP positif, la propriété P obtenue est représentée par la courbe 1 (synergisme) de la figure I-4, pour ΔP égal à zéro la propriété est représentée par la courbe 2 (additivité) et pour ΔP négatif par la courbe 3 (anti-synergisme). L'équation (I-7) est valable notamment pour la température de transition vitreuse, la densité, l'indice de réfraction, la constante diélectrique, la conductivité thermique, le module d'élasticité et la viscosité des mélanges liquides.

La grande majorité des mélanges polymères et des mélanges commerciaux sont immiscibles du point de vue thermodynamique. Les mélanges immiscibles ont un avantage au point de vue des propriétés physiques: ils forment un système à plusieurs phases avec une phase dispersée déformable (c'est la différence marquée par rapport aux composites qui

eux ont une phase dispersée rigide). L'interface entre deux phases adjacentes n'est pas clairement définie. Il y a des gradients de composition dont les niveaux dépendent de l'intensité du mélange, de la solubilité des composants et de la compatibilisation. Les propriétés de ces mélanges hétérogènes deviennent donc très difficile à prédire.

Chaque phase d'un mélange entièrement immiscible contient essentiellement un des composants à l'état pur, tandis que les phases d'un mélange partiellement immiscible peuvent contenir un peu de chaque composant du mélange. Pour les mélanges immiscibles, les propriétés dépendent aussi de la composition mais surtout de la morphologie de la phase dispersée donc des interactions entre les phases. L'équation I-7 est utilisée pour déterminer les propriétés. L'équation I-8 est aussi utilisée pour déterminer les propriétés dont notamment la rigidité, la résistance au choc, la couleur, la dureté, l'expansion thermique [43].

$$P = P_1 \ (1 + AB\phi_2) \ / \ (1 - \Phi\phi_2) \qquad \text{(I-8)}$$

A: fonction de la forme et de l'orientation

B: fonction de A, P_1 et P_2

Φ: fonction de la fraction volumique d'entassement maximum

Les propriétés de ces mélanges hétérogènes dépendent fortement des propriétés rhéologiques ainsi que de la méthode de mélange et de la mise en forme. Tout ceci mène à une morphologie particulière donc à des propriétés et des performances spécifiques du produit fini. La figure I-5 montre les corrélations qui existent.

Il est reconnu que la dimension et la distribution de la phase mineure peuvent également affecter considérablement les propriétés mécaniques d'un mélange polymère immiscible. La force d'impact dépend beaucoup de la dimension de la phase dispersée et des distances entre chaque particules. Tout récemment Wu [44] a étudié la résistance à l'impact des alliages nylon-caoutchouc et a trouvé qu'une nette transition ductile-fragile apparait pour une dimension critique des particules lorsque le volume de caoutchouc et l'adhésion caoutchouc-matrice sont constants. Hobbs [45] a developpé un modèle qui prévoit une augmentation non-linéaire dans l'énergie de rupture avec l'addition de grandes particules de caoutchouc à une résine contenant déja beaucoup de petites particules de caoutchouc, suivie d'une chute plus graduelle de cette énergie lorsque le nombre des petites particules diminue (augmentation du rayon moyen). Stell, Paul et Barlow [46] ont montré que lorsque les particules de la phase dispersée sont orientées dans le sens selon

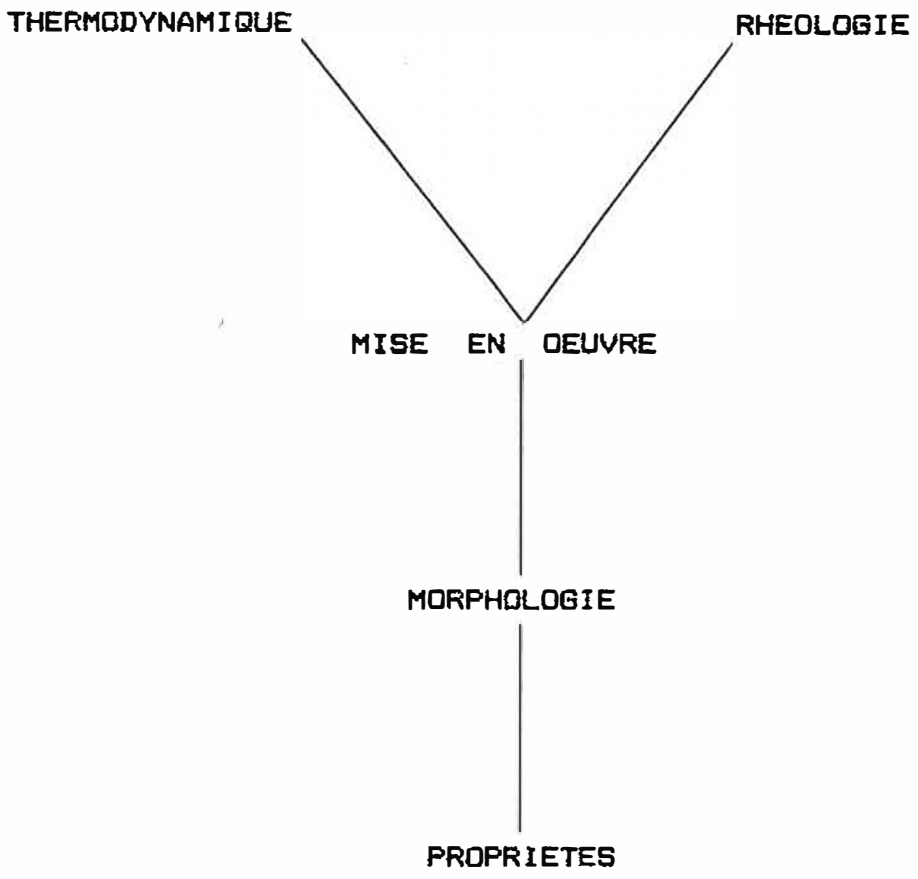


Figure I-5 - Paramètres contrôlant les propriétés.

lequel les tests seront effectués, la ductilité des mélanges est augmenté. Kunori et Geil [47,48] ont étudié les valeurs du module d'élasticité et de la contrainte pour des mélanges à matrice PC. La variation de la morphologie observée ainsi que la différence de nature des interfaces modifient grandement les propriétés obtenues.

Les calculs des propriétés élastiques d'un mélange à deux phases, en se basant sur les propriétés des composants en présence, sont connus depuis longtemps. De nombreuses théories et équations pour des cas bien définis ont été proposées. Manson et Sperling [7] ainsi que Nielsen [43] ont présenté des revues sur ce sujet. La plupart des équations sont basées sur deux suppositions: 1) il y a une parfaite adhésion entre la matrice et la phase dispersée; 2) la phase dispersée est de forme sphérique. La première supposition signifie que lorsqu'une contrainte est appliquée au système, il y ait un déplacement continu même à la limite des deux phases. Toutefois, il appert que souvent l'adhésion entre la matrice et la phase dispersée n'est pas parfaite.

Une des premières équations développées le fut par Einstein [49] pour déterminer la valeur du module d'élasticité en traction E. Elle n'est valide qu'à de faibles concentrations et que pour une phase dispersée

beaucoup plus rigide que la matrice. Pour une adhésion parfaite entre les phases:

$$E = E_1 \ (1 + 2{,}5\phi_2) \qquad \text{(I-9)}$$

Et pour une adhésion nulle:

$$E = E_1 \ (1 + \phi_2) \qquad \text{(I-10)}$$

Smallwood [50] a amélioré l'équation d'Einstein dans le cas d'une adhésion parfaite:

$$E = E_1 \ (1 + 2{,}5\phi_2 + 14{,}2\phi_2{}^2) \qquad \text{(I-11)}$$

Sato et Furukawa [51] ont développé une théorie où pour une adhésion parfaite l'équation donne:

$$E = E_1 \ [1 + 0{,}5\phi_2{}^{2/3}/(1 - \phi_2{}^{1/3})] \qquad \text{(I-12)}$$

Lorsqu'il y a faible adhésion entre les phases et qu'une contrainte est appliquée alors il y a séparation de phases: la matrice se déforme, formant des cavités elliptiques autour des inclusions. Pour un système où il n'y a aucune adhésion entre les phases, $\tau = 1$ dans l'équation I-13.

$$E = E_1 \quad [1 + 0{,}5\phi_2^{2/3}/(1 - \phi_2^{1/3})] \; (1 - \phi_2\tau/3C_1) - \phi_2^{2/3}\tau/3(1 - \phi_2^{1/3})C_1 \qquad \text{(I-13)}$$

$$C_1 = (1 + \phi_2^{1/3} - \phi_2^{2/3})/(1 - \phi_2^{1/3} + \phi_2^{2/3})$$

Kerner [52] a developpé un modèle donnant la valeur du module de cisaillement G pour un composite. Uemura et Takayanagi [53] ont transformé les équations de Kerner en utilisant l'équation suivante:

$$E = 2G(1 + \nu) \qquad \text{(I-14)}$$

Cette transformation est possible si les coefficients de Poisson de la matrice et de la phase dispersée ont la valeur de 0,5 (donc valable pour des matériaux incompressibles). Cependant Kunori et Geil [47] ont prouvé que lorsque les valeurs du coefficient de Poisson de la matrice et de la phase dispersée sont égales et proches de 0,5, les équations de Takayanagi sont valables. Ainsi pour un système avec une adhésion parfaite entre les phases, ils ont obtenu:

$$E = E_1 \; (C_1E_1 + C_2E_2 - C_1(E_1 - E_2)\phi_2) / (C_1E_1 + C_2E_2 + C_2(E_1 - E_2)\phi_2) \qquad \text{(I-15)}$$

$$C_1 = 7 - 5\nu_1 \qquad C_2 = 8 - 10\nu_1$$

Lorsqu'il y a présence de trous dans la matrice (plastique alvéolaire ou mousse) ou que la phase dispersée est sous

forme de particules sphériques libres dans des trous, l'équation précédente est transformée en extrapolant E_2 à zéro. Elle donne alors:

$$E = E_1 \; [C_1 (1 - \phi_2)/(C_1 + C_2 \phi_2)] \qquad \text{(I-16)}$$

Pour des faibles proportions, cette équation peut être simplifiée et donne:

$$E = E_1 \; (1 - [15(1 - \nu_1)\phi_2/(7 - 5\nu_1)]) \qquad \text{(I-17)}$$

Paul [54] a utilisé la théorie d'élasticité pour trouver une limite inférieure et une limite supérieure pour le module d'un mélange à deux phases. Pour un système ayant une adhésion parfaite entre les phases, les limites sont:

$$E \leq (1 - \phi_2)E_1 + \phi_2 E_2 \qquad \text{(I-18)}$$

$$E \geq E_1 E_2/(E_2 (1 - \phi_2) + E_1 \phi_2) \qquad \text{(I-19)}$$

Paul a également trouvé une solution approximative en supposant que la matrice et la phase dispersée ont le même coefficient de Poisson.

$$E = E_1 \; [E_1 + (E_2 - E_1)\phi_2^{2/3}] \\ /[E_1 + (E_2 - E_1)\phi_2^{2/3}(1 - \phi_2^{2/3})] \qquad \text{(I-20)}$$

Lorsqu'il y a présence de trous dans la matrice (mousse) ou que la phase dispersée est sous forme de particules sphériques libres dans des trous, la solution approximative devient:

$$E = E_1 \; [(1 - \phi_2^{2/3})/(1 - \phi_2^{2/3}(1 - \phi_2^{2/3}))] \qquad \text{(I-21)}$$

A comparer au nombre de théories développées et d'auteurs impliqués pour la prévision du module d'élasticité en traction d'un alliage à deux phases, la théorie pour la contrainte σ reste peu investiguée. Nielsen [43] et Leidner [55] ont couvert ce sujet et ils ont déterminé des équations de contraintes reliées à la concentration volumique par la surface de la phase dispersée pour une section perpendiculaire à l'écoulement. Toutefois les équations de ces deux auteurs divergent sur ce point, en ce sens que l'un considère que la surface A_2 de la phase dispersée dépend de la concentration ϕ_2 et l'autre que A_2 dépend de $\phi_2^{2/3}$. Kunori et Geil [48] ont trouvé, d'après leurs mesures expérimentales, que pour des concentrations allant jusqu'à 50%, la surface pouvait varier selon ϕ_2 pour un mélange PC/PS et selon $\phi_2^{2/3}$ pour un mélange PC/PEHD.

L'équation de Leidner s'écrit comme suit:

$$\sigma = \sigma_1 (1 - \phi_2) \qquad \text{(I-22)}$$

L'équation de Nielsen s'écrit:

$$\sigma = \sigma_1 (1 - \phi_2^{2/3}) S \qquad \text{(I-23)}$$

S est facteur de concentration de contraintes et S est égal à 1 lorsqu'il n'y a pas de concentration de contraintes. Nicolais et Narkis [56] ont proprosé un modèle dérivé de l'équation précédente pour un mélange sans adhésion entre les phases:

$$\sigma = \sigma_1 (1 - 1.21\phi_2^{2/3}) \qquad \text{(I-24)}$$

Nielsen [43] a également suggéré une équation pour les plastiques alvéolaires:

$$\sigma = \sigma_1 \; e^{(-a\phi 2)} \qquad \text{(I-25)}$$

a est une constante qui varie selon la matrice utilisée.

La surface couverte par la phase dispersée peut être directement mesurée par des observations microscopiques. L'équation suivante peut donc être utilisée:

$$\sigma = \sigma_1 (1 - A_2) \qquad \text{(I-26)}$$

Aux équations I-27 et I-28, il est considéré que la phase dispersée contribue à l'amélioration du module. Elles s'associent aux équations des lois d'additivité formulées par Paul [57] (I-18 et 19) pour le module d'élasticité.

$$\sigma \leq \sigma_1 (1 - \phi_2) + \sigma_2 \phi_2 \qquad \textbf{(I-27)}$$

$$\sigma \geq \sigma_1 \sigma_2 / (\sigma_2 (1 - \phi_2) + \sigma_1 \phi_2) \qquad \textbf{(I-28)}$$

L'application des équations présentées dépend donc fortement de la morphologie du mélange (forme et dimensions de la phase dispersée) ainsi que la nature de l'interface entre les deux phases.

I-7 Techniques d'observation microscopique

Une des principales tâches de l'observation microscopique des mélanges polymères immiscibles est de pouvoir bien distinguer les phases en présence. Ceci est d'autant plus important si des techniques d'analyse d'image sont utilisées pour obtenir des informations quantitatives. Il y a plusieurs techniques d'observations qui existent pour caractériser les mélanges [57-59], dont notamment la miscroscopie optique, la miscroscopie électronique en transmission et la miscroscopie électronique à balayage.

La microscopie optique peut être utilisée lorsque la phase mineure est plus grande que 0,5 μm; de bons contrastes peuvent être alors obtenus. Toutefois pour les analyses quantitatives, cette méthode n'est pas recommandée puisqu'elle ne donne pas de bonne résolution pour pouvoir analyser les dimensions des particules. Plusieurs techniques sont utilisées pour améliorer le contraste: 1) augmenter la température de l'échantillon près de la température de ramolissement d'une des composantes sur une plaque chauffante, 2) utiliser des vapeurs pour colorer la phase mineure, 3) utiliser des solvants volatiles sur des échantillons microtomés pour dissoudre la phase mineure, 4) placer l'échantillon dans de l'huile entre deux plaquettes afin de diminuer la réflection de la lumière en surface, 5)

traiter thermiquement l'échantillon microtomé afin de diminuer les contraintes résiduelles.

La microscopie électronique est la méthode recommandée lorsque les dimensions des particules sont de l'ordre des dixièmes de micromètre. L'utilisation de la microscopie électronique en transmission demande des préparations minutieuses: des échantillons de moins de 100 nm sont nécessaires.

La miscroscopie électronique à balayage est utilisée lorsque la phase mineure est moins grande que 0.5 μm. La préparation est simple, il suffit de casser l'échantillon sous azote liquide. S'il y a une bonne adhésion entre les phases, une entaille est nécessaire pour s'assurer que le plan de rupture soit à l'interface. Malgré cela, la rupture peut se faire sur plusieurs plans ou suivre les points les plus faibles et ne pas bien représenter la morphologie de l'échantillon. Alors pour obtenir de bons résultats, l'échantillon peut être découpé au microtome avec une lame en verre ou en diamant. Il est important que le découpage se fasse en dessous de la température de transition vitreuse de la matrice sinon il y aura un phénomène de labourage des particules de la phase dispersée dans la matrice, ce qui rendra les observations difficiles voire même impossible. Après le découpage, l'échantillon doit être trempé dans un

solvant choisi en fonction de la phase mineure puis observé au microscope. Cette technique est excellente lorsque la phase dispersée est sous forme de sphères.

CHAPITRE II

PARTIE EXPÉRIMENTALE

II-1 Matériaux utilisés

Le polypropylène est un des plastiques les plus répandus sur le marché. Il possède plusieurs propriétés très intéressantes (notamment en fatigue de flexion) qui lui permettent d'être utilisé pour de nombreuses applications. Il offre une très grande résistance aux solvants et aux agents chimiques. Il possède également une excellente résistance à la fissuration sous contrainte. Sa plage de températures d'injection (160 °C à 240 °C) en fait un matériau simple à mouler.

Le polycarbonate est un plastique qui possède de très bonnes propriétés mécaniques, surtout en traction, avec un module d'élasticité élevé et un comportement quasi-élastique jusqu'à la rupture. Il a de plus une excellente résistance aux chocs, même à froid. Il a une grande plage d'utilisation en température (-100 °C à +135 °C). Il se prête bien au moulage par injection, cependant il nécessite une pression d'injection élevée car sa viscosité même à l'état fondu reste très élevée.

Pour les expériences qui ont été réalisées, 3 grades de polypropylène (PP) et 3 grades de polycarbonate (PC) sont utilisés. Les polypropylènes Pro-Fax 6331, PD-893 et PD-888 proviennent de Himont Canada. Il est à noter que pour plus de facilité lors de la fabrication des mélanges, les grades choisis sont sous forme de granules. Les propriétés des grades choisis sont identiques à celles des grades 6301, 6501 et 6701 plus couramment utilisés. Les polycarbonates Merlon M-39, M-40 et M-50 proviennent de Mobay Corp.

Les propriétés concernant ces résines sont listées dans les tableaux qui suivent.

Tableau II-1 - Propriétés du polypropylène.

Masse volumique[1]	0,9	g/cm^3
Contrainte au seuil d'écoulement[1]	35	MPa
Elongation au seuil d'écoulement[1]	9-13	%
Elongation à la rupture[1]	80 - 300	%
Module d'élasticité en flexion[1]	1700	MPa
Température de fusion[1]	168	°C
Retrait[1]	2	%
Coefficient de Poisson[2]	0,4	

[1] : valeur obtenue du fabricant, [2] : "Polymer Handbook" [1].

Tableau II-2 - Propriétés du polycarbonate.

Masse volumique[1]	1,20	g/cm^3
Contrainte au seuil d'écoulement[1]	62	MPa
Elongation au seuil d'écoulement[1]	8	%
Elongation à la rupture[1]	120	%
Module d'élasticité en traction[1]	2300	MPa
Température de fusion[1]	240	°C
Retrait[1]	0,6	%
Coefficient de Poisson[2]	0,39	

Pour les extrudeuses et les presses à injection utilisées à des faibles vitesses de rotation de la vis, le taux de cisaillement est près de la valeur de 100 s^{-1}. Donc les valeurs du tableau II-3 peuvent être utilisées.

[1] : valeur obtenue du fabricant, [2] : "Polymer Handbook" [1].

Tableau II-3 - Autres propriétés du polypropylène et du polycarbonate.

	Indice de fluidité[1] (g/10 min)	densité à 250 °C (g/cm^3)	viscosité dynamique[2] à 100 rad/s et 250 °C (Pa.s)
Polypropylène			
6301	10	0,75	$1,60 \times 10^2$
6501	4	0,75	$2,48 \times 10^2$
6701	0,8	0,75	$3,93 \times 10^2$
Polycarbonate			
M-39	18	1,08	$17,9 \times 10^2$
M-40	9	1,08	$21,9 \times 10^2$
M-50	4,5	1,08	$27,6 \times 10^2$

La densité et la viscosité dynamique ont été mesurées à 250 °C, car c'est la température imposée à la buse d'injection lors du moulage des échantillons. Cette température a été choisie afin de minimiser la dégradation thermique du PP et de plus, à cette température, le PC se prête relativement bien au moulage par injection.

[1] : valeur obtenue du fabricant, [2] : valeur obtenue de Favis et al. [25].

II-2 Système étudié

Les types de mélanges PP/PC étudiés lors de ce travail sont les mêmes que ceux utilisés par Favis et al. [25,26] pour leurs travaux. Favis et ses collaborateurs ont étudié les facteurs contrôlant la dimension de la phase mineure et l'effet du rapport de viscosité sur la morphologie pour un mélange PP/PC. Seul le procédé de transformation finale diffère: ils ont utilisé un mélangeur interne de type Brabender, à 250 °C, et ont refroidi l'échantillon mis sous forme de bloc dans de l'eau glacée. Ils ont ensuite procédé à une analyse morphologique poussée: utilisation de la miscroscopie optique et électronique à balayage ainsi que d'une technique d'analyse d'image. Les résultats de Favis et al. sont présentés en détail car ce projet fait suite à leurs travaux et permet de vérifier l'importance de la concentration de la phase dispersée ainsi que celle du rapport de viscosité pour le même mélange moulé par injection.

Tel que montré aux figures II-1 et II-2, le rapport de viscosité a un effet très marqué sur les dimensions de la phase mineure: le diamètre moyen en volume d_v passe de 3,5 à 11 μm pour une concentration de 23% PC. Le diamètre moyen en nombre d_n augmente de façon linéaire avec le rapport de viscosité, sans être affecté par la concentration en PC.

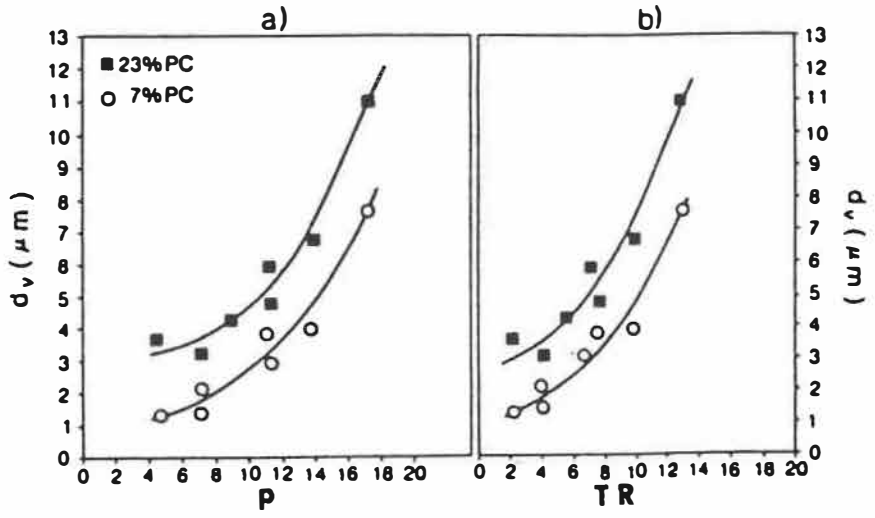


Figure II-1 - Diamètre moyen en volume d_v - effet du **a)** rapport de viscosité p et **b)** du rapport de couple TR (PC: % volumique)**[26]**.

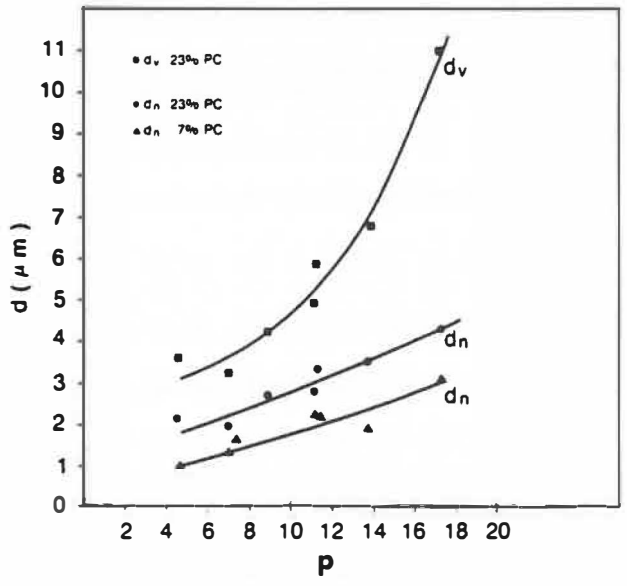


Figure II-2 - Comparaison entre le diamètre moyen en nombre d_n et en volume d_v (PC: % volumique)**[26]**.

La figure II-1 montre qu'il y a une bonne corrélation entre le rapport de viscosité et le rapport de couple. La figure II-3 représente la variation des diamètres d_v et d_n des particules de la phase mineure pour des concentrations de PC de 5% à 95%. L'inversion de phase se situe autour de 50% PC. A cette concentration, les auteurs ont noté que la structure est constituée des deux phases, mais sous forme de fibres continues (structure co-continue) avec ou sans particules de phase dispersée selon la viscosité de la matrice.

La variation de la polydispersité se remarque à la figure II-3: les courbes de d_v et d_n se rapprochent avec la diminution de la concentration de la phase dispersée. Cette observation est plus nette à la figure II-4 où la distribution complète du diamètre des particules, pour une concentration de PC allant de 5% à 40%, est représentée. La figure II-5 représente la distribution pour une concentration avec plusieurs rapports de viscosité. Ces deux figures indiquent bien deux points importants: la polydispersité s'élargit pour des concentrations élevées et pour des rapports de viscosité élevés.

Des résultats ont également été obtenus pour des mélanges PC/PP, donc avec des rapports de viscosité inférieurs à 1 (voir figure II-6). Selon la concentration,

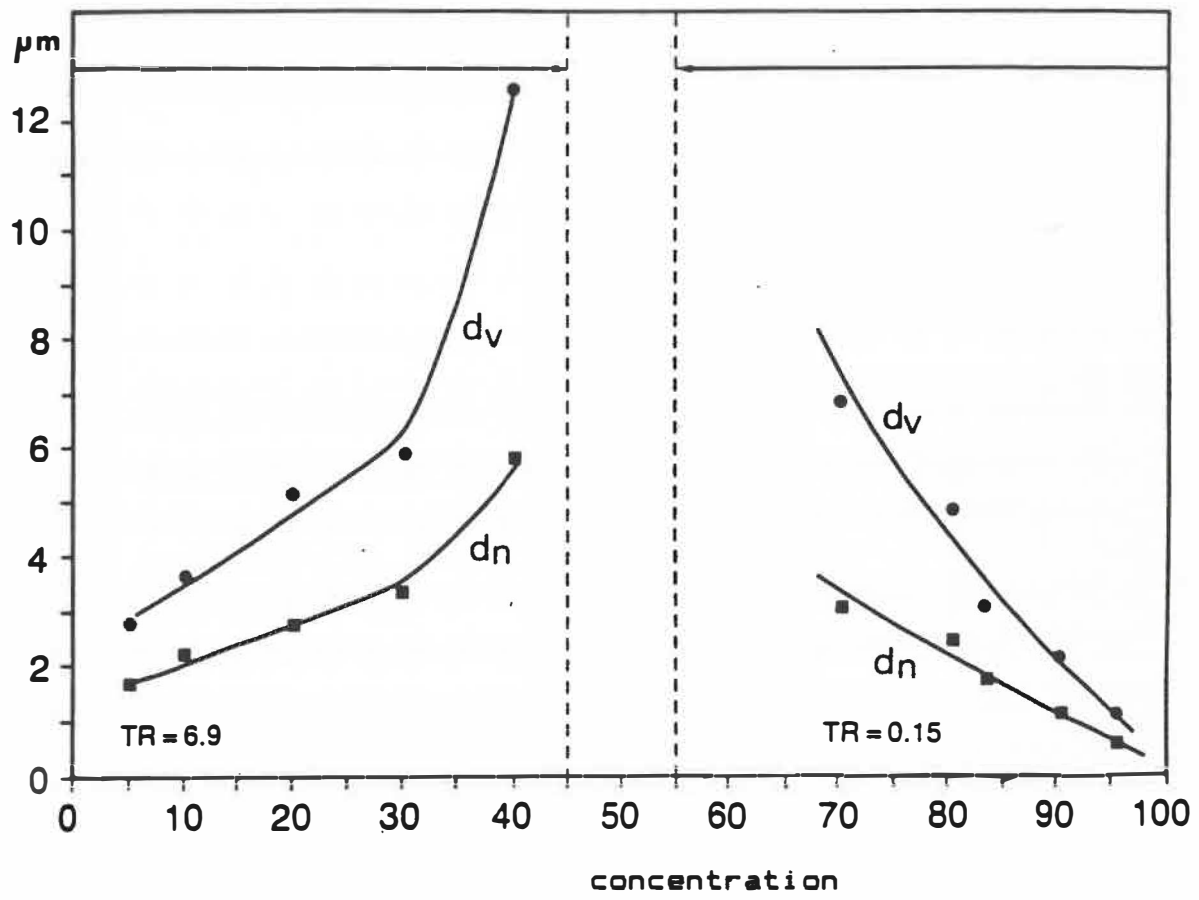


Figure II-3 - Diamètre moyen en nombre d_n et en volume d_v - effet de la concentration de PC (% massique) [25].

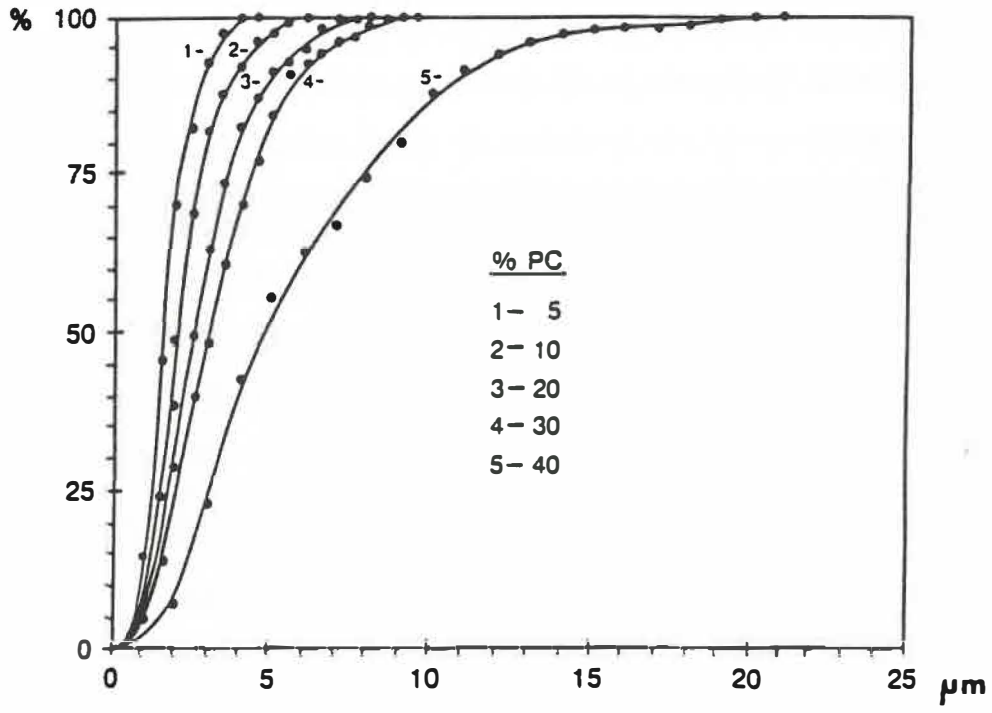


Figure II-4 - Courbes de distribution du diamètre des particules de PC - effet de la concentration de PC (% massique) [25].

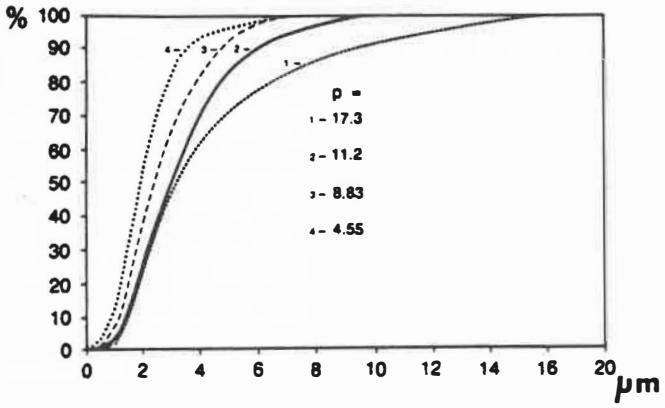


Figure II-5 - Courbes de distribution du diamètre des particules de PC - effet du rapport de viscosité p pour un mélange à 23% PC (% massique) [26].

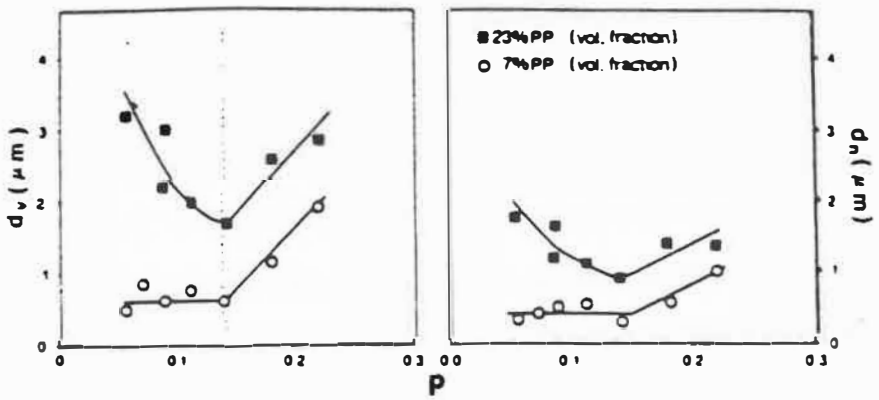


Figure II-6 - Diamètre moyen en nombre d_n et en volume d_v pour un rapport de viscosité inférieur à 1 [26].

les valeurs des diamètres moyens d_v et d_n ont tendance à diminuer ou à rester constantes jusqu'à la valeur de 0,15 du rapport de viscosité. Au dessus de cette valeur, les diamètres moyens augmentent linéairement. Favis et al. en sont venus à la conclusion qu'il existe pour ces mélanges des limites supérieure et inférieure du rapport de viscosité au delà desquelles toute déformation devient difficile.

II-3 Préparation des mélanges et des échantillons

Plusieurs mélanges ont été fabriqués, en voici la liste avec les abréviations qui seront utilisées par la suite, ainsi que la valeur du rapport de viscosité p.

Tableau II-4 - Mélanges et rapports de viscosité.

	phase dispersée					
matrice	M-39		M-40		M-50	
	p	#	p	#	p	#
6331	11,2	393	13,7	403	--	
PD-893	7,22	395	8,83	405	--	
PD-888	4,55	397	5,57	407	7,02	507

Des mélanges avec des concentrations variant de 10% à 40% (en volume) ont été fabriqués. Les diverses combinaisons PP/PC donnent des rapports de viscosité p variant de 4,55 à 13,7. Ainsi, 403-20 représente un mélange avec la matrice polypropylène 6331 et la phase dispersée polycarbonate M-40 à une concentration de 20% et ayant un rapport p de 13,7. Deux autres mélanges (395 et 507) ont été fabriqués avec une concentration de PC de 80%. Le PC devient donc la matrice et le rapport p a la valeur de 0,14 pour ces deux mélanges.

La première étape du processus de préparation est le mélange à sec des granules à l'aide d'un mélangeur mécanique afin d'assurer le plus possible l'homogénéité des mélanges lors des étapes suivantes. Les mélanges ont été faits avec les proportions calculées selon les masses volumiques des constituants, à 250 °C. La deuxième étape consiste à sécher ces mélanges, dans un four ventilé pendant au moins 16 heures à 90 °C, pour minimiser la dégradation du PC lors de la mise en forme. La troisième étape est l'extrusion des mélanges, avec une extrudeuse bi-vis Werner Pfleiderer ZSK 30, dont la température à la filière est de 250 °C. A la sortie de l'extrudeuse, les joncs sont refroidis dans de l'eau à température ambiante puis granulés. Avant de passer à la préparation des échantillons, il faut de nouveau sécher les granules. Les échantillons ont été moulés à l'aide d'une presse à injection Engel ES 150/70 ou Battenfeld 750/300. Cette étape est de loin la plus longue vue la quantité de mélanges impliqués et le nombre d'échantillons différents à produire. A la buse d'injection, la température a été fixée à 250 °C. Les échantillons ont été moulés soit sous forme rectangulaire (12,5 cm x 3 cm) à différentes épaisseurs (approximativement 6 mm, 3 mm et 1,6 mm), soit sous forme d'échantillon de traction ASTM 638 type IV d'épaisseur 1,6 mm. Le tableau suivant donne plus de détails au sujet de la préparation des échantillons.

Tableau II-5 - Conditions de fabrication lors de l'extrusion et du moulage par injection.

Extrudeuse bi-vis Werner Pfleiderer ZSK 30

Profil de température: 230/235/240/245/245/250 °C

Vitesse de la vis: 200 t/min

Alimentation à la trémie Acrison de telle sorte que le couple soit de 70-75% pour la vitesse de vis choisie.

Pour minimiser la dégradation: atmosphère d'azote à la trémie et vide à la fin de la vis.

Presse à injection Engel ES 150/70 ou Battenfeld 750/300

Profil de température: 230/235/240/250 °C

Vitesse de la vis: 100 t/min

Vitesse d'injection: 20 mm/s

Pression de maintien: 50 bars

Pression de retour: 20 bars

Temps de maintien: 20 s (6 mm) - 10 s (3 mm)

Temps de refrodissement: 70 s (6 mm) - 35 s (3 mm)

Température du moule: 40 °C

Atmosphère d'azote à la trémie d'alimentation.

II-4 **Etude des propriétés mécaniques**

Les tests de traction ont été faits selon les normes ASTM D638 et D647 sur un appareil de traction JJ M30K. Pour tous les tests, une vitesse de 50 mm/min a été utilisée. Dans la plupart des cas, la déformation a été mesurée à l'aide d'un extensomètre TX 25. Les échantillons de traction du type ASTM D647 ont été usinés à partir des échantillons de forme rectangulaire.

Les tests de flexion ont été réalisés selon les procédure prescrite par la norme ASTM D790 sur un appareil JJ T22K. Un appui trois points et un capteur de déplacement ont été utilisés. Là encore les échantillons préscrits par cette norme ont été usinés à partir des échantillons de forme rectangulaire.

II-5 **Observation microscopique**

Les observations morphologiques ont été réalisées à l'aide d'un microscope électronique à balayage (JEOL 820). Le milieu des échantillons rectangulaires ont été fracturés sous azote liquide puis recouverts sous vide d'une couche d'or et de palladium. Les photos représentent des surfaces, soit perpendiculaires soit parallèles au sens de l'écoulement.

II-6 **Résultats**

Les résultats sont présentés en trois parties. A la première partie, sept tableaux (II-6 à II-12) présentent la majeure partie des résultats obtenus lors des expériences. (Les résultats détaillés concernant cette partie sont aux annexes 1.1 et 1.3.). Les résultats ont été répartis dans différents tableaux selon quatre variables:

-concentration de PC,
-ligne de soudure,
-épaisseur de l'échantillon,
-rapport de viscosité.

Il est important de bien noter que le rapport de viscosité p est une valeur relative mesurée sur de l'équipement rhéologique séparée. Le rapport de viscosité actuel de l'alliage lors du moulage par injection n'a pas été calculée.

En deuxième partie de ce chapitre, 14 graphiques (figures II-7 à II-20) traitant les résultats de la première partie, sont présentés. La plupart des propriétés représentées dans ces graphiques le sont sous forme de rapport **"mélange/matrice"** afin de mieux visualiser les résultats obtenus, d'autant plus que les propriétés de base des trois

matrices utilisées varient quelque peu. Les figures II-13, II-14 et II-15 présentent une comparaison entre les résultats obtenus des échantillons ASTM D647 et des échantillons ASTM D638 type IV. Les résultats présentés aux figures II-11 et II-19 doivent être considérés dans un contexte qualitatif puisque les valeurs proviennent de tests réalisés sans extensiomètre, il s'agit donc de valeurs approximatives. Les courbes tracées lors de ces tests sont fournies à l'annexe 1.2. Et finalement en dernière partie, les photos prises lors des observations microscopiques sont présentées: en tout 25 photos (figures II-21 à II-27) ajoutant des arguments qualitatifs lors des différents points apportés à la discussion au chapitre suivant.

Tableau II-6 - Résultats des tests de traction pour des échantillons ASTM D647 - effet de la concentration de PC.

mélange	rapport p	contrainte $\sigma_é$ (MPa)	élongation $\epsilon_é$ (%)	module d'élasticité E (MPa)
PD888	-	30,6 ±0,1	11,1 ±0,3	1087 ±39
407-10	5,57	30,0 ±0,2	8,9 ±0,3	1191 ±63
407-20	5,57	30,2 ±0,2	8,1 ±0,2	1245 ±10
407-30	5,57	32,3 ±0,2	7,3 ±0,2	1426 ±59
407-40	5,57	34,5 ±0,2	6,5 ±0,4	1522 ±83
6331	-	31,9 ±0,3	10,6 ±0,3	1174 ±46
403-10	13,7	30,1 ±0,2	8,8 ±0,4	1216 ±56
403-20	13,7	30,7 ±0,2	7,5 ±0,2	1357 ±13
403-30	13,7	32,5 ±0,2	7,3 ±0,4	1369 ±92
403-40	13,7	32,7 ±0,2	6,9 ±0,8	1440 ±42
507-80	7,02	46,5 ±0,7	6,2 ±0,5	1737+284
395-80	7,22	44,5 +0,4	6,2 ±0,3	1598 ±80

Tableau II-7 - Résultats des tests de flexion pour des échantillons ASTM D790 - effet de la concentration de PC.

mélange	rapport p	module d'élasticité E_f (MPa)
PD888	-	1130 ±19
407-10	5.57	1301 ±11
407-20	5.57	1390 ±8
407-30	5.57	1508 ±24
407-40	5.57	1625 ±20
6331	-	1125 ±17
403-10	13.2	1336 ±45
403-20	13.2	1447 ±30
403-30	13.2	1561 ±16
403-40	13.2	1614 ±19

Tableau II-8 - Résultats des tests de traction pour des échantillons ASTM D638 type IV avec ligne de soudure (l.s.) ou sans ligne de soudure.

mélange	contrainte $\sigma_é$ (MPa)	élongation $\epsilon_é$ (%)	module d'élasticité E (MPa)
6331	30,6 ±0,4	11,3 ±0,2	988 ±58
403-20	34,6 ±0,3	7,3 ±0,2	1324 ±26
403-30	36,9 ±1,0	7,2 ±0,3	1357 ±42
403-40	39,8 ±1,2	6,5 ±0,2	1555 ±34
6331 ls	24,9 ±0,6	11,0 ±0,4	982 ±49
403-10 ls	19,2 ±0,9	2,6 ±0,4	1112±113
403-20 ls	12,6 ±0,2	1,3 ±0,2	1206 ±98
403-30 ls	8,2 ±0,4	0,9 ±0,2	1198 ±80

Tableau II-9 - Résultats des tests de traction pour des échantillons ASTM D647 avec ligne de soudure (l.s.) ou sans ligne de soudure.

mélange	contrainte $\sigma_é$ (MPa)	élongation $\epsilon_é$ (%)	module d'élasticité E (MPa)
6331	33,2 ±0,2	11,3 ±0,2	1202 ±60
403-10	26,5 ±0,1	9,0 ±0,8	1207 ±99
403-20	26,6 ±0,2	6,6 ±0,6	1341 ±77
403-30	27,2 ±0,1	6,1 ±0,2	1512±138
403-40	28,3 ±0,1	6,2 ±0,5	1443 ±19
6331 l.s.	31,5 ±1,5	11,2 ±0,4	1205 ±36
403-10 l.s.	19,9 ±1,0	3,2 ±0,7	1328 ±89
403-20 l.s.	13,7 ±0,4	2,1 ±0,4	1389±173
403-30 l.s.	8,5 ±0,6	1,5 ±0,2	1434 ±59
403-40 l.s.	3,4 ±1,8	0,6 ±0,4	964±703

Tableau II-10 - Résultats des tests de traction pour des échantillons ASTM D647 - effet de l'épaisseur.

mélange	épaisseur mm	rapport p	contrainte $\sigma_é$ (MPa)	élongation $\epsilon_é$ (%)	module d'élasticité E (MPa)
PD888	6,0	-	30,3 ±0,2	±	1158 ±54
PD888	3,0	-	30,6 ±0,1	11,1 ±0,3	1087 ±39
407-20	6,0	5.57	28,9 ±0,2	7,3 ±0,2	1565 ±27
407-20	3,0	5.57	30,2 ±0,2	8,1 ±0,2	1245 ±10
507-20	6,0	7.02	28,5 ±0,5	7,5 ±0,2	1347 ±59
507-20	3,0	7.02	30,8 ±0,3	8,0 ±0,3	1337 ±25
6331	6,0	-	34,1 ±0,2	±	1467 ±61
6331	3,0	-	31,9 ±0,3	10,6 ±0,3	1174 ±48
6331	1,6	-	31,3 ±0,3	11,7 ±0,8	1046±101
403-20	6,0	13.7	30,3 ±0,3	6,7 ±0,2	1552 ±51
403-20	3,0	13.7	30,7 ±0,2	7,5 ±0,2	1357 ±13
403-20	1,6	13.7	32,9 ±0,2	7,3 ±0,2	1322 ±48
403-40	6,0	13.7	29,9 ±0,3	6,0 ±0,2	1642 ±92
403-40	3,0	13.7	32,7 ±0,2	6,9 ±0,8	1440 ±42

Tableau II-11 - Résultats des tests de traction pour des échantillons ASTM D647 - effet du rapport de viscosité.

mélange	rapport p	contrainte $\sigma_é$ (MPa)	élongation $\epsilon_é$ (%)	module d'élasticité E (MPa)
PD888	-	30,6 ±0,1	11,1 ±0,3	1087 ±39
397-20	4.55	30,5 ±0,3	7,1 ±0,6	1300 ±40
407-20	5.57	30,2 ±0,2	8,1 ±0,2	1245 ±10
507-20	7.02	30,8 ±0,3	8,0 ±0,3	1337 ±25
PD893	-	30,7 ±0,2	12,4 ±0,5	1125 ±97
395-20	7.22	32,7 ±0,3	7,3 ±0,4	1388 ±22
405-20	8.83	31,5 ±0,3	7,7 ±0,2	1384 ±60
6331	-	31,9 ±0,3	10,6 ±0,3	1174 ±48
393-20	11.1	30,4 ±0,2	7,3 ±0,2	1360 ±24
403-20	13.7	30,7 ±0,2	7,5 ±0,2	1357 ±13

Tableau II-12 - Résultats des tests de flexion pour des échantillons ASTM D790 - effet du rapport de viscosité.

mélange	rapport p	module d'élasticité E_f (MPa)
PD888	-	1130 ±19
397-20	4.55	1436 ±16
407-20	5.57	1390 ±8
507-20	7.02	1531 ±30
PD893	-	1044 ±10
395-20	7.22	1447 ±16
405-20	8.83	1440 ±17
6331	-	1125 ±17
393-20	11.1	1477 ±13
403-20	13.7	1447 ±30

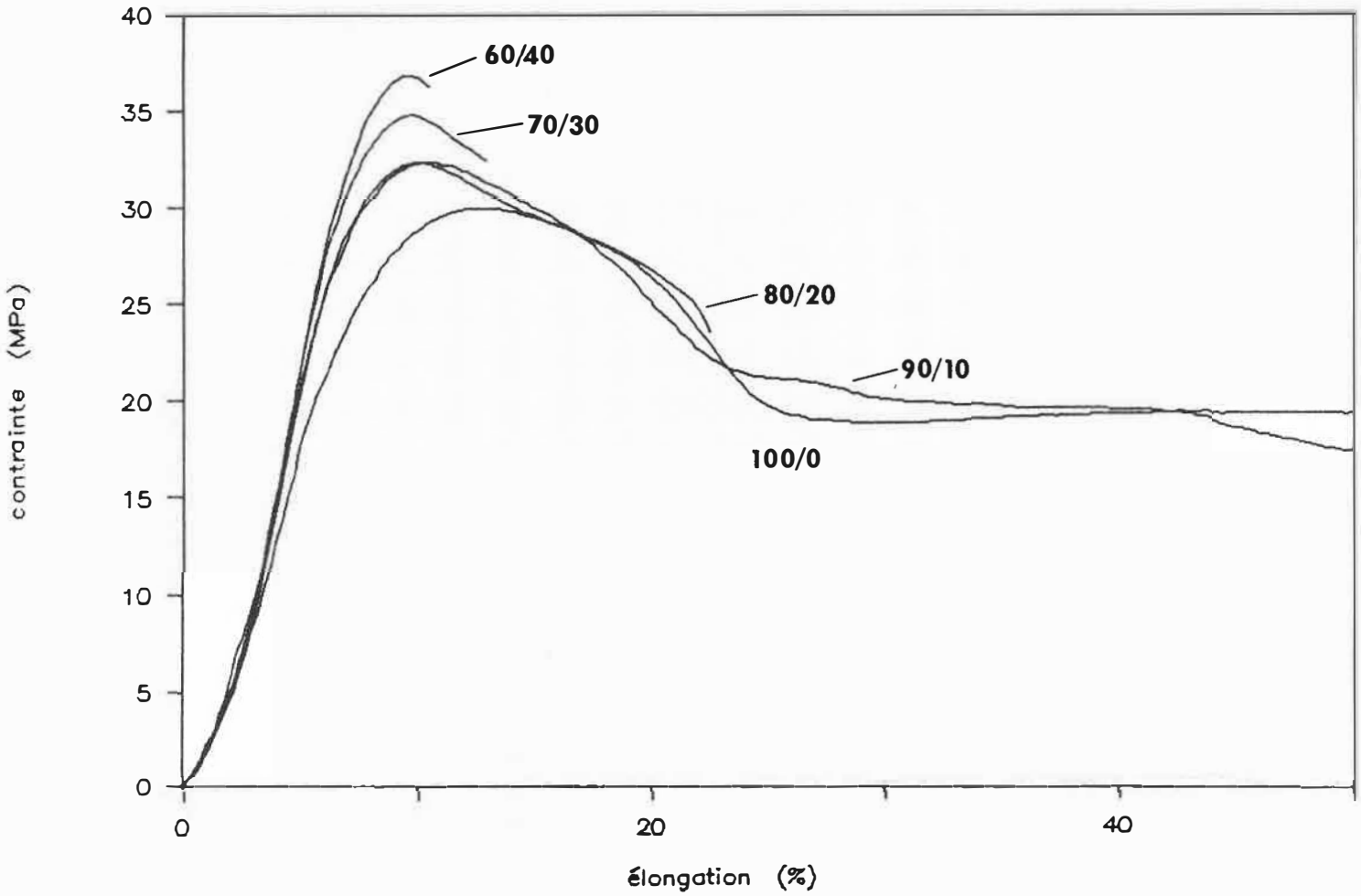


Figure II-7 - Courbes de traction typiques - effet de la concentration de PC.

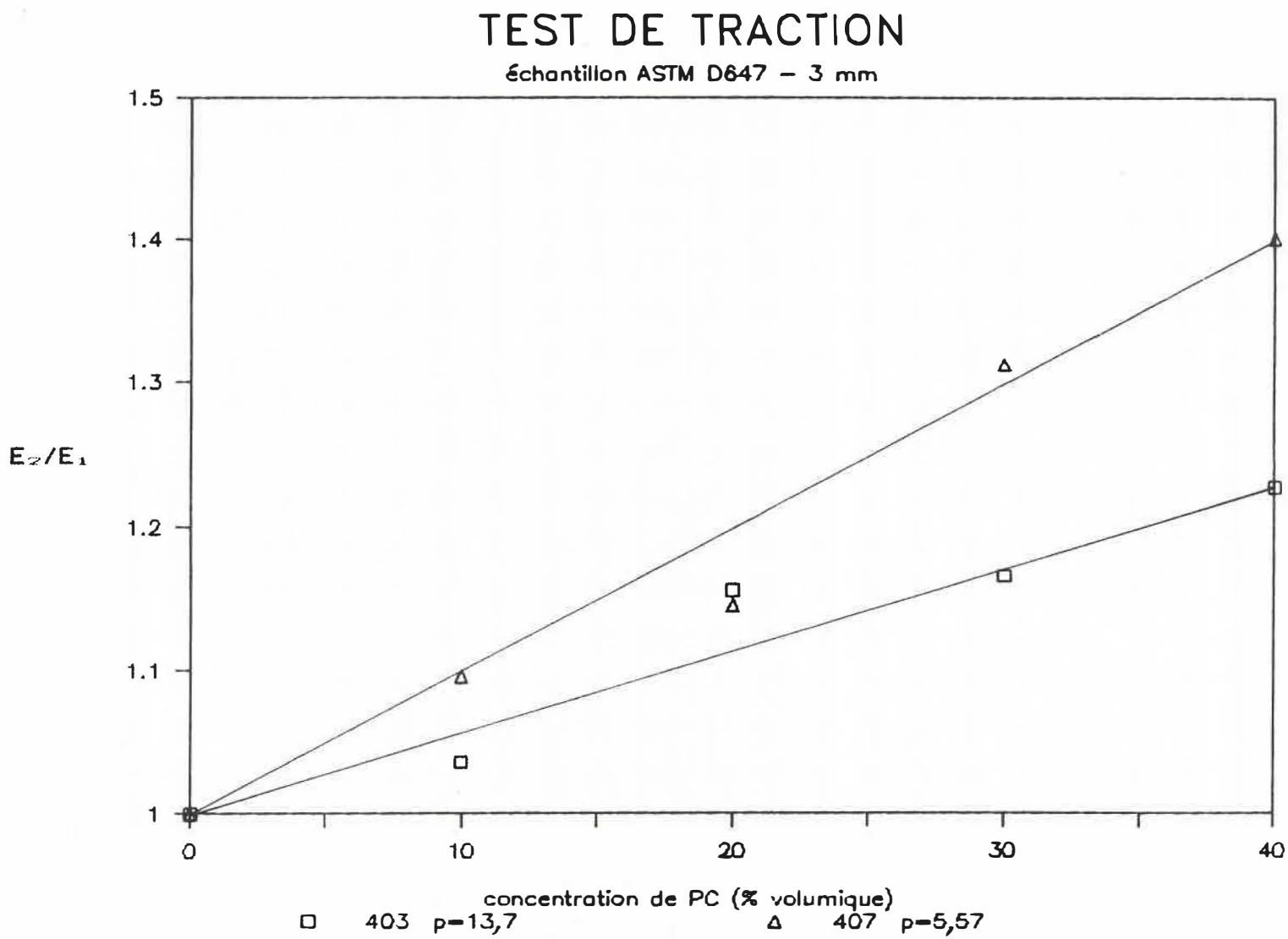


Figure II-8 – Rapport de module E_2/E_1 – effet de la concentration de PC.

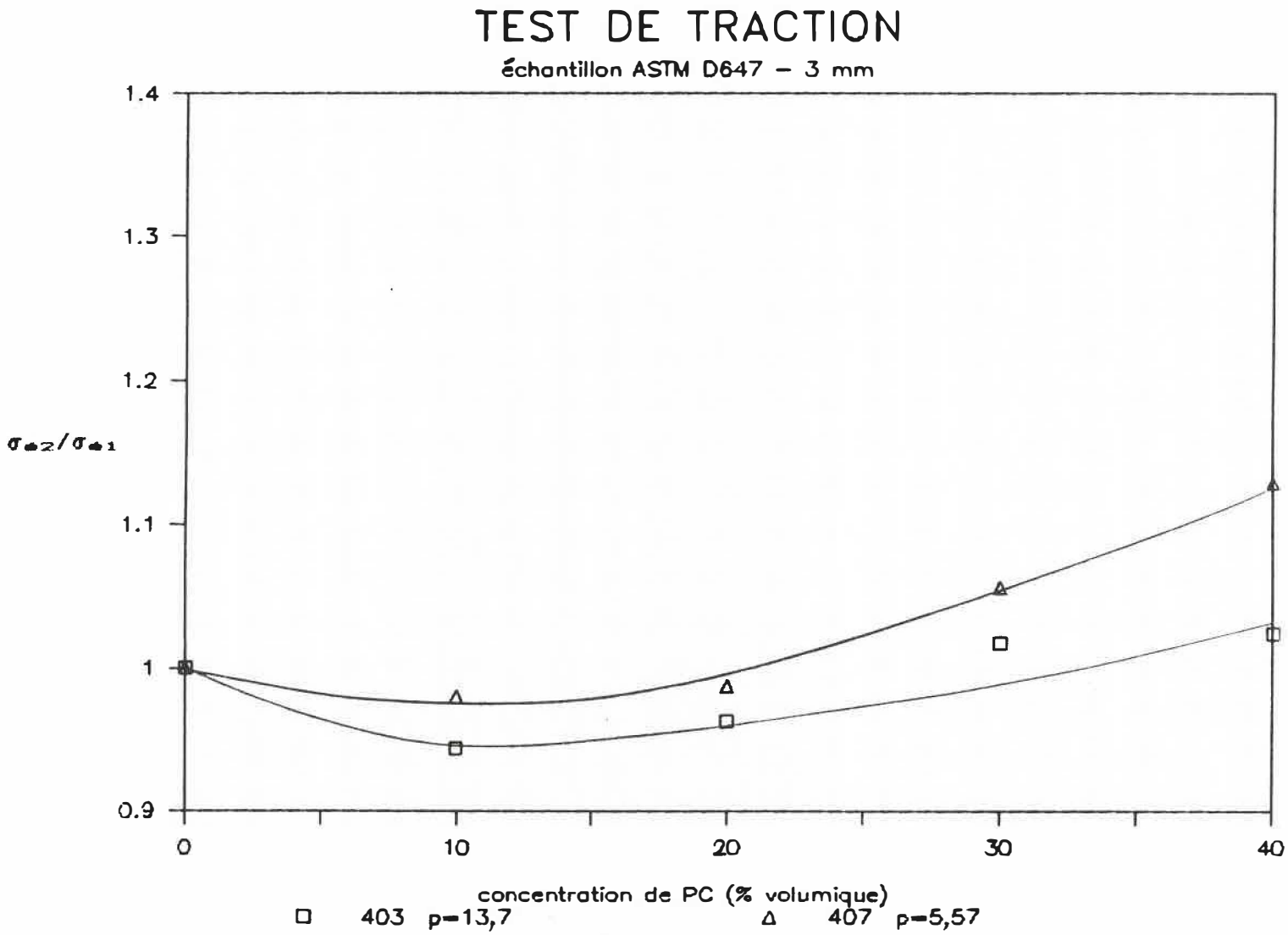


Figure II-9 - Rapport de contrainte σ_2/σ_1 - effet de la concentration de PC.

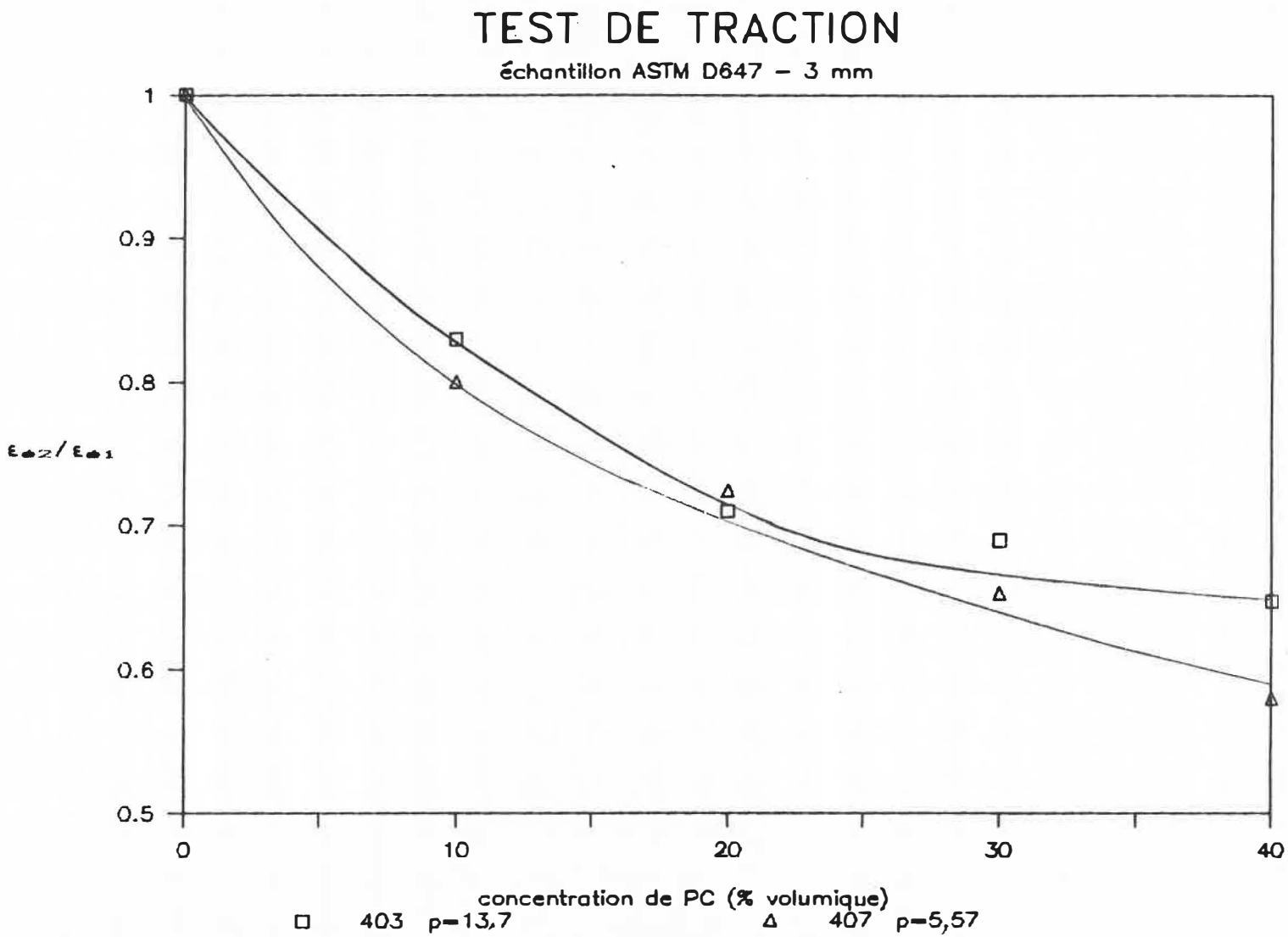


Figure II-10 - Rapport d'élongation $\varepsilon_2/\varepsilon_1$ - effet de la concentration de PC.

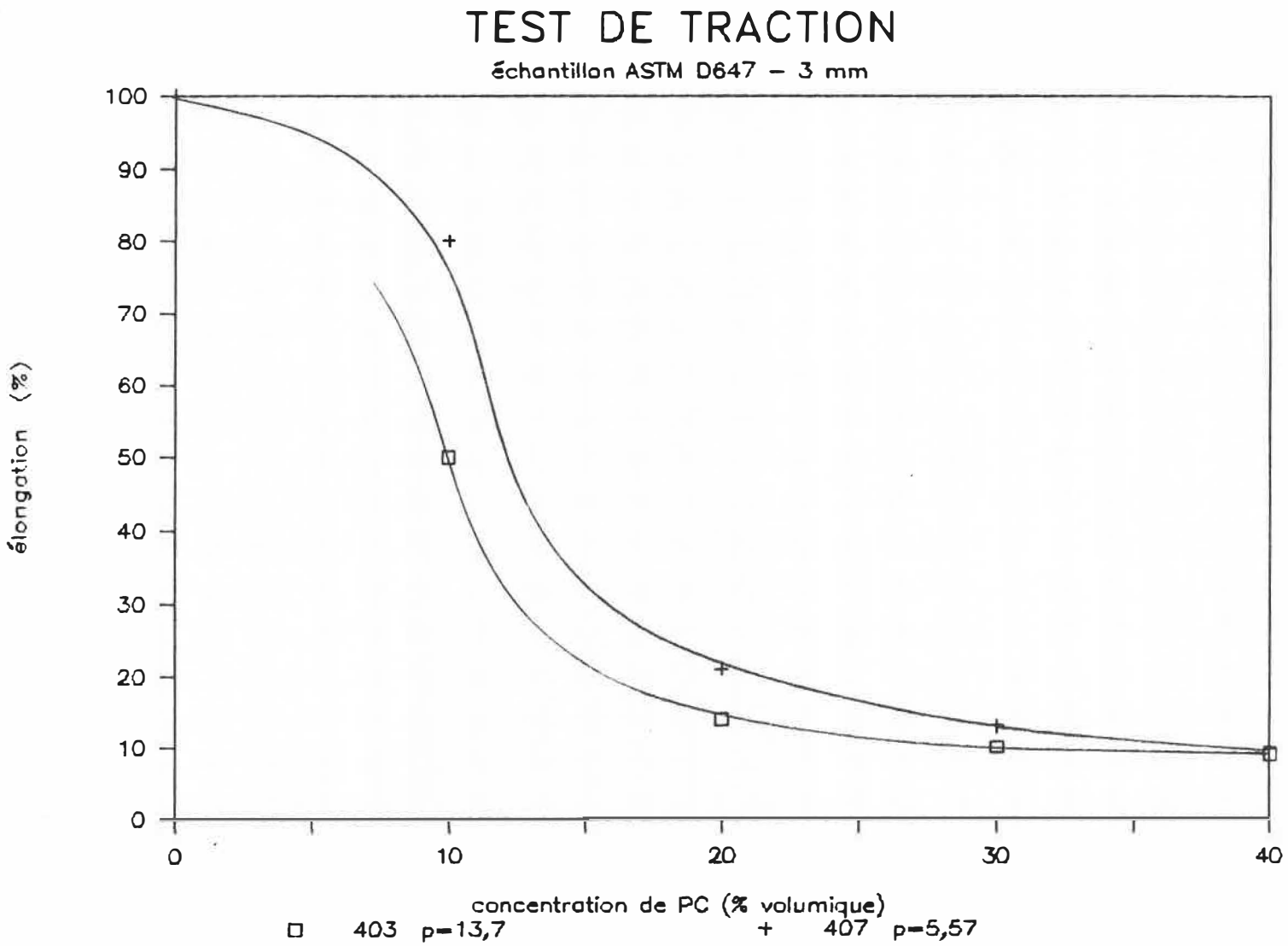


Figure II-11 - Élongation à la rupture - effet de la concentration de PC.

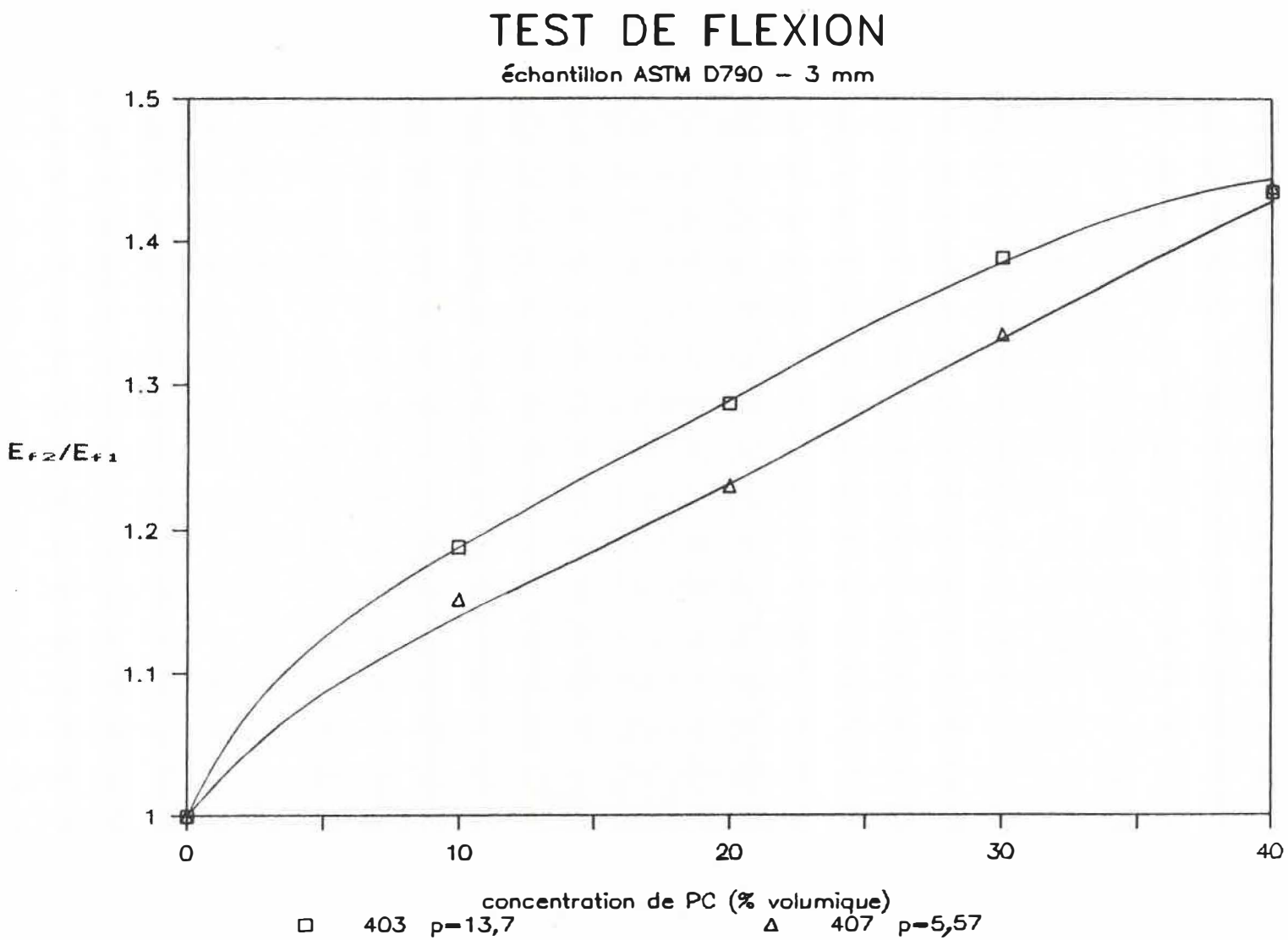


Figure II-12 – Rapport de module E_{f2}/E_{f1} – effet de la concentration de PC.

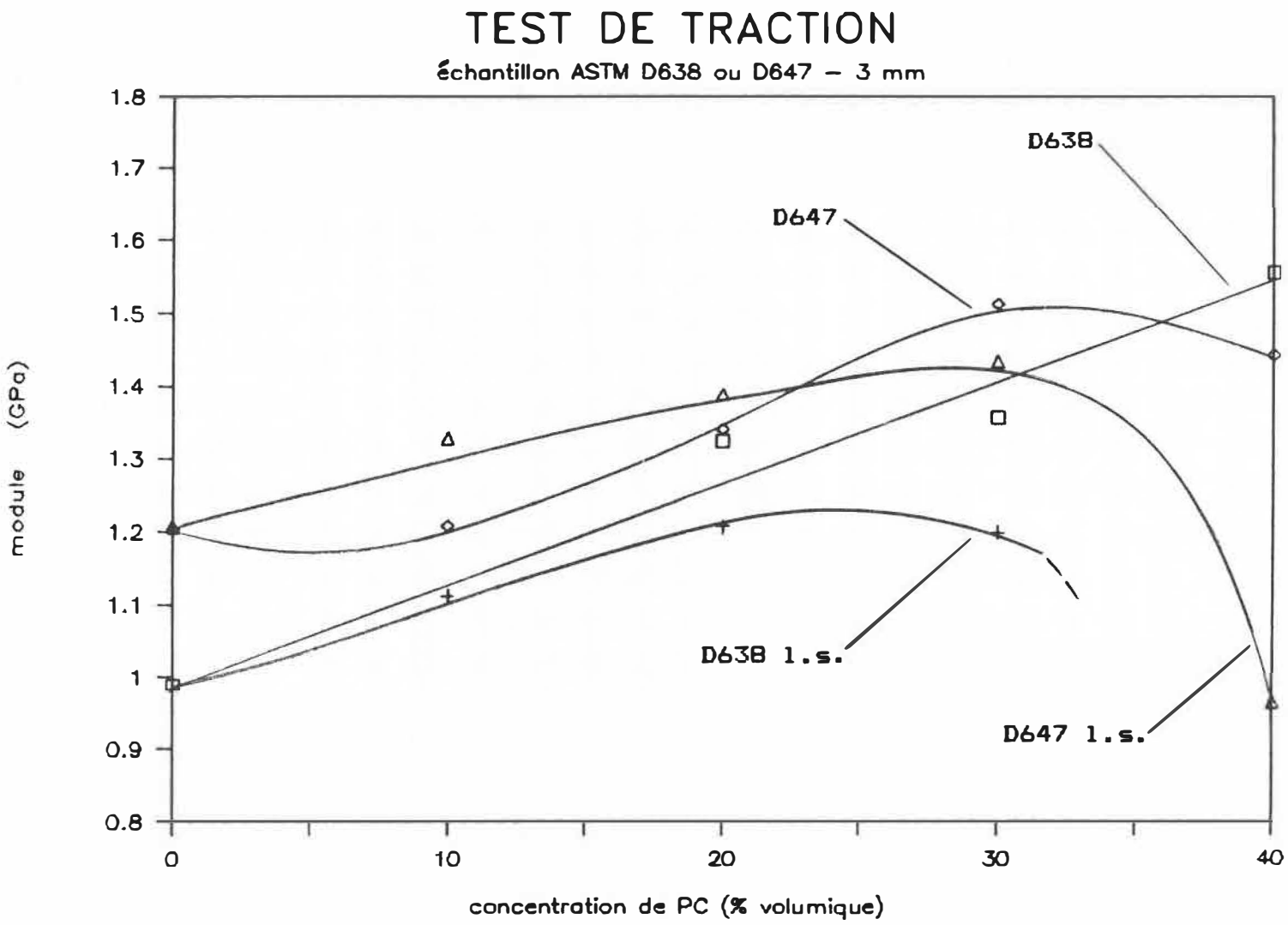


Figure II-13 - Module de traction - effet d'une ligne de soudure.

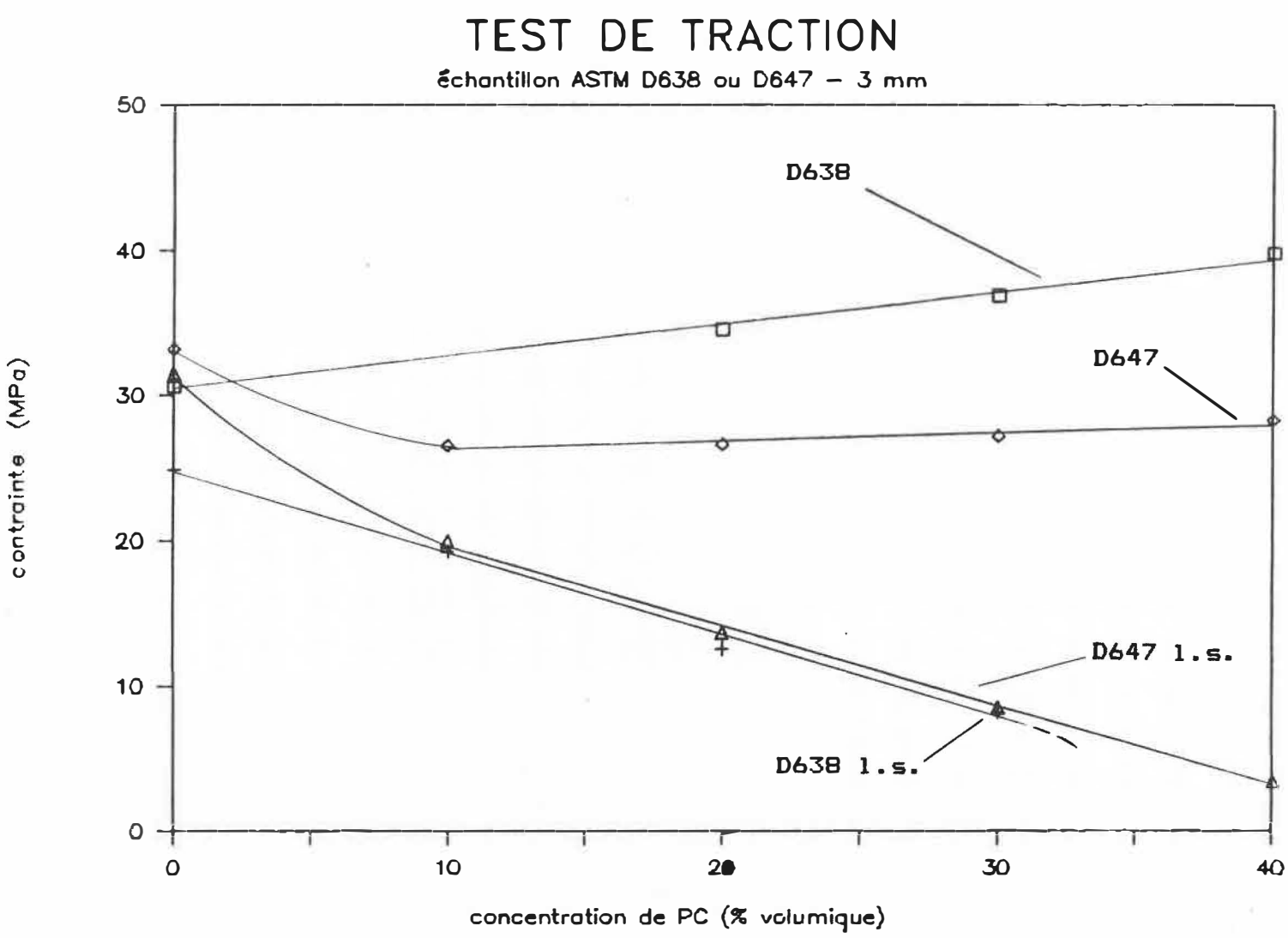


Figure II-14 - Contrainte à l'écoulement - effet d'une ligne de soudure.

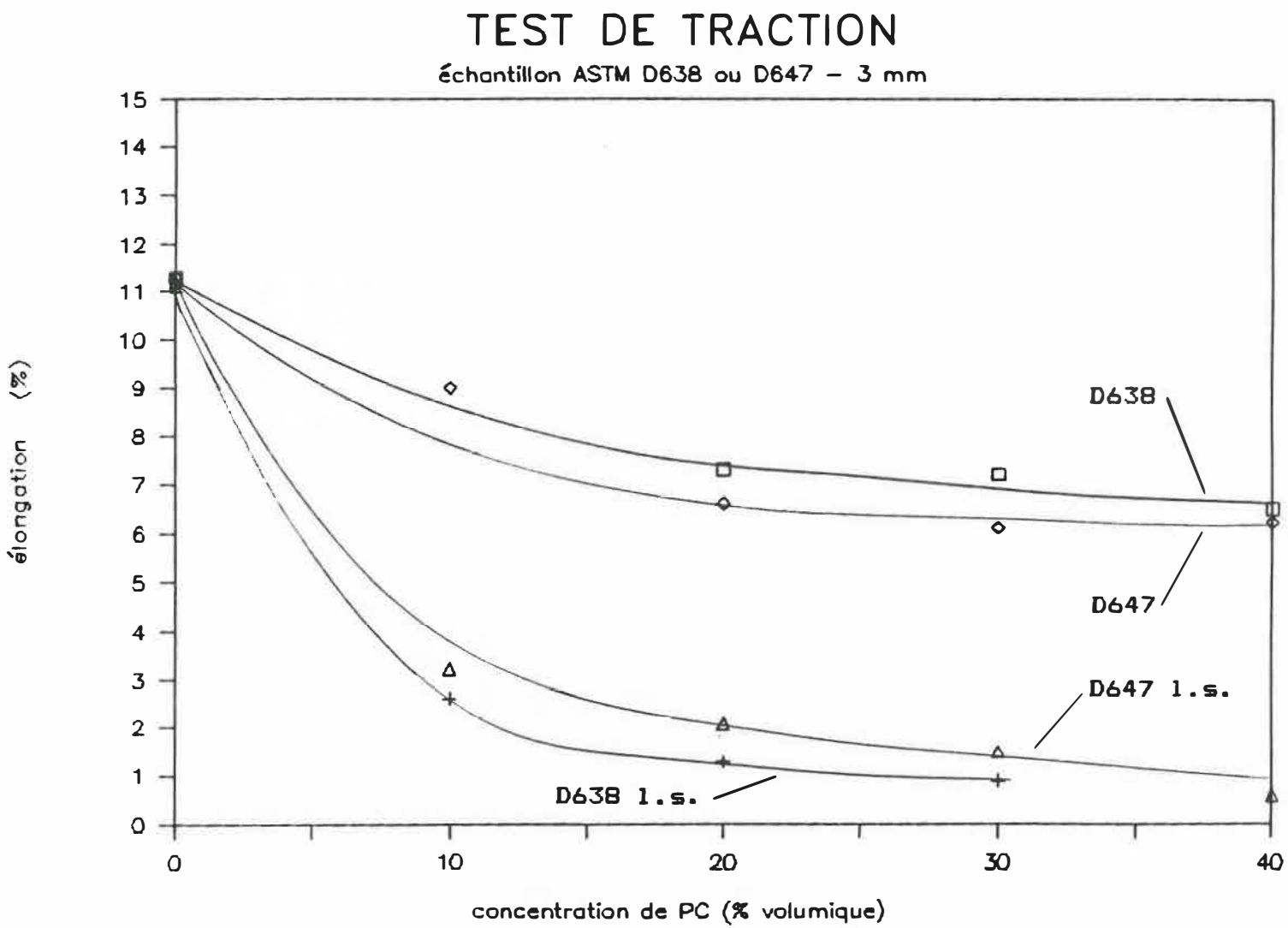


Figure II-15 - Élongation à l'écoulement - effet d'une ligne de soudure.

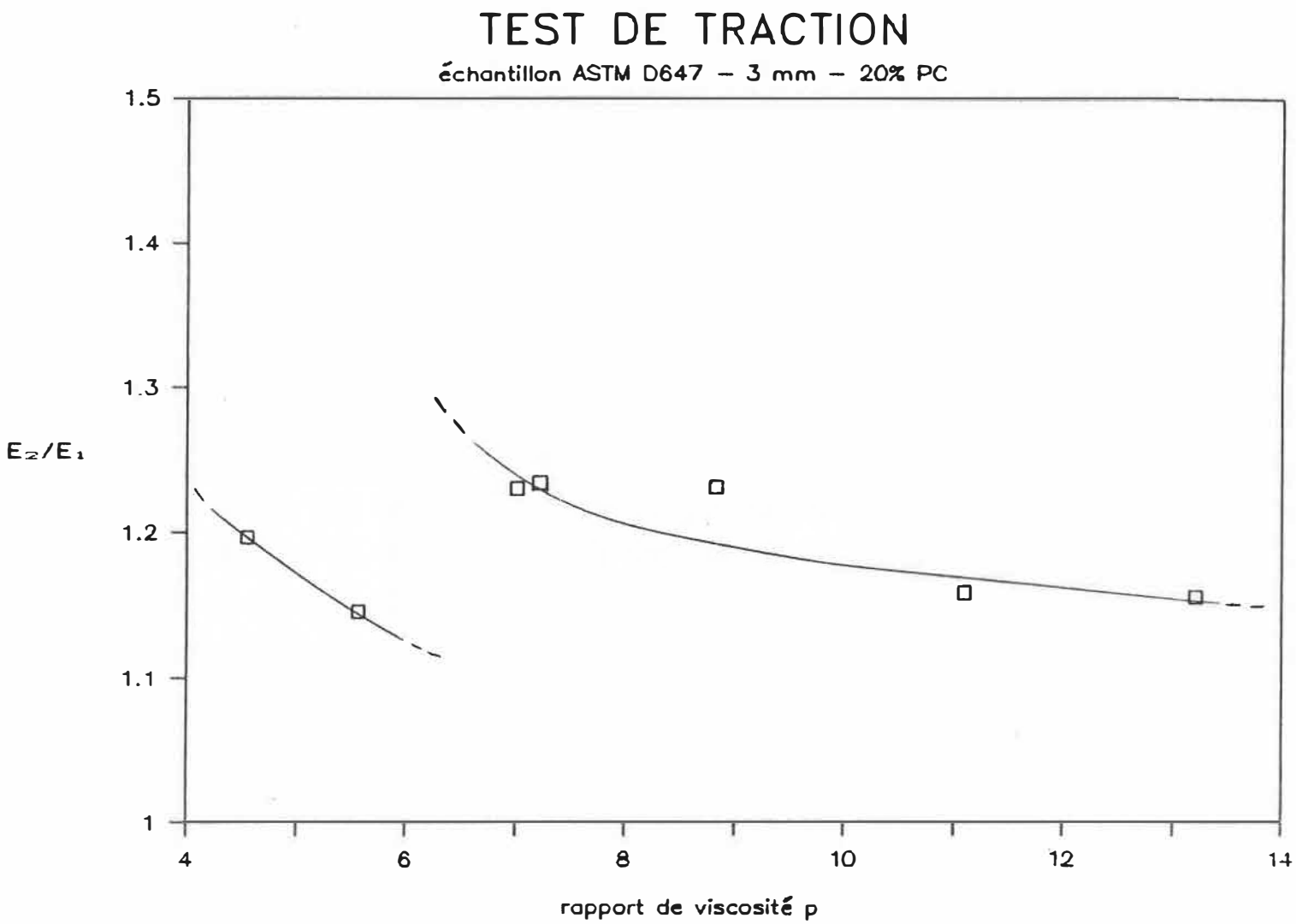


Figure II-16 – Rapport de module E_2/E_1 – effet du rapport de viscosité p.

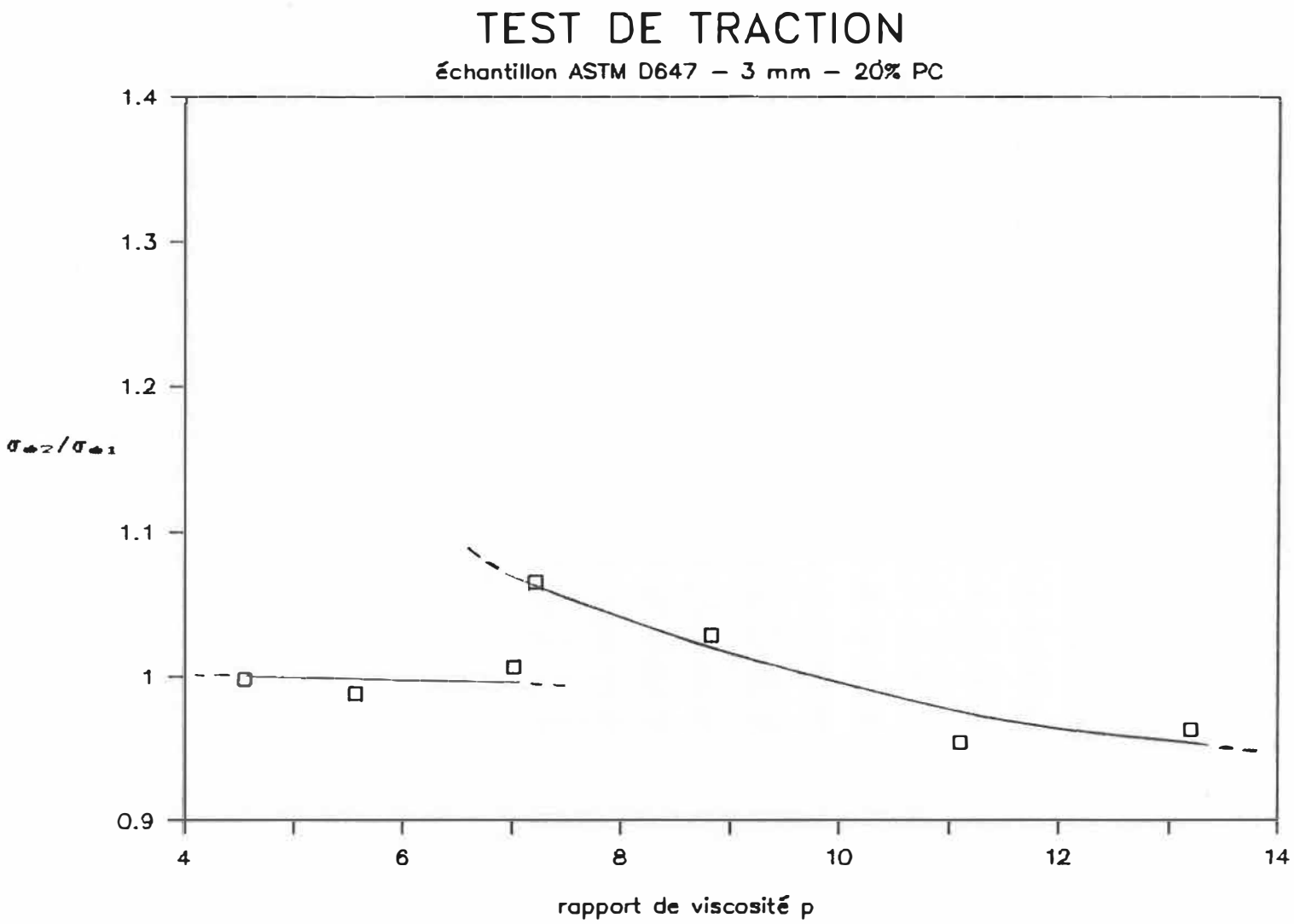


Figure II-17 - Rapport de contrainte σ_2/σ_1 - effet du rapport de viscosité p.

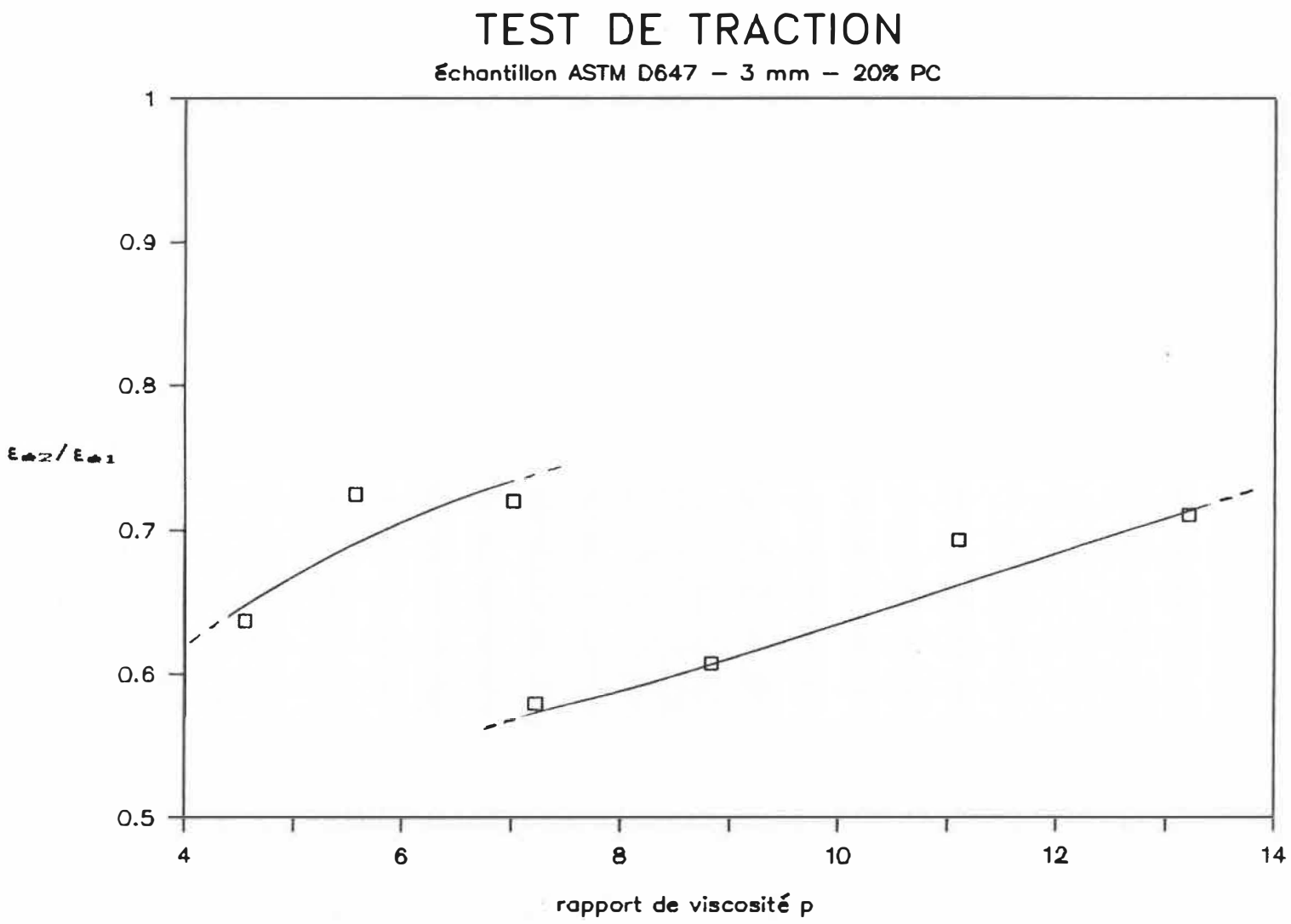


Figure II-18 – Rapport d'élongation $\varepsilon_{\spadesuit 2}/\varepsilon_{\spadesuit 1}$ – effet du rapport de viscosité p.

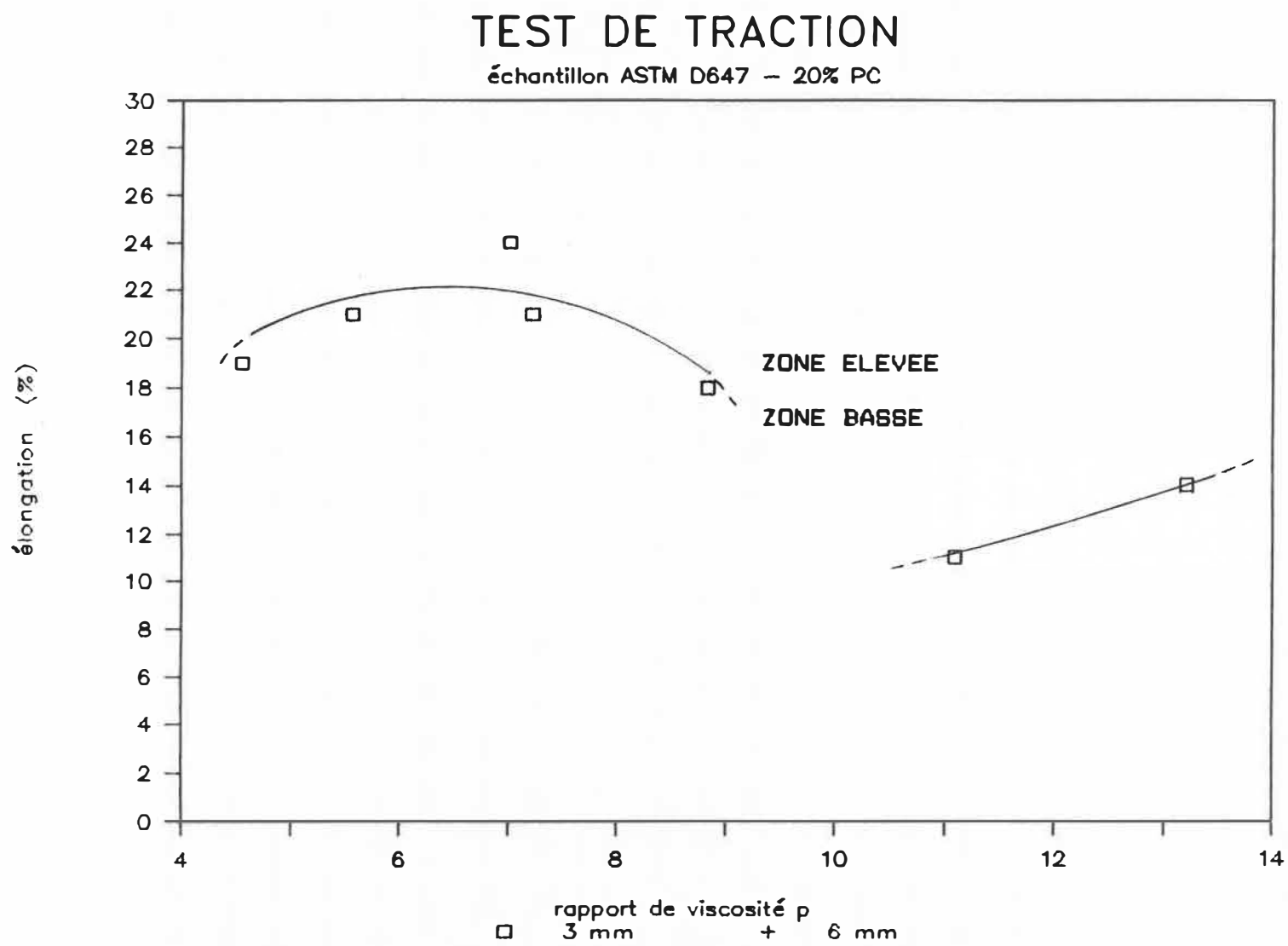


Figure II-19 – Elongation à la rupture – effet du rapport de viscosité p.

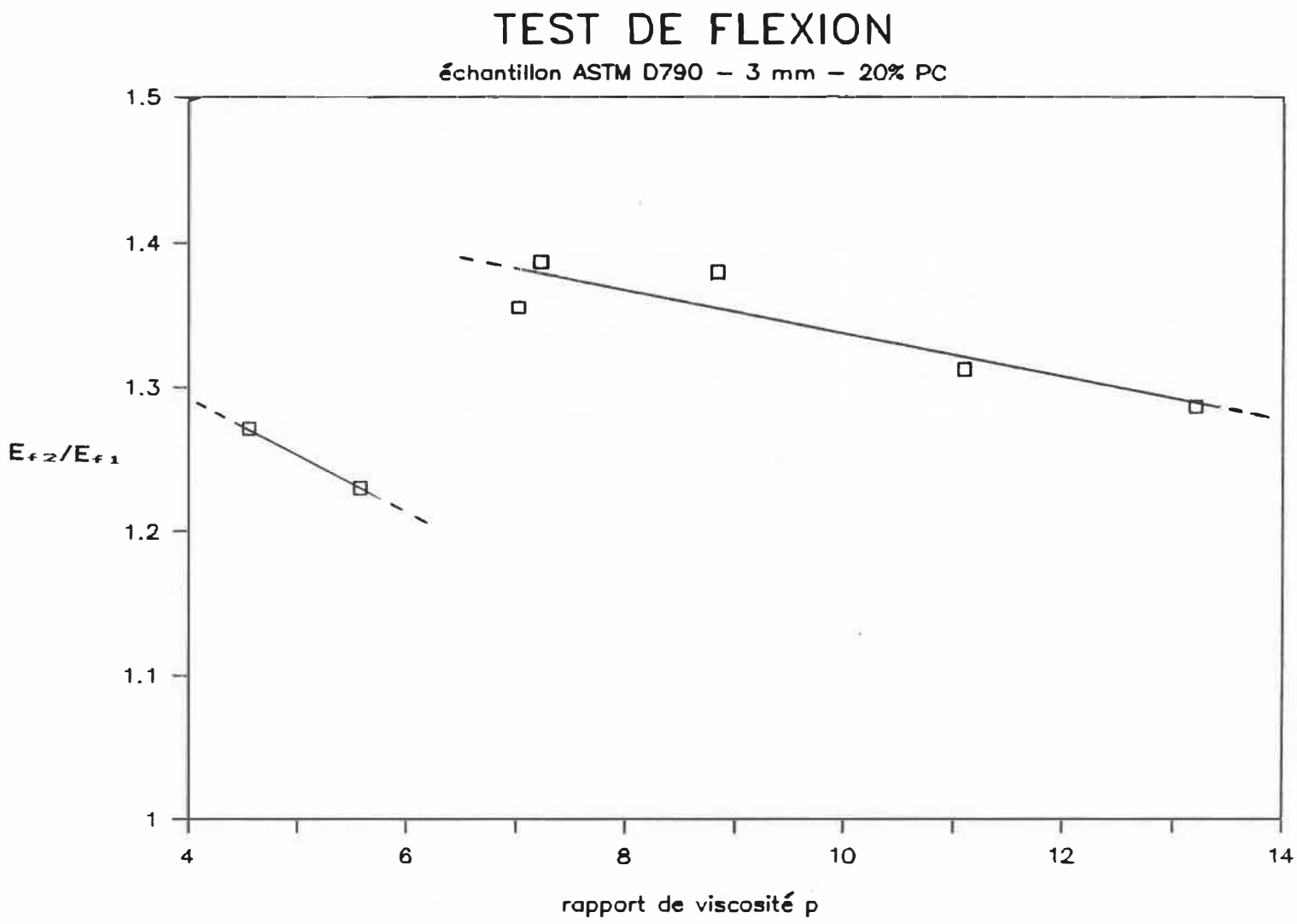
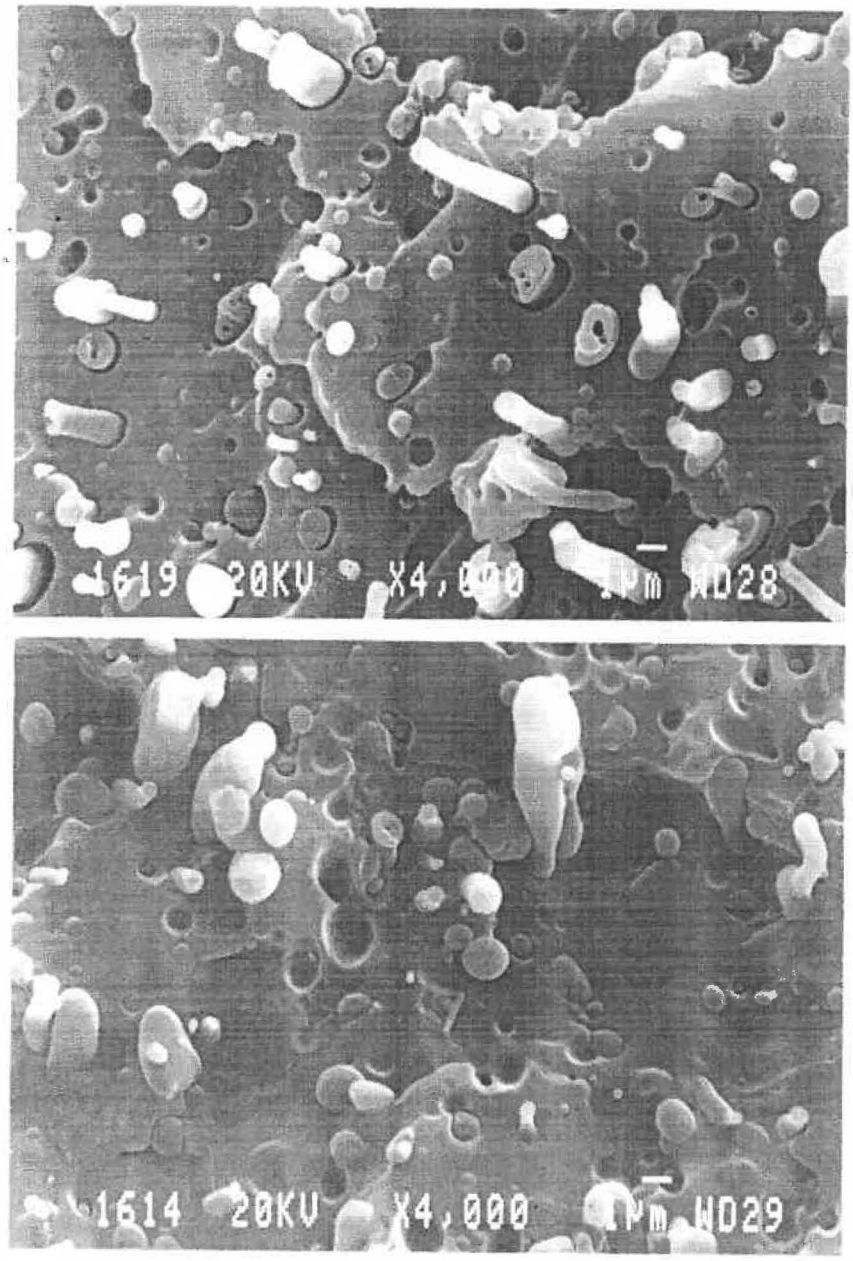


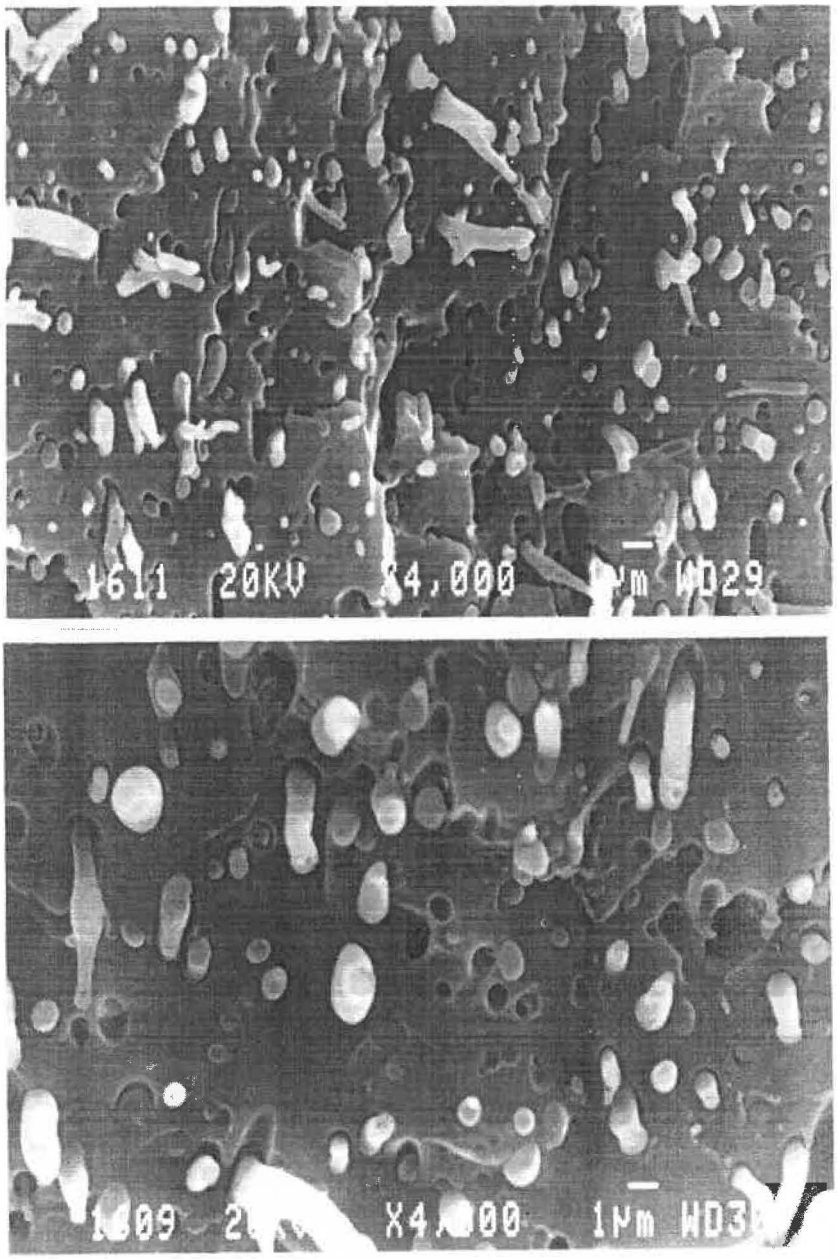
Figure II-20 – Rapport de module E_{f2}/E_{f1} – effet du rapport de viscosité p.



a

b

Figure II-21 - Photographie au centre - surface perpendiculaire au sens de l'écoulement
a: 397-20 p=4,55; b: 407-20 p=5,57;

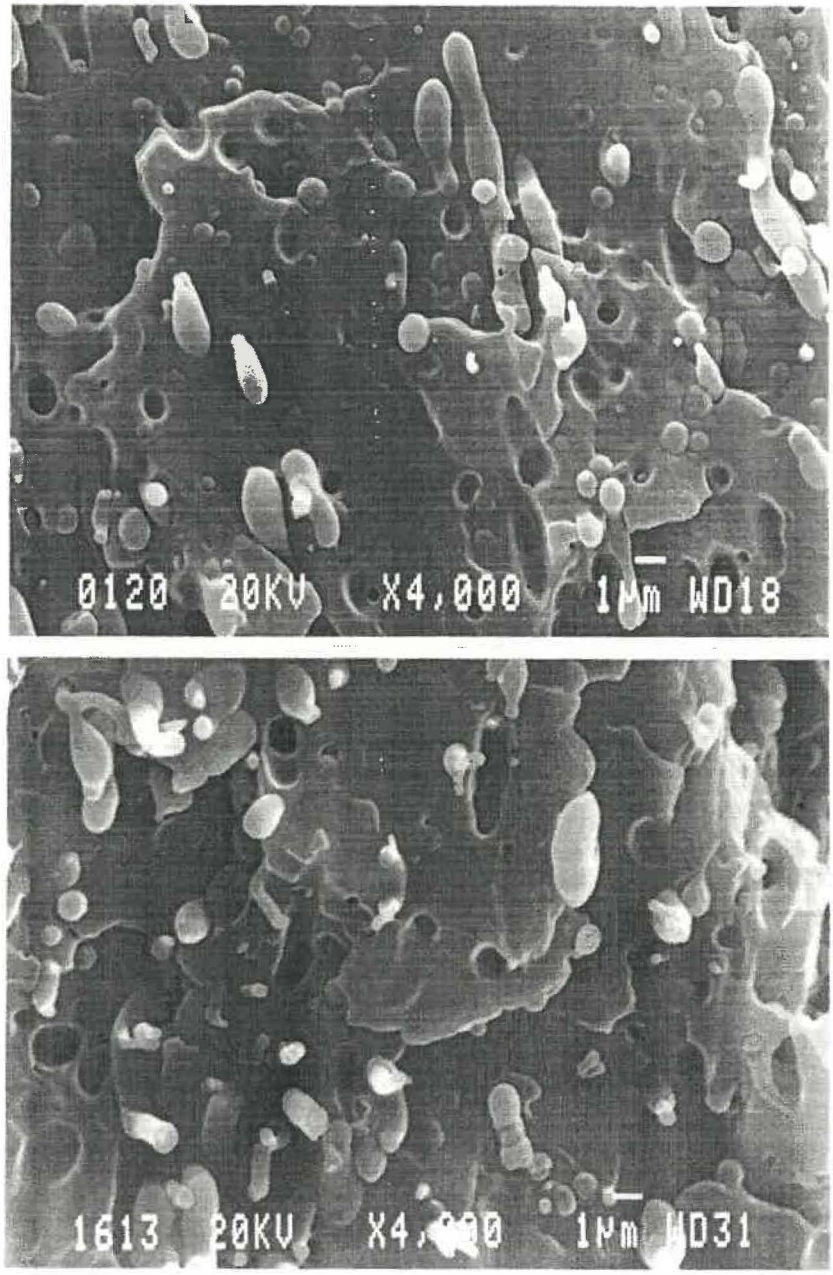


c

d

Figure II-21 — Photographie au centre - surface perpendiculaire au sens de l'écoulement

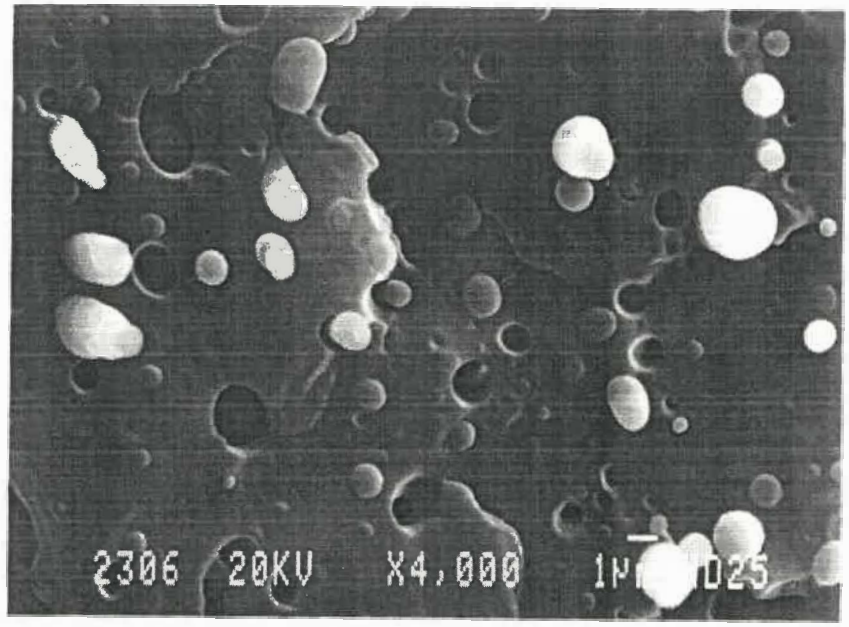
c: 507-20 p=7,02; d: 395-20 p=7,22;



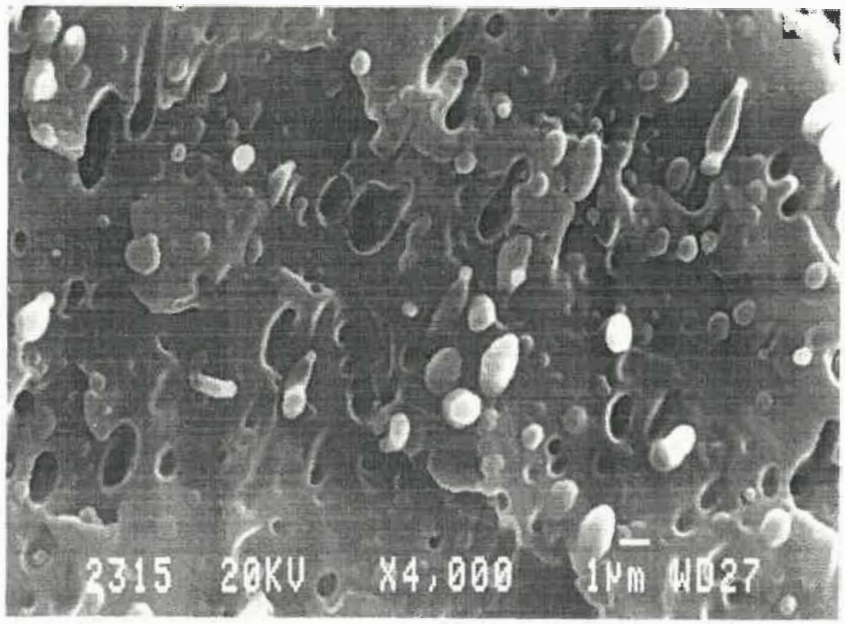
e

f

Figure II-21 - Photographie au centre - surface perpendiculaire au sens de l'écoulement e: 405-20 p=8,83; f: 403-20 p=13,7.



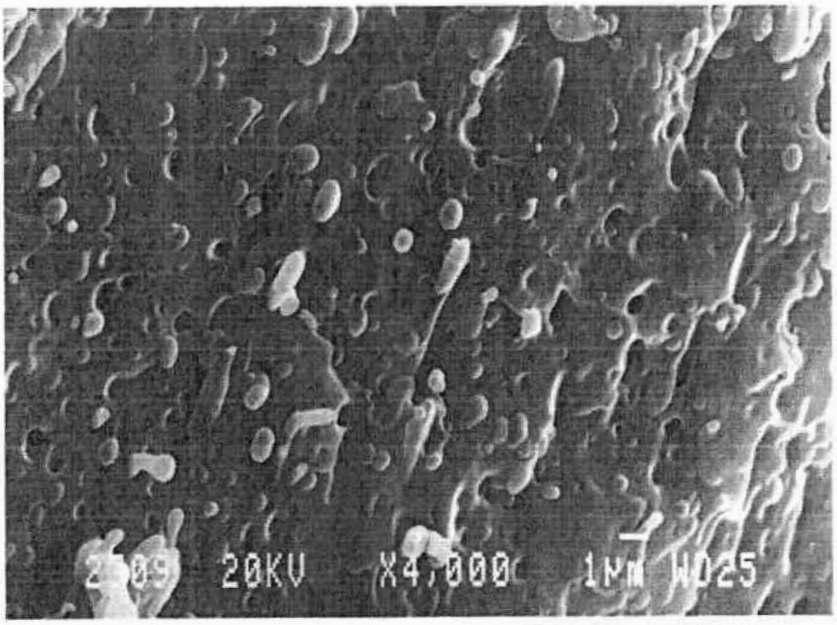
a



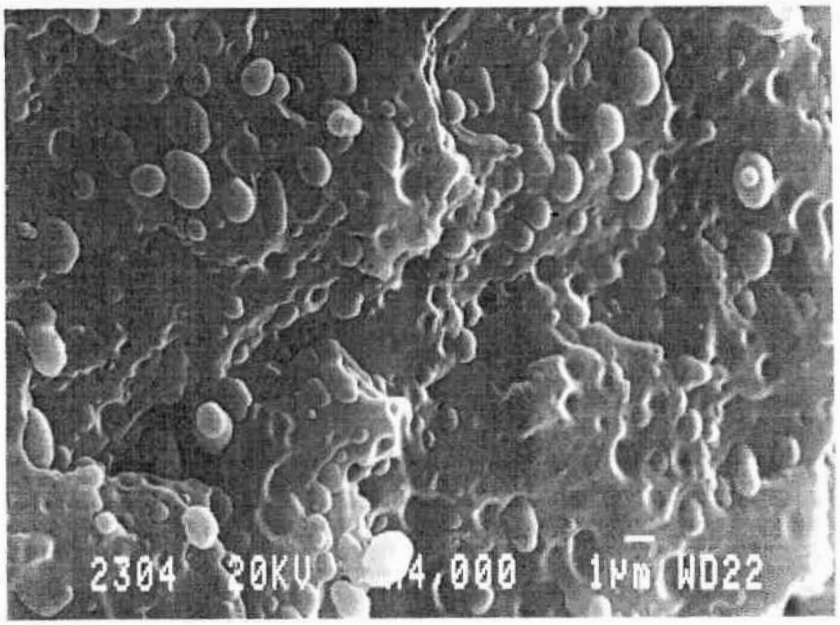
b

Figure II-22 - Photographie au centre - surface parallèle au sens de l'écoulement

a: 397-20 p=4,55; b: 407-20 p=5,57;



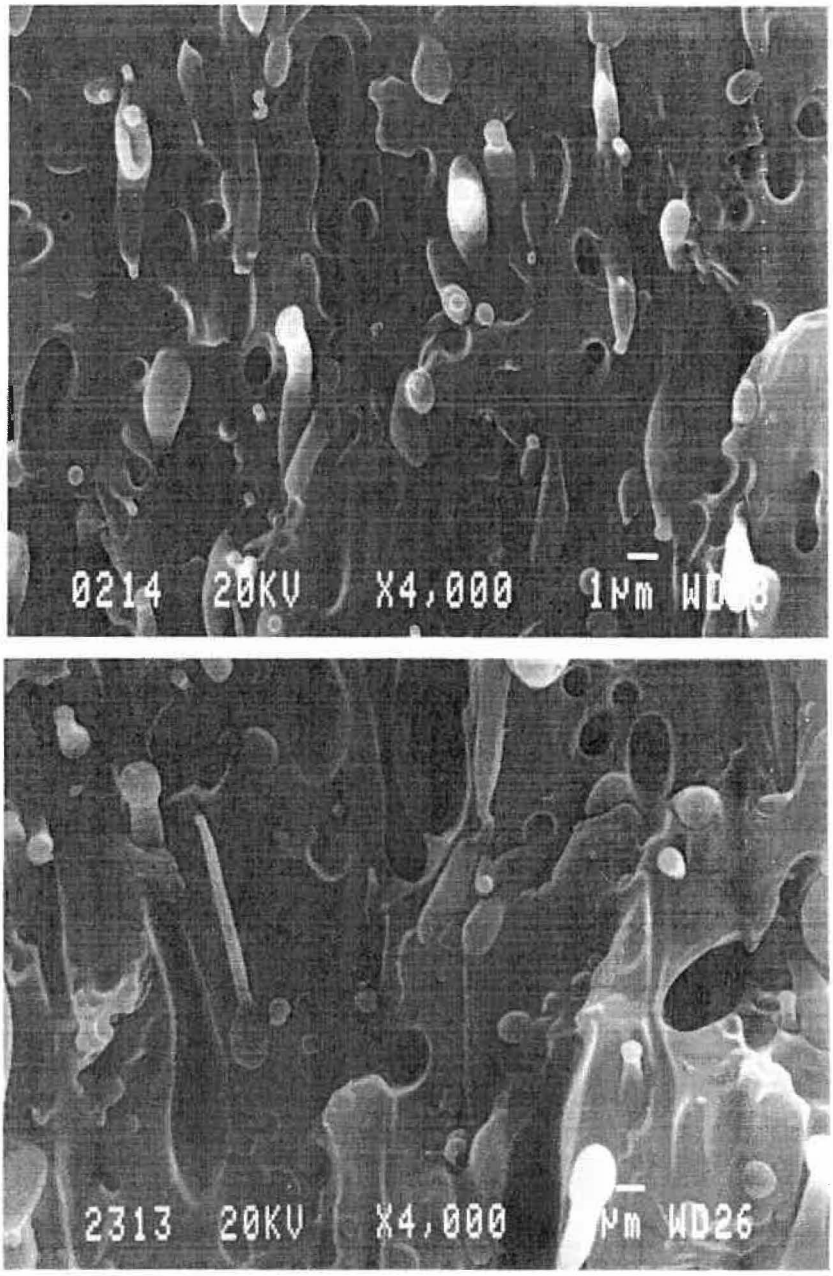
c



d

Figure II-22 - Photographie au centre - surface parallèle au sens de l'écoulement

c: 507-20 p=7,02; d: 395-20 p=7,22;

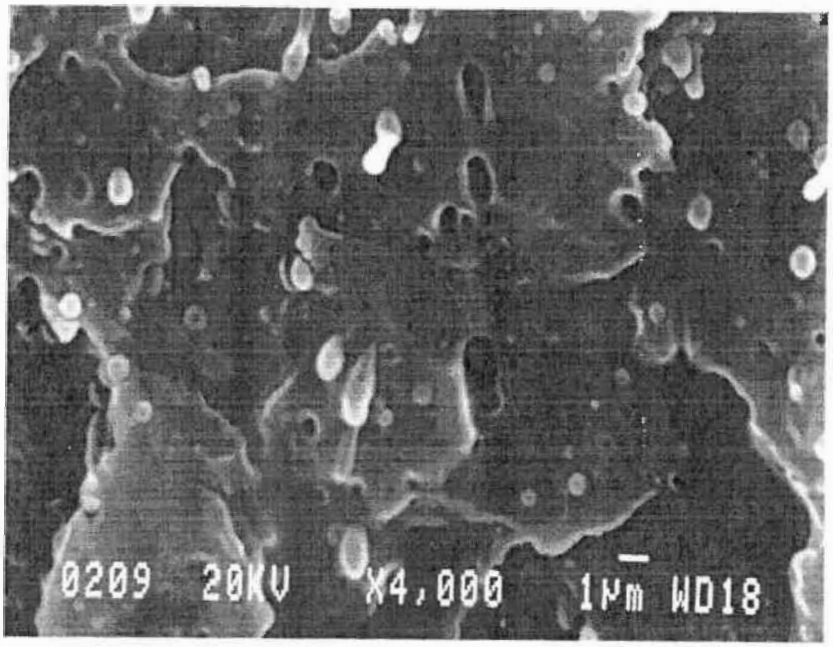


e

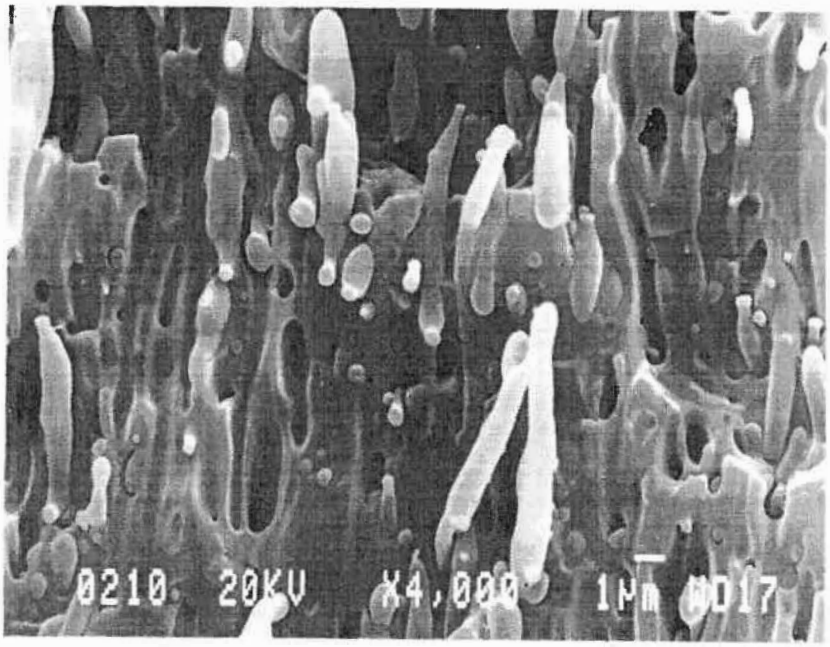
f

Figure II-22 - Photographie au centre - surface parallèle au sens de l'écoulement

e: 405-20 p=8,83; f: 403-20 p=13,7.



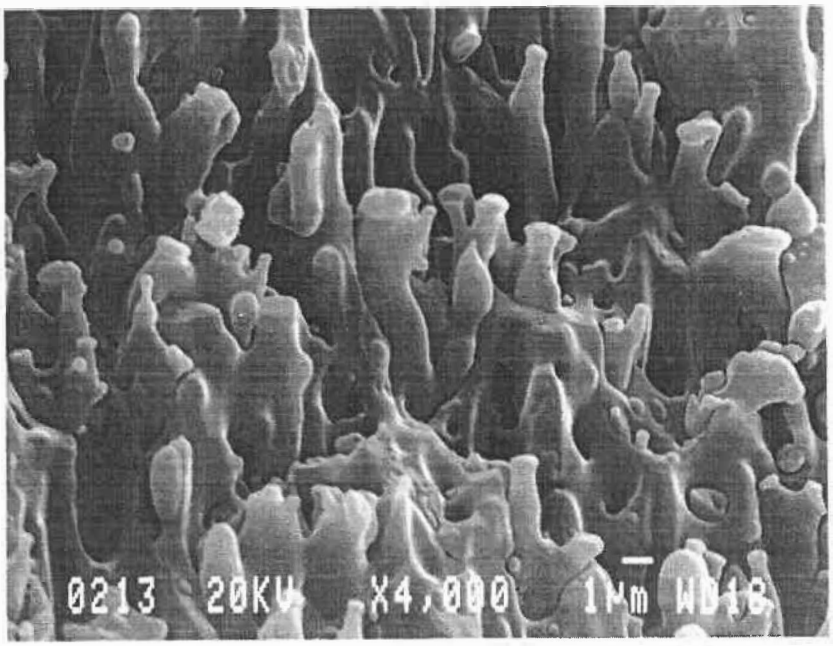
a



b

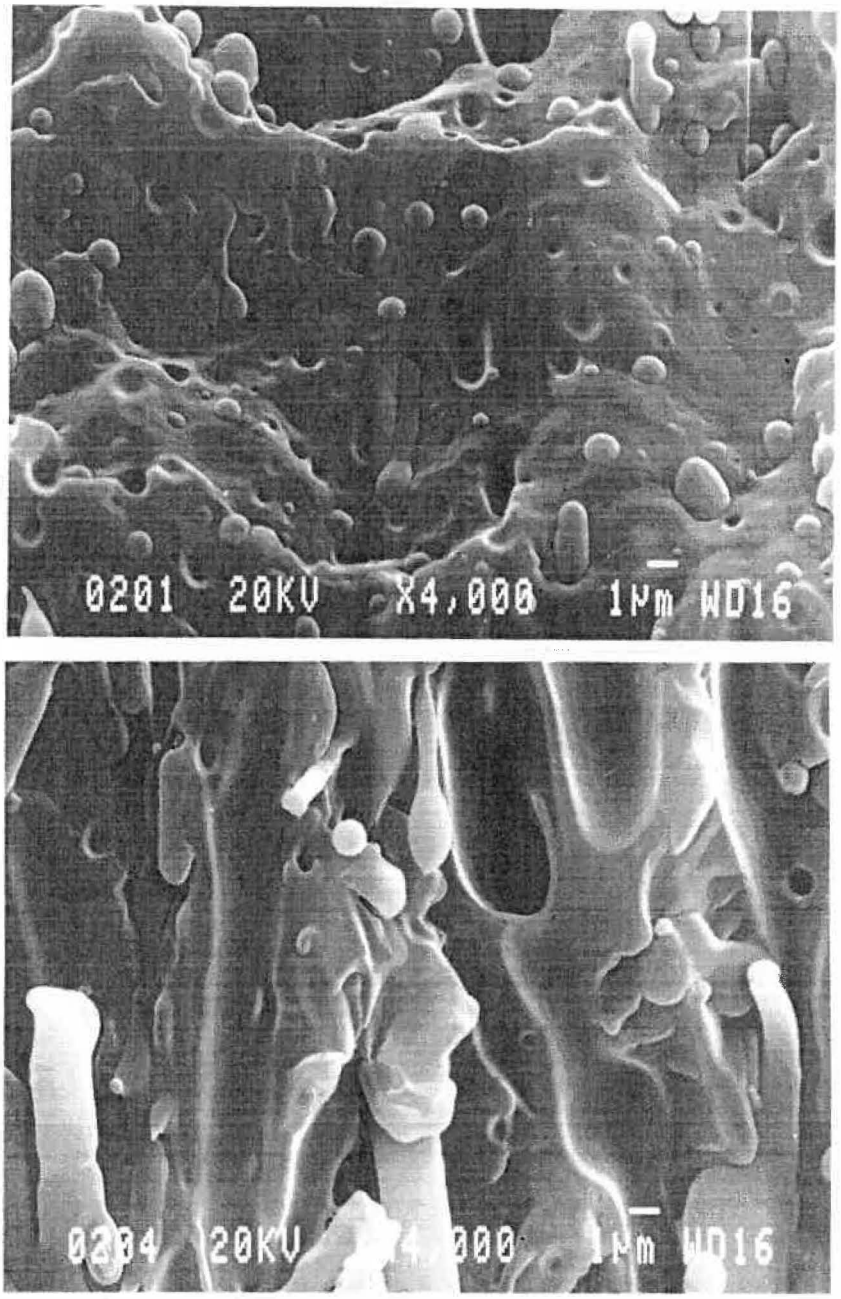
Figure II-23 — Photographie au centre — surface perpendiculaire au sens de l'écoulement

a: 407-10 p=5,57; b: 407-30 p=5,57;



c

Figure II-23 - Photographie au centre - surface perpendiculaire au sens de l'ecoulement c: 407-40 p=5,57

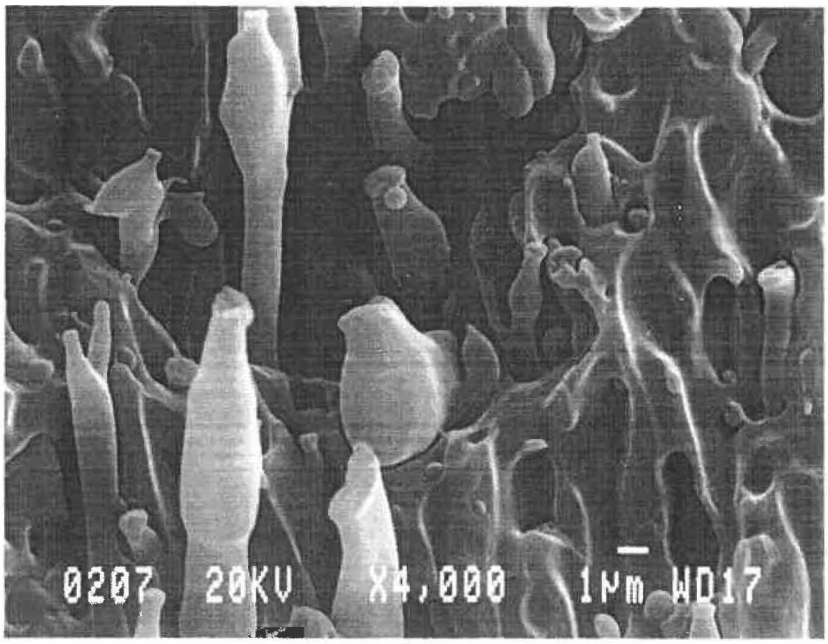


a

b

Figure II-24 - Photographie au centre - surface perpendiculaire au sens de l'écoulement

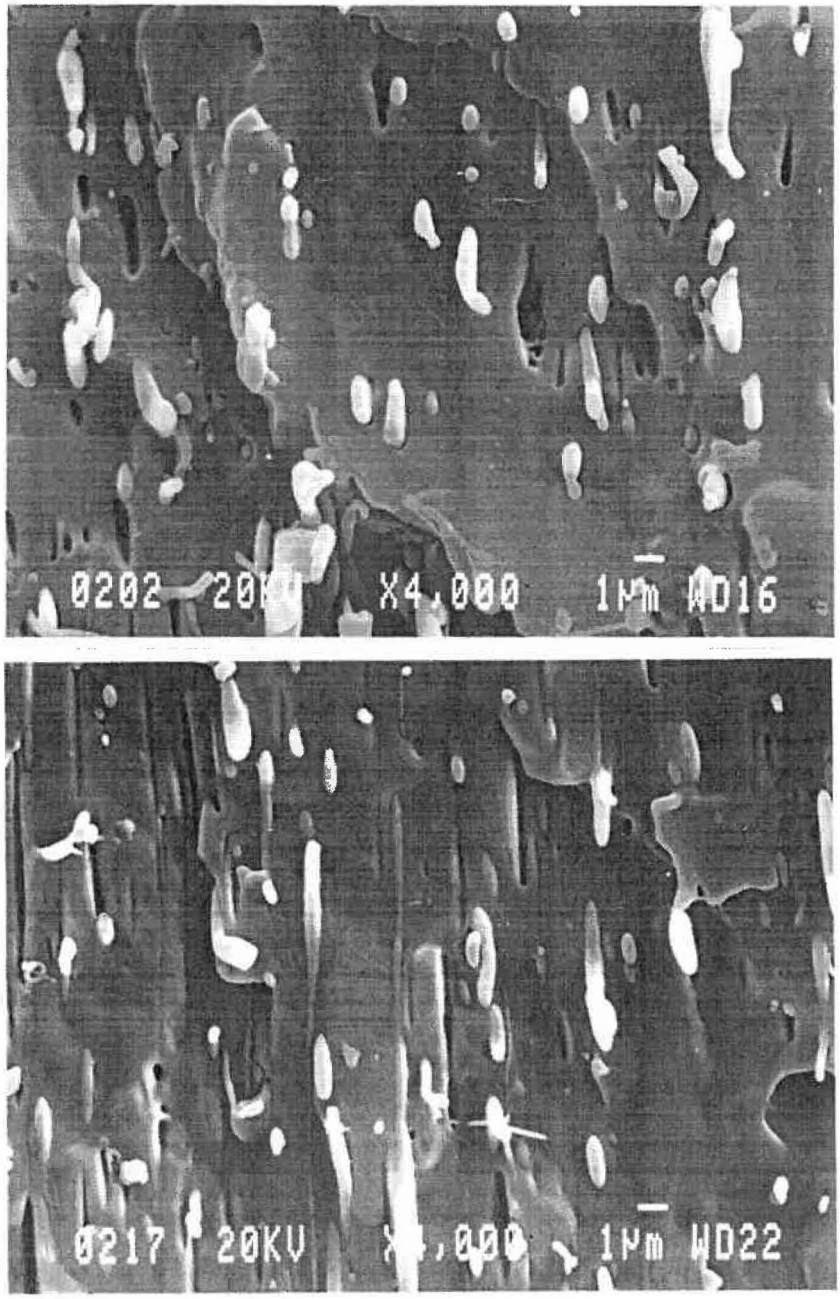
a: 403-10 p=13,7; b: 403-30 p=13,7;



c

Figure II-24 – Photographie au centre – surface perpendiculaire au sens de l'écoulement

c: 403-40 p=13,7

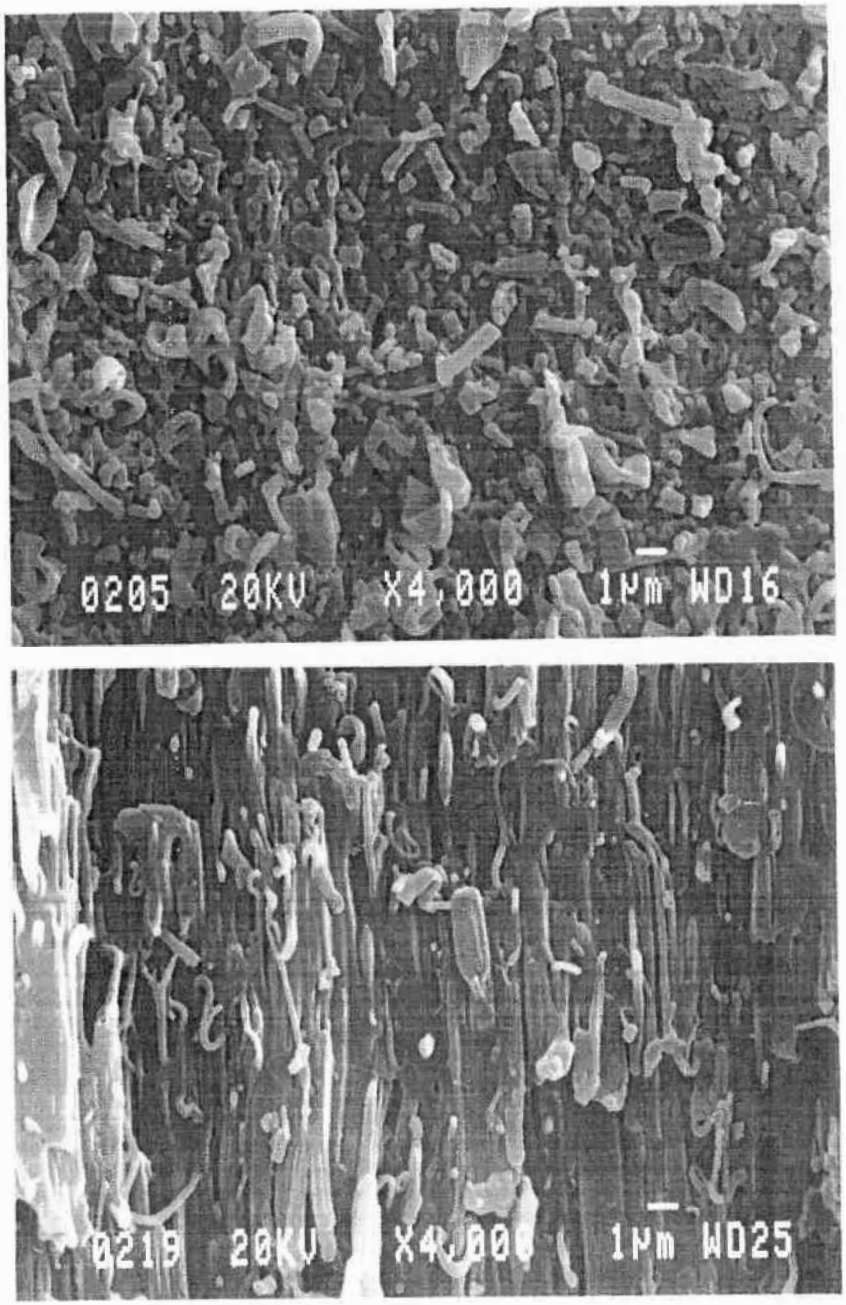


a

b

Figure II-25 — Photographie près de la paroi - surface perpendiculaire (Pd) ou parallèle (Pl) au sens de l'écoulement

403-10 p=13,7 a: Pd; b: Pl

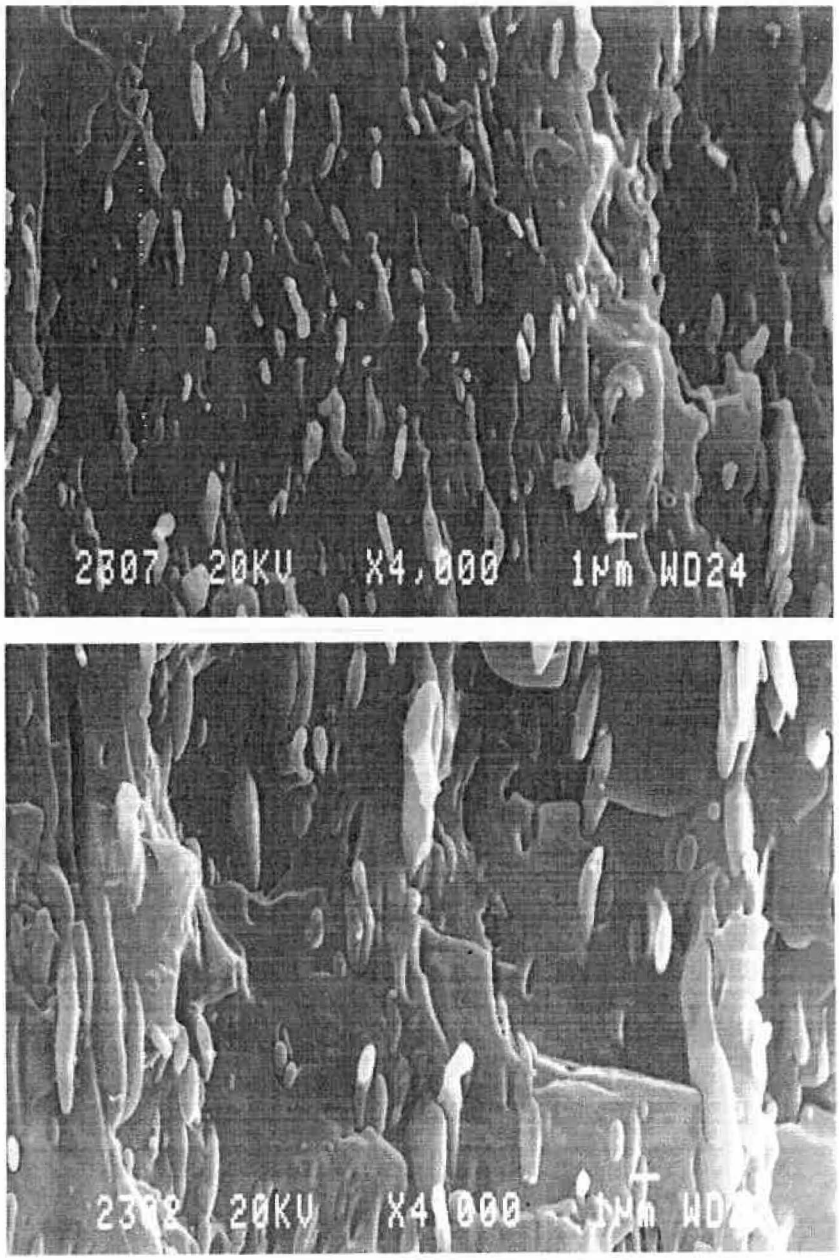


c

d

Figure II-25 - Photographie près de la paroi - surface perpendiculaire (Pd) ou parallèle (Pl) au sens de l'écoulement

403-30 p=13,7 c: Pd; d: Pl



a

b

Figure II-26 - Photographie près de la paroi - surface parallèle au sens de l'écoulement

a: 397-20 p=4,55; b: 393-20 p=11,2

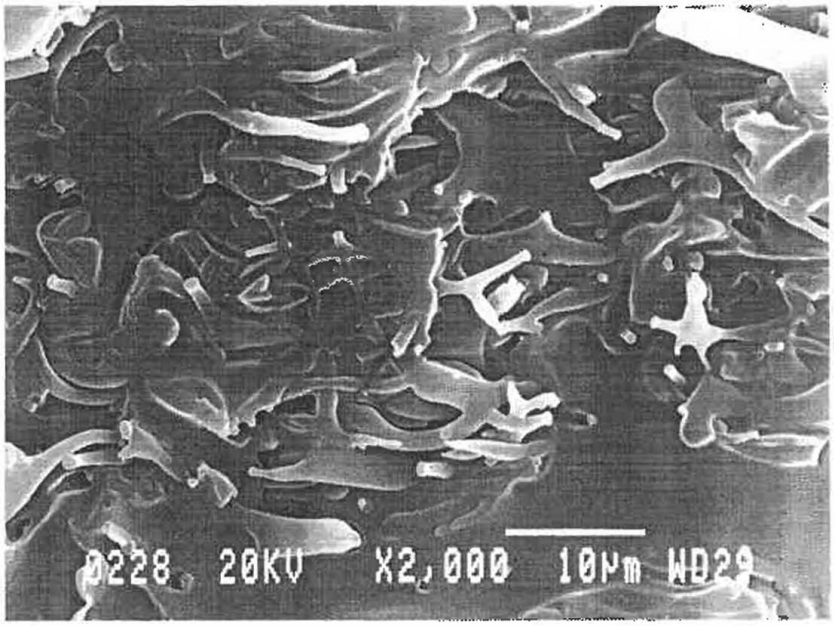


Figure II-27 - Photographie à la ligne de soudure 403-40 p=13,7.

CHAPITRE III

DISCUSSION

Dans ce chapitre, l'interprétation et la discussion des résultats sont présentés en trois parties. En première partie, les effets de la **concentration de la phase dispersée** sont analysés. En deuxième partie, la nature de l'**écoulement dans la cavité** est analysée par l'étude des effets de la présence d'une ligne de soudure, de la forme et de l'épaisseur de la cavité. En dernière partie, c'est l'importance du **rapport de viscosité p** qui est étudiée.

III-1 Concentration de la phase dispersée

Les valeurs utilisées dans les figures II-7 à II-12 proviennent des tableaux II-6 et II-7. Les valeurs du module d'élasticité obtenues pour les échantillons de PP vierge lors des tests de traction et de flexion ont varié autour de 1150 MPa. Le fabricant donne une valeur de 1700 MPa pour le module d'élasticité en flexion. La différence peut être attribuée au fait que lors des tests en laboratoire, la température moyenne était de l'ordre de 26 °C. Or le PP est très sensible aux différences de température. Hartmann et al. [60] ont montré que le module du PP varie de

1600 à 1160 MPa lorsque la température varie de 22 à 32 °C. La différence peut être aussi due à l'effet de peau. Ainsi en utilisant les valeurs 1150 MPa et 2300 MPa pour les modules du PP et du PC respectivement, le rapport E_2/E_1 varie entre 1 et 2, lorsque la concentration du PC varie entre 0% et 100%. La figure II-7 résume les résultats obtenus des propriétés en traction d'un mélange PP/PC. Le module d'élasticité en traction augmente sensiblement (voir figure II-8). Il y a une légère augmentation de la contrainte au seuil d'écoulement (voir figure II-9). Il y a également une nette diminution de l'élongation à l'écoulement (environ 40%) qui ne parait pas à la figure II-7, la mesure de l'élongation n'étant pas assez précise pour ces tests, mais qui est visible à la figure II-10. L'état de rupture passe de ductile pour le PP vierge, à fragile pour le mélange à 40% PC.

Dobkowski [61] a montré que pour un mélange PP/PC, il y a deux températures de transition vitreuse très proche de celles des composants, indiquant donc la formation d'une structure hétérogène. Les photos prises au microscope électronique à balayage (voir figures II-21 à II-27) montrent bien que la structure est de nature hétérogéne à deux phases. Le mélange PP/PC est donc bien un mélange immiscible.

Les figures II-21 b,f, II-22 b,f, II-23 et II-24 montrent que le mélange PP/PC a bien une structure morphologique qui dépend fortement de la concentration de la phase dispersée. En effet lorsque la concentration du PC est de 20%, la forme de celui-ci est essentiellement sphérique et/ou elliptique, plus ou moins étirée, tandis que pour des concentrations de 40%, la structure du PC tend plus vers des ellipses très allongées et même des fibres. La présence d'un domaine de structure sphérique laisse envisager que les propriétés du mélange sont isotropes vues l'isométrie de la phase dispersée. Tandis que la présence d'un domaine de structure elliptique et/ou fibreuse (anisométrie de la phase dispersée) donneront des propriétés anisotropes.

Le PP (semi-cristallin) cristallise après que le PC (amorphe) ait refroidi en dessous de sa température de transition vitreuse ($T_{g\ PC}$ = 150 °C). La valeur du retrait pour le PP est d'environ 2% tandis que celle du PC est d'environ 0,6%. La contraction volumique du PP emprisonne le PC qui s'est dipersé ("compact fitting"). Toutes les photos prises au microscope électronique montrent bien ce phénomène, qui devrait donc surpasser les effets négatifs de l'immiscibilité du mélange et la faible adhésion entre les phases.

Lors de l'augmentation de la concentration du PC, la

valeur E_2/E_1 augmente linéairement (figure II-8). Le mélange 407 (p=5,57) a un rapport E_2/E_1 plus élevé que le mélange 403 (p=13,7). L'écart qui existe entre les mélanges s'accroit avec l'augmentation de la concentration de PC et atteint 0,18 à 40% de PC. La figure II-12 montre que le rapport E_{f2}/E_{f1} augmente aussi de façon linéaire. Le rapport E_{f2}/E_{f1} est plus élevé que le rapport E_2/E_1 pour toutes les concentrations. Ceci peut être relié à la nature même de la sollicitation en flexion où, grâce à la forme de la phase dispersée, la répartition des charges sur toute l'épaisseur de la pièce moulée est meilleure et permet ainsi un renforcement de la matrice.

A la figure III-1, plusieurs modèles théoriques représentent le module d'élasticité du mélange PP/PC selon la concentration de PC. Les points expérimentaux obtenus sont aussi tracés (ils proviennent de la figure II-8). Parmi les courbes théoriques celles de Takayanagi et de Paul[1] (limites inférieures et supérieures) sont celles qui sont les plus applicables.

[1] : Pour les équations de Takayanagi et de Paul, les valeurs des coefficients de Poisson du PP et du PC sont 0,39 et 0,40 respectivement.

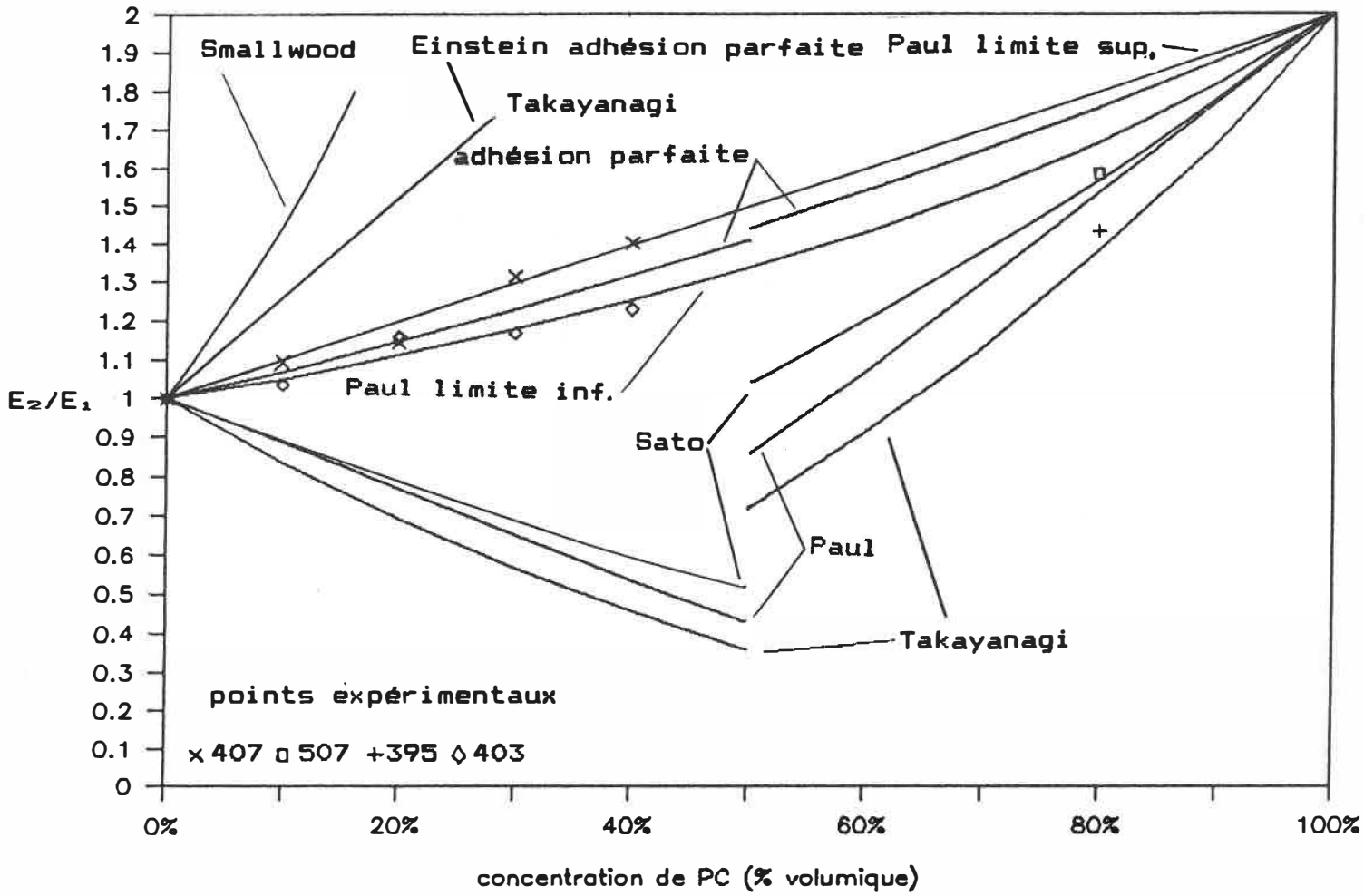


Figure III-1 - Rapport de module E_2/E_1 - effet de la concentration de PC - modèles théoriques.

En effet ce sont elles qui se rapprochent le plus des résultats expérimentaux jusqu'à 40%. Ceci est en accord avec les constatations tirées des observations morphologiques et des propriétés intrinsèques du PP, donc de la nature de l'interface entre les phases.

Le tracé de l'équation de Einstein avec adhésion parfaite (I-9) ne s'applique pas car elle s'éloigne considérablement des points expérimentaux. Ceci provient du fait que pour cette équation, l'hypothèse de base est que la phase mineure doit avoir un module d'Young beaucoup plus élevé que celui de la matrice, or pour le mélange PP/PC, le rapport E_2/E_1 est de 2. Pour la même raison les équations de Smallwood (I-11) et de Sato et Furukawa (I-12) avec adhésion parfaite sont inadéquates car elles prédisent des modules trop élevés. Cependant par un effet du hasard, le tracé de l'équation de Einstein, pour des systèmes où l'adhésion entre les phases est inexistante, suit les points expérimentaux. Le rapport entre les modules étant de 2, cette équation ne peut que suivre de près les propriétés du mélange puisque son terme multiplicatif est $(1 + \phi_2)$. L'équation de Sato et Furukawa pour une adhésion nulle se révèle inadéquate pour des mélanges dont la concentration en PC est inférieure à 50%. En effet en dessous de ce pourcentage, la contraction du PP annule les effets de l'inexistance d'adhésion entre les phases. Les équations

d'Einstein, Smallwood et Sato sont donc considérées inapplicables pour un mélange PP/PC.

Les tracés des équations de Paul (I-18 et I-19) et de Takayanagi (I-15) suivent donc de très près les courbes expérimentales qui couvrent des mélanges allant jusqu'à 40% PC. Même si de 20% à 40%, la phase mineure n'a plus une forme isométrique et qu'ainsi une des conditions essentielles à l'application des équations théoriques n'est pas respectée, les courbes expérimentales suivent toujours les courbes théoriques. La présence même du PC assure l'augmentation au module du mélange et l'état semi-cristallin du PP assure une certaine cohésion. La nature anisométrique de la structure de la phase dispersée et son orientation parallèle à l'écoulement permettent de suggérer que pour des concentrations entre 20% et 40%, le module d'élasticité en traction serait supérieur dans le sens perpendiculaire à l'écoulement.

Kunori et Geil [47] ont montré que pour un mélange polycarbonate/polyéthylène haute densité (PC/PEHD) 50/50, la structure est quasi-lamellaire et continue. Favis et al. [26] ont montré que pour un mélange PP/PC l'inversion de phase se situait aux alentours de 50% PC. Les figures II-23 c et II-24 c montrent en effet que le PC est presque sous forme continue. Pour des concentrations élevées de PC

(supérieures à 40%) ce phénomène peut être désavantageux puisque la contraction du PP peut séparer les phases en présence en créant un vide aux limites interfaciales.

Il faut s'attendre pour des concentrations élevées de PC à une chute relative des propriétés du mélange par rapport aux propriétés du PC. Les deux points expérimentaux à 80% PC semblent confirmer cette tendance. Toutefois cette faiblesse peut aussi être due à la difficulté de mouler le PC à 250 °C. Cette fois-ci, l'anisométrie de la phase dispersée, présente pour des concentrations allant de 50% à 70%, contribuerait à une diminution relative du module. Comme le PP est devenu la phase mineure, il faut s'attendre à ce qu'il soit sous forme sphérique pour des concentrations supérieures à 70% et qu'en cristallisant, il se dissocie du PC celui-ci formant une cavité autour du PP lorsqu'une contrainte est appliquée. Les tracés des équations pour une adhésion nulle (Sato et Furukawa I-13, Takayanagi I-15, Paul I-19) seraient plus appropriés.

La figure III-2 présente les résultats obtenus et les résultats escomptés pour la valeur du module d'élasticité selon la concentration du PC. Il s'agit donc d'un modèle empirique, proposé, qui résume le comportement du mélange PP/PC. La différence entre les deux courbes tracées dépend du rapport de viscosité.

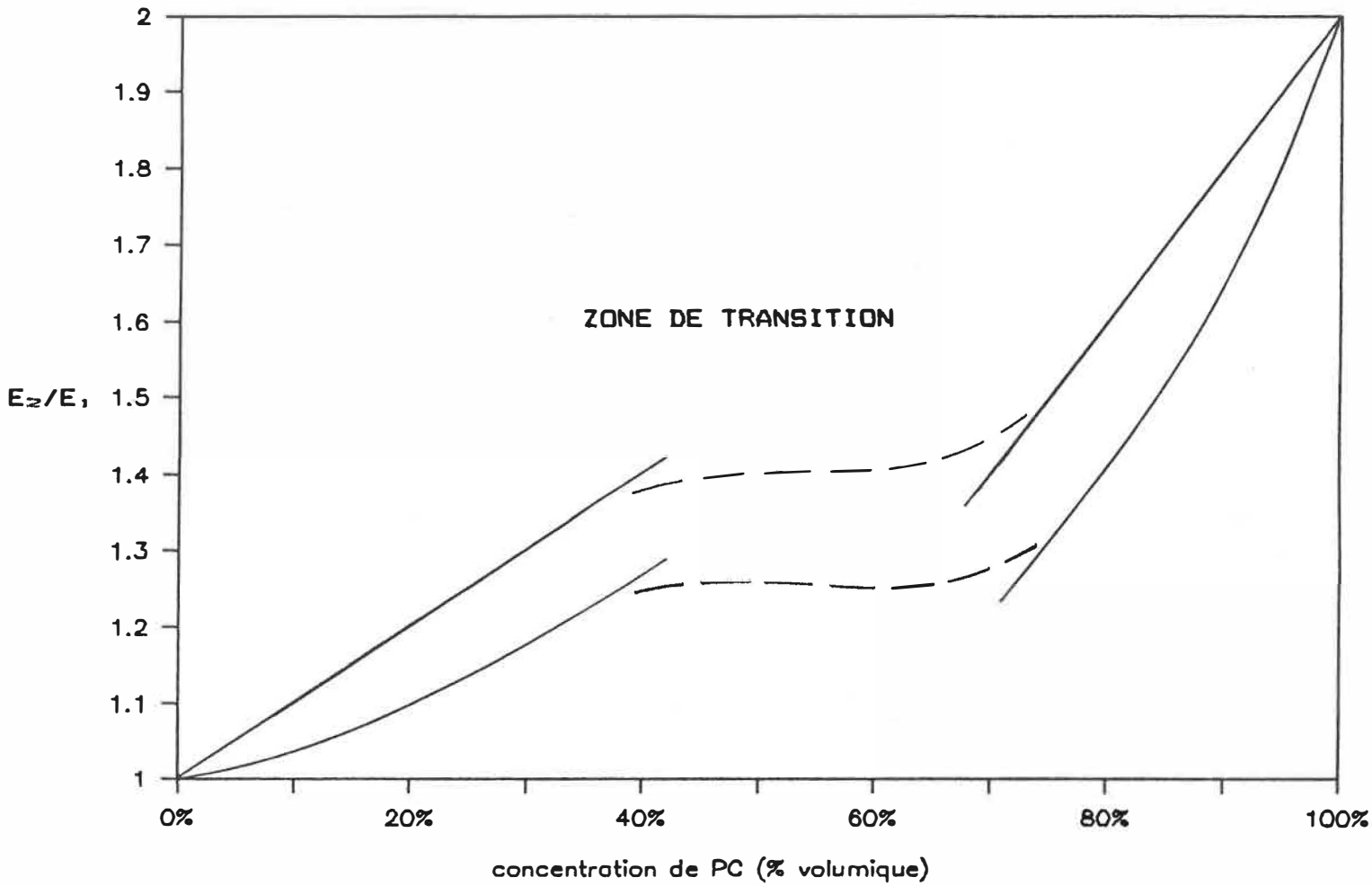


Figure III-2 - Rapport de module E_2/E_1 - effet de la concentration de PC - modèle proposé.

Il est à noter que pour ces concentrations allant jusqu'à 50%, les résultats obtenus sont analogues à ceux pour des mélanges ayant une adhésion parfaite alors que l'on est bien en présence d'un mélange immiscible. Ceci s'explique grâce aux deux raisons citées auparavant soit: 1) la cohésion assuré par la contraction du PP et 2) la contribution du PC ($E_{PC} = 2\ E_{PP}$). Ces deux raisons combinées sont des plus importantes puisqu'elles assurent la continuité du déplacement à l'interface des phases en présence. Il est clair que cette continuité n'est pas due à des liaisons chimiques puisqu'elles sont inexistantes pour ce mélange et qu'elle varie selon la concentration de PC.

Les contraintes au seuil d'écoulement du PP et du PC sont égales à 32 MPa et 62 MPa respectivement; le rapport $\sigma_{é2}/\sigma_{é1}$ varie donc entre 1 et 1,94. La figure II-9 montre qu'il y a une légère augmentation de la contrainte à l'écoulement avec l'augmentation de la concentration du PC. La différence entre les deux mélanges est faible mais elle s'agrandit avec l'augmentation de la concentration de PC.

La figure II-10 montre bien la nette diminution du rapport $\epsilon_{é2}/\epsilon_{é1}$: jusqu'à 40%, pour 40% PC. La différence entre les deux mélanges est minime. La figure II-11 montre également la diminution très nette de l'élongation à la rupture qui passe de 80% à 10% pour une concentration de PC

variant de 10% à 40%. Ainsi l'état de rupture des mélanges passe de ductile (pour des mélanges 90/10 et 80/20) à semi-fragile (70/30) puis à fragile (60/40). Ce phénomène se remarque par le rétrécissement, et même la disparition, de la zone d'écoulement qui est abordé lors de l'augmentation de la concentration du PC (voir les courbes de traction à l'annexe 1.2). A des faibles concentrations de PC, le mélange 407 est plus ductile que le mélange 403 mais l'écart entre les deux diminue très rapidement.

Pendant l'étirement, les échantillons de PP/PC sont caractérisés par un blanchissement très net lors de la formation d'une zone de striction. Ceci est attribuable à la légère cavitation, isolant les particules de PC, qui se produit lors d'une rupture. Le rétrécissement de la zone d'écoulement qui est abordé lors de l'augmentation de la concentration du PC (voir figure II-7) sont dus à l'apparition, lors de l'étirement des échantillons, de bandes de cisaillement à la surface. Ces bandes apparaissent surtout entre les points d'écoulement inférieur et supérieur et ont un angle d'approximativement 45°. Les bandes de cisaillement ont été remarquées par plusieurs auteurs [62,64]. Il faut préciser que l'apparition et la formation de ces bandes sont aléatoires et semblent varier selon la nature de l'interface PP-PC donc de la concentration du PC.

Le rapport $\epsilon_{éPC}/\epsilon_{éPP}$ est approximativement 0,73 or pour des concentrations de PC de 30% et 40%, le rapport $\epsilon_{é2}/\epsilon_{é1}$ est en dessous de cette valeur. L'anisométrie de la phase dispersée présente pour des mélanges à 40% PC (voir figures II-23 c et II-24 c) explique la nette diminution de la valeur de l'élongation à la rupture. En effet, la rupture est facilitée par le manque d'adhésion entre les phases et elle se propage rapidement le long des fibres de PC. La valeur de ϵ_r diminue jusqu'à 10% (voir figures II-7 et II-11). L'analyse de la figure II-7 et surtout celle des courbes de traction (annexe 1.2) montrent bien la différence qui existe entre le PP vierge et le mélange PP/PC 90/10. L'instabilité de la structure du mélange 90/10 lors de l'étirement après la zone d'écoulement est due à la présence de particules de PC entre les fibres de PP. Ces particules empêchent l'étirement compact des fibres de PP et créent des entailles qui provoquent une rupture prématurée de certaines fibres, entrainant une diminution de ϵ_r.

A la figure III-3, plusieurs modèles théoriques représentent la contrainte du mélange PP/PC selon la concentration de PC. Les points expérimentaux obtenus sont aussi tracés; ils proviennent du tableau II-5.

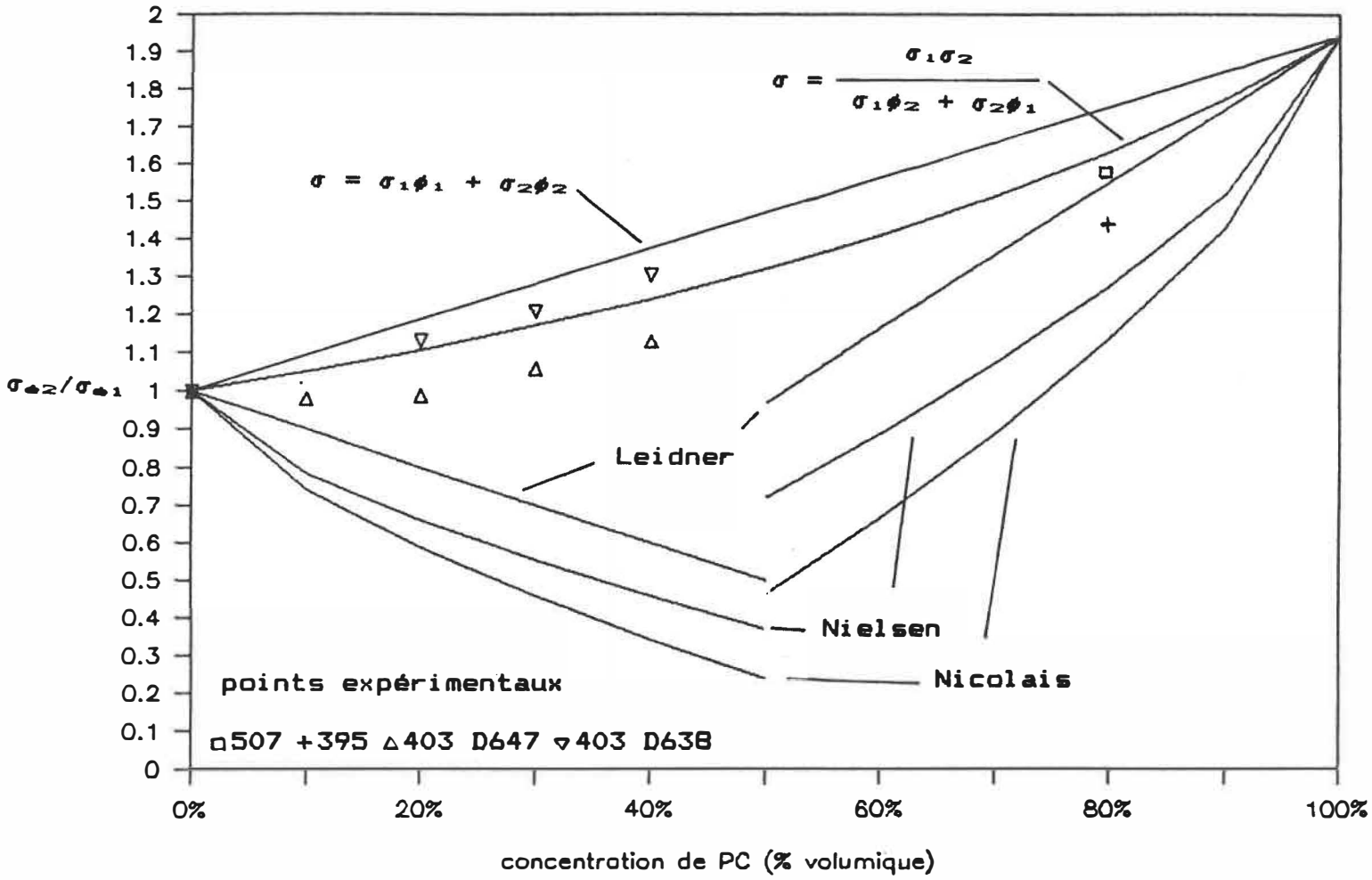


Figure III-3 - Rapport de contrainte $\sigma_{\spadesuit 2}/\sigma_{\spadesuit 1}$ - effet de la concentration de PC - modèles théoriques.

Les équations de Leidner, Nielsen et Nicolais (I-22 à I-25) ne sont pas applicables pour une concentration de PC inférieure à 50%. En effet ces trois équations ont été proposées pour des mélanges dont l'adhésion entre les phases est nulle, la contribution de la phase mineure à l'amélioration de la contrainte est donc négligée. Cette supposition provient aussi du fait que ces auteurs ont étudié des mélanges avec une matrice plus rigide que la phase dispersée. Or pour le mélange PP/PC, cette supposition n'est pas valable car même s'il n'y a pas vraiment d'adhésion entre les phases, la contribution du PC ne peut pas être négligée. Il faut donc s'attendre à avoir une contrainte qui varie selon les équations d'additivité I-27 ou I-28 avec un facteur de concentration de contrainte. La figure III-4 montre les deux types de rupture possibles. Le coefficient de concentration de contrainte dépend donc de la forme de la phase dispersée et de la nature de l'interface.

Les tracés des équations d'additivité (I-27 et I-28) suivent d'assez près les courbes expérimentales couvrant des mélanges allant jusqu'à 40% de PC. Même si de 20% à 40%, la phase mineure n'a plus une forme isométrique, les courbes expérimentales suivent toujours les courbes théoriques. La contribution du PC assure l'augmentation de la contrainte du mélange ($\sigma_{éPC}$ = 1.94 $\sigma_{éPP}$) et l'état

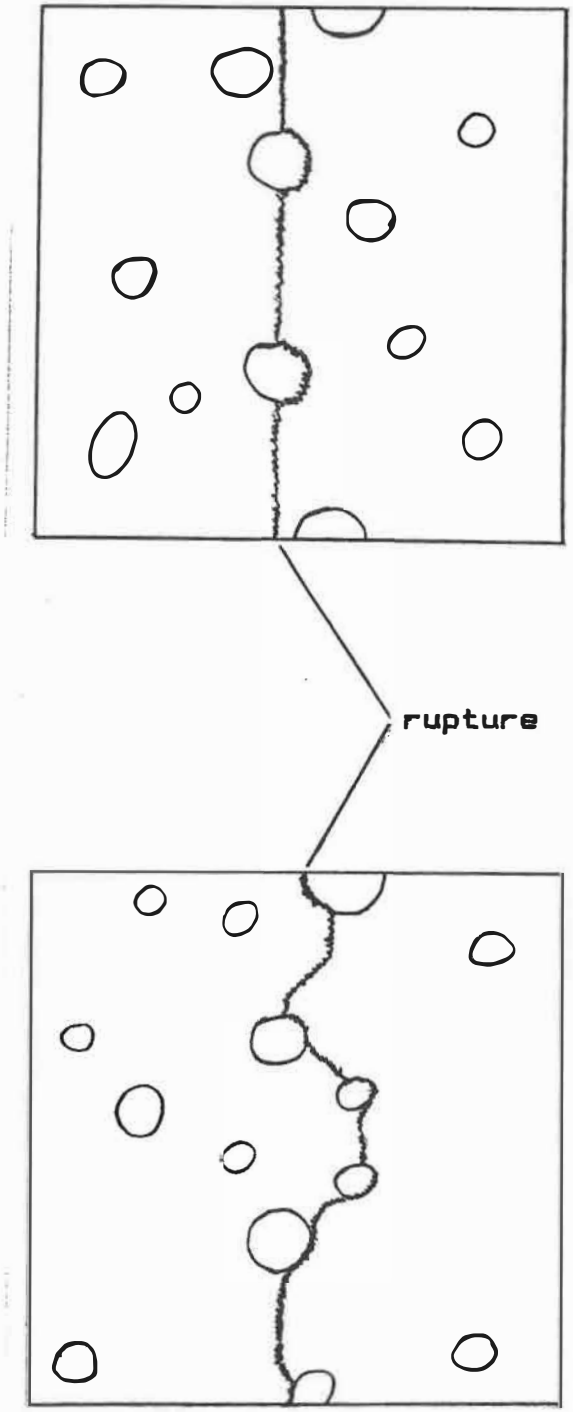


Figure III-4 - Faciès de rupture possibles

semi-cristallin du PP assure une certaine cohésion.

La nature anisométrique de la structure de la phase dispersée et son orientation parallèle à l'écoulement permettent de suggérer que pour des concentrations entre 20% et 40%, la contrainte serait supérieure dans le sens perpendiculaire à l'écoulement.

Pour des concentrations de PC supérieures à 50%, le PP devient la phase dispersée. Le PP étant séparé du PC et parfois même isolé dans une cavité lorsqu'une contrainte est appliquée, la contribution s'en trouve diminuée. Les deux points expérimentaux à 80% PC semblent confirmer cette tendance. L'utilisation des équations I-22 ou I-28 avec un facteur de concentration de contrainte serait plus appropriée. Kunori et Geil [48] ont noté que pour des mélanges PC/PS et PC/PEHD leurs résultats expérimentaux suivent les équations de Leidner et de Nicolais (I-22 et I-24). Là encore l'application d'une équation dépend donc de la nature de l'interface entre les phases.

La figure III-5 résume les résultats obtenus et les résultats escomptés pour la valeur de la contrainte selon la concentration de PC.

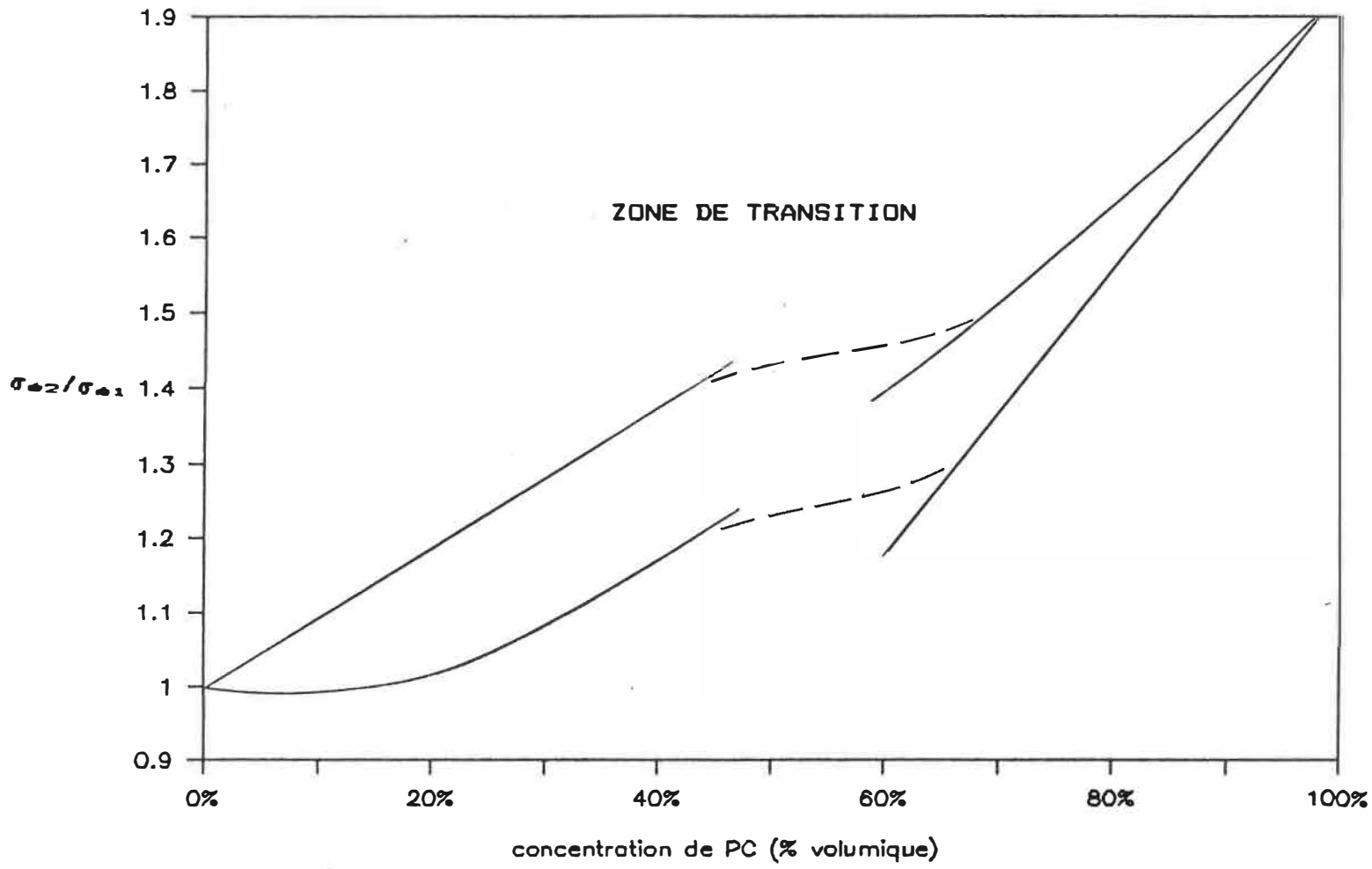


Figure III-5 - Rapport de contrainte $\sigma_{\bullet 2}/\sigma_{\bullet 1}$ - effet de la concentration de PC - modèle proposé.

III-2 Écoulement dans la cavité

Les valeurs utilisées dans les figures II-13 à II-15 proviennent des tableaux II-8 et II-9. Pour le PP vierge, les propriétés des échantillons ASTM D638 sont inférieures à celles des échantillons ASTM D647. Avec l'augmentation du PC, le module des échantillons D638 et D647 sans ligne de soudure est sensiblement le même (voir figure II-13).

Le remplissage de la cavité se fait de façon semi-circulaire. La figure II-2 illustre bien ce phénomène. Des observations visuelles d'échantillons à 80% PC permettent également de bien voir le remplissage graduel de la cavité. En effet avec une telle teneur en PC, le mélange est très visqueux, et tout en conservant les mêmes paramètres d'injection que des mélanges à faible teneur de PC, le remplissage du moule se fait très lentement. Le mélange se refroidit donc lentement et l'empreinte du front d'écoulement reste figée.

La nature de l'écoulement "fontaine" a un effet important sur la répartition et la déformation des particules de PC. Les figures III-6 à III-8 schématisent l'orientation des particules, leur distribution anisotrope à travers le moule pour différentes épaisseurs et sections de la cavité.

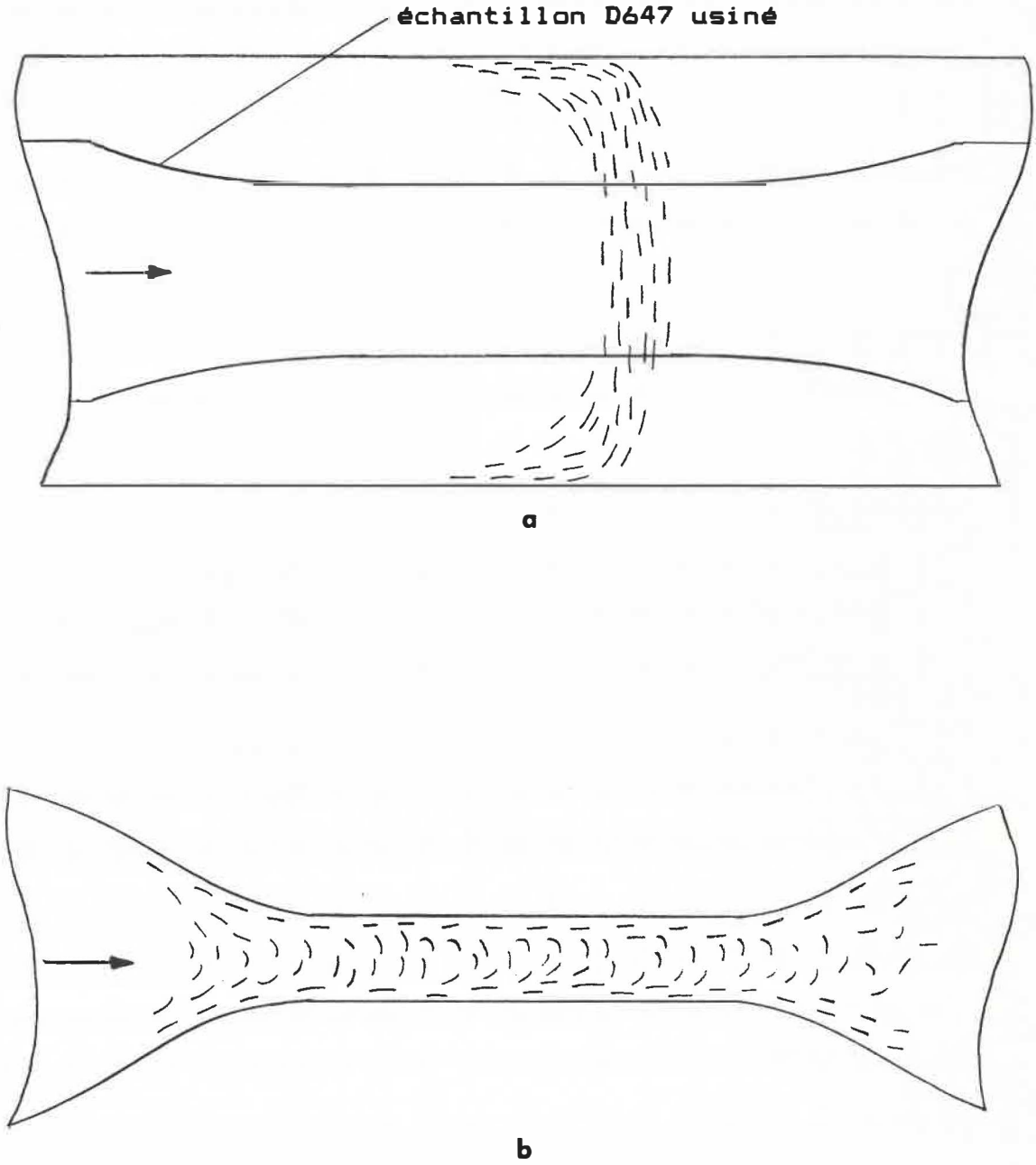


Figure III-6 - Orientation des particules

a: pour une cavité rectangulaire,

b: pour une cavité ASTM D638.

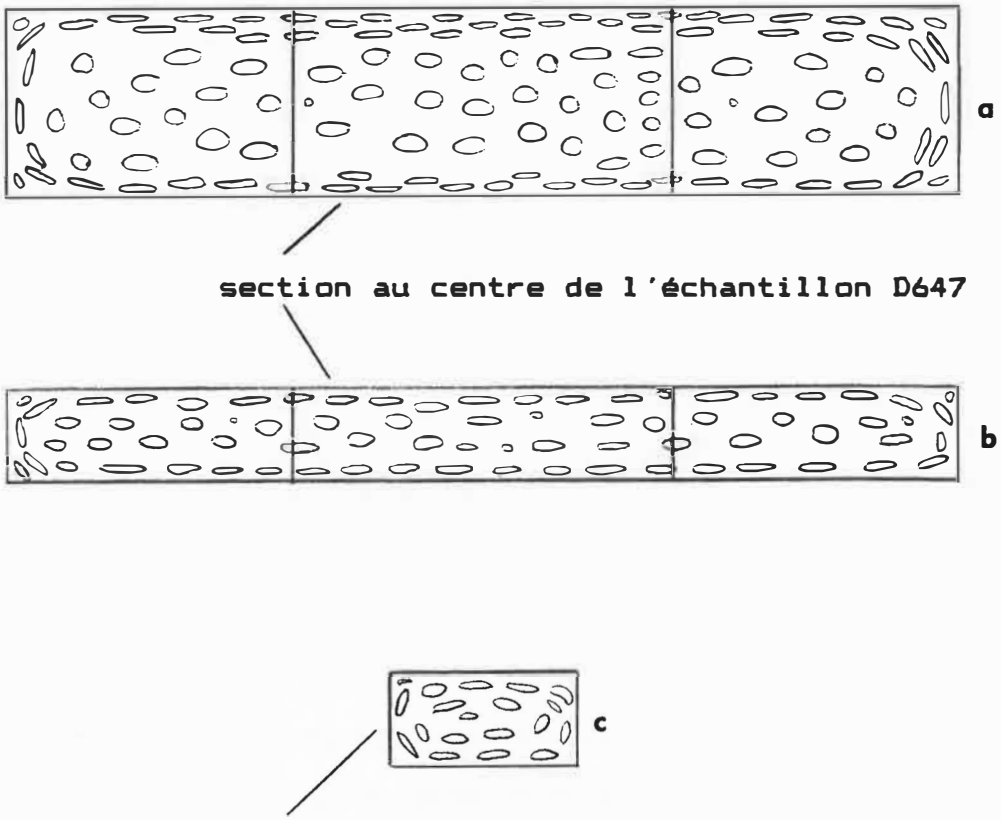


Figure III-7 - Représentation schématique de la répartition des particules (section perpendiculaire à l'écoulement).

a: cavité rectangulaire, 6 mm

b: cavité rectangulaire, 3 mm

c: cavité ASTM D638, 3 mm.

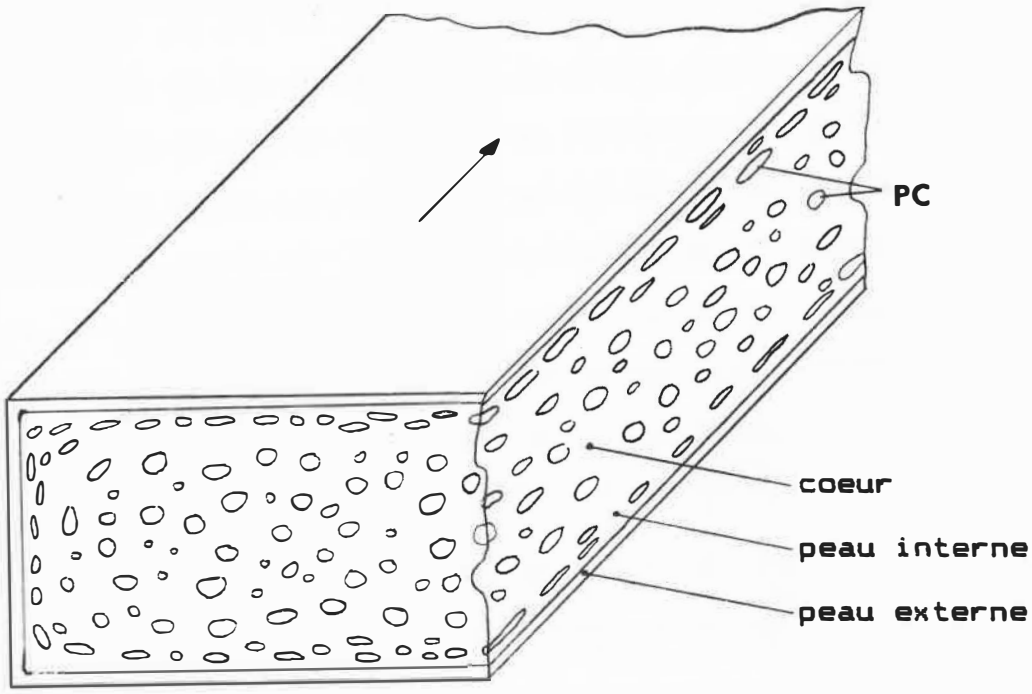


Figure III-8 - Représentation schématique de la structure.

Les figures II-24, II-25 et II-27 confirment bien les effets de l'écoulement "fontaine", soit l'orientation des particules le long du front d'écoulement et aussi la déformation des particules de PC près de la surface (figures II-25 c et d).

Favis et al. [25] ont noté que les particules de PC restent sous forme sphérique pour des pièces obtenues d'un mélangeur interne de type Brabender, seul le diamètre augmente (voir figure II-3). La présence de particules déformées pour des pièces moulées par injection s'explique. En effet, lors du remplissage de la cavité, le cisaillement au front d'écoulement est assez élevé pour déformer les particules de PC. Cette force de cisaillement augmente lorsque la concentration de PC augmente, les particules de PC se déforment en s'étirant le long du front d'écoulement. Elles atteignent une forme co-continue aux alentours de 50% PC (inversion de phase). La figure III-9 montre une représentation typique de la structure de la phase dispersée selon la concentration au centre de l'échantillon (faite à partir des photographies). Cette morphologie spécifique du mélange obtenue explique bien les variations des propriétés remarquées aux figures II-8 à II-12.

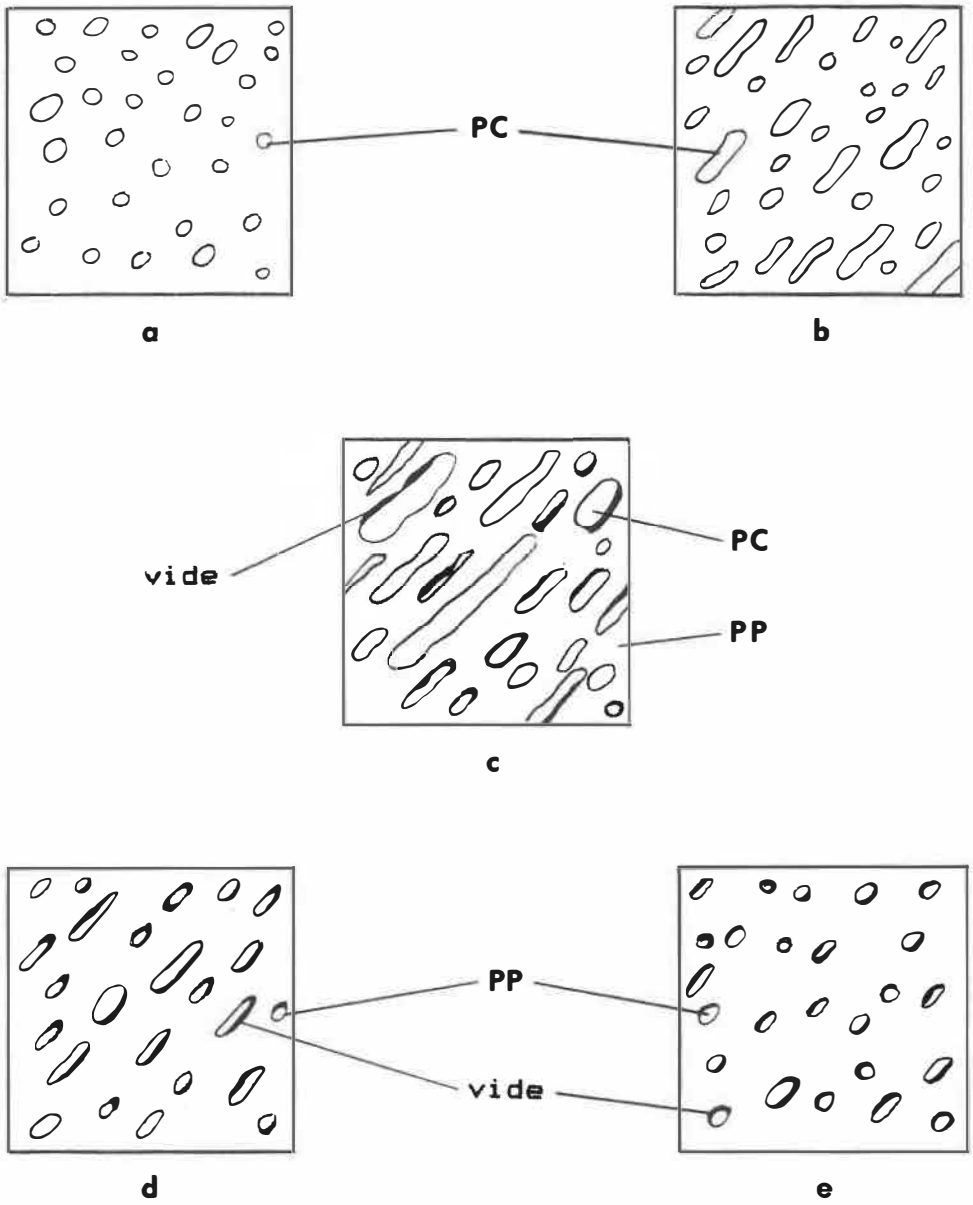


Figure III-9 - Représentation schématique de la forme de la phase dispersée pour un mélange PP/PC a: 90/10, b: 70/30, c: 50/50, d: 30/70, e: 10/90.

L'augmentation globale des dimensions des particules, observée lors des observations microscopiques, peut aussi être due à l'agrégation des particules lors du passage du mélange dans la vis de la presse à injection. Toutefois cette possibilité est douteuse étant donné la vitesse de rotation relativement élevée de la vis. Le refroidissement rapide lors de l'injection de la pièce empêche également la coalescence des particules de PC. Favis et al. [26] n'ont pas noté d'agregation des particules pour un mélange PC/PP.

La section restreinte du moule en forme d'échantillon de traction ASTM D638 type IV ne favorise pas l'écoulement (voir figure III-6 b) et les propriétés du PP s'en trouvent diminuées. En effet le refroidissement est plus rapide et l'écoulement se fait difficilement à travers le rétrécissement prononcé de la cavité. Le module du PP passe de 1202 MPa pour un échantillon ASTM D647 à 988 MPa pour un échantillon de traction ASTM D638. Toutefois vu la dimension réduite de la section, les particules de PC sont presque toutes fortement orientées dans le sens de l'écoulement. La valeur de la contrainte augmente donc plus rapidement avec l'augmentation de la concentration de PC que celle de l'échantillon ASTM D647 (voir figure II-14). Lors des tests de traction, il a été noté que pour les échantillons D638, la rupture se produit près de la section où il y a un agrandissement de la largeur (voir figure III-6 b). A la

zone de divergence, les particules reprennent leurs formes sphériques diminuant ainsi la valeur de la contrainte.

La ségregation des particules à la peau, allant même jusqu'à la formation d'une fine couche de PP vierge le long des parois de la cavité, a été observée par Southern et Ballman [64]. Des constatations visuelles d'échantillons (de 3 et 6 mm d'épaisseur) fracturés à l'azote liquide ont révélé qu'il y a en surface une peau d'un mm d'épaisseur environ. De plus cette peau, plus transparente que le centre, contient moins de particules de PC. Ceci est confirmé par le fait que lors des tests de traction, pour des échantillons à faible concentration de PC, la peau s'étire plus que le centre de l'échantillon. Les constatations de Fujiyama et Wakino [65] concernant la nature de la structure de PP et leurs propriétés en traction peuvent être utilisées pour un mélange.

Tout en considérant la nature particulière de la structure du mélange PP/PC, la figure III-10 illustre les comportements typiques en traction des différentes portions de cette structure (cette figure a été tracée à partir de déductions concernant la structure du mélange et n'a qu'une valeur qualitative).

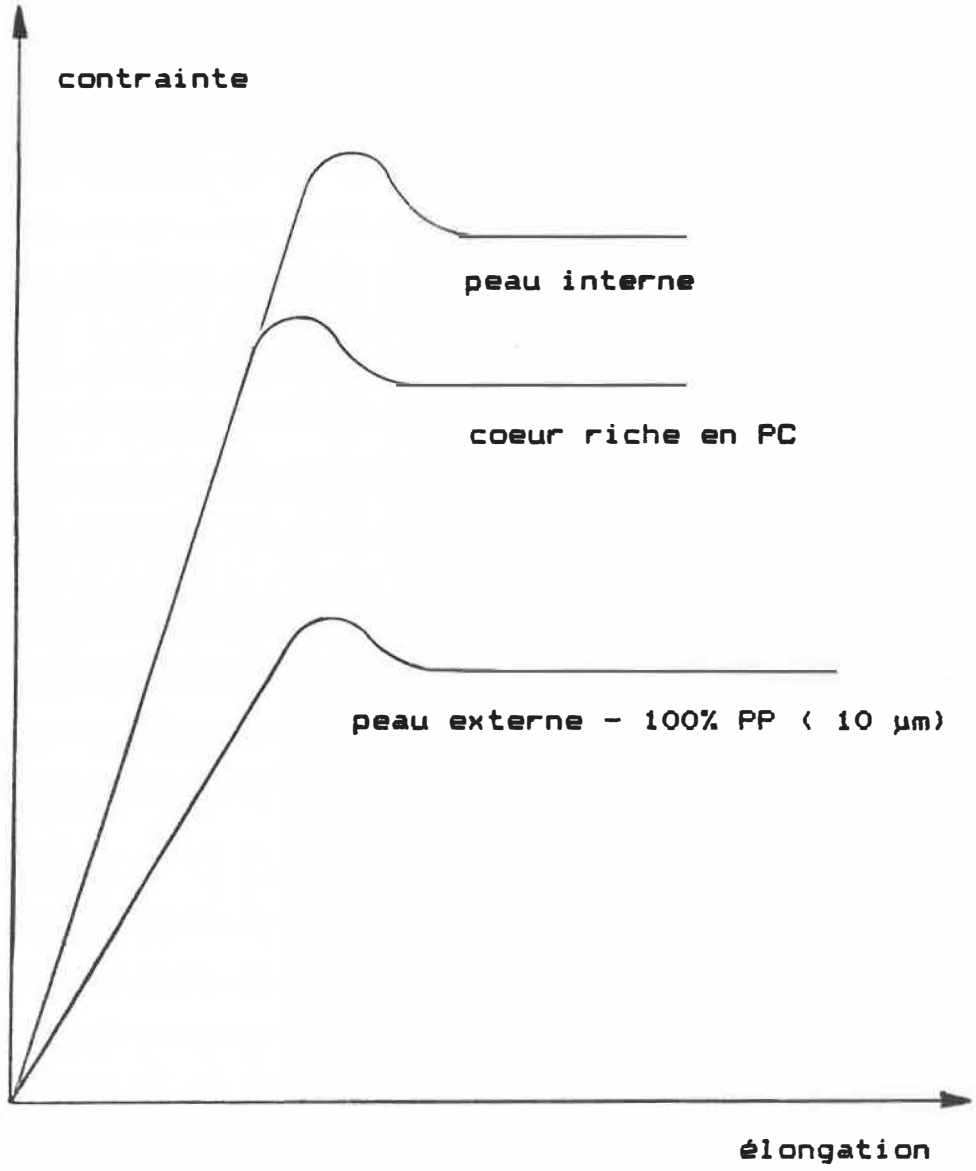


Figure III-10 - Courbes de traction typiques pour les différentes structures présentes.

Il est à noter que lorsque les plaques rectangulaires sont usinées en forme d'échantillons ASTM D647, elles sont privées de l'effet de peau et de l'orientation préférentielle sur les cotés. Les figures III-6 a et III-7 a montrent que la partie rétrécie de l'échantillon est prélevée au coeur de l'écoulement où les particules de PC sont orientées perpendiculairement au sens de la contrainte appliquée. Donc les résultats obtenus pour les échantillons ASTM D647 représentent uniquement les propriétés du noyau, qui sont forcément réduites étant donné l'orientation du PC. De plus lorsqu'une contrainte est appliquée, la rupture est initiée sur le bord de l'échantillon à l'interface entre le PP et le PC (il faut se rappeler que l'adhésion est faible). Si les pièces avaient été directement moulées sous forme de d'échantillon de traction, l'écart entre les propriétés des échantillons D647 et D638 type IV serait encore plus élevé, annulant et même sans doute surpassant les différences observées aux figures II-13 et II-14. Donc l'utilisation de pièces directement moulées sous forme d'échantillon de traction ASTM D638 type IV n'est pas à recommander pour des mélanges vue la dimension réduite de la largeur au centre (6 mm) et aussi le faible pourcentage de noyau par rapport à la section.

Pour le PP PD 888, les variations des propriétés selon l'épaisseur sont assez faibles (voir tableau II-10).

Pour le PP 6331, les variations sont importantes pour la contrainte à l'écoulement et pour le module d'élasticité. Ainsi le module diminue de 15% lorsque l'épaisseur passe de 6 mm à 1,6 mm. Pour les quatre mélanges étudiés, c'est le contraire qui se produit. En effet lorsque l'épaisseur diminue la contrainte à l'écoulement augmente, l'élongation à l'écoulement augmente également un peu et le module diminue beaucoup (sauf pour le mélange 507-20). Les valeurs de l'élongation à la rupture sont presque identiques lorsque l'épaisseur varie (voir figure II-19).

L'épaisseur de l'échantillon a donc un effet non-négligeable. En effet pour des échantillons ASTM D647 de 6 mm d'épaisseur, le coeur représente approximativement 66% de la surface; pour des échantillons de 3 mm d'épaisseur, moitié moins, soit 33% (voir figure III-7). Donc selon le modèle proposé à la figure III-10, il faut s'attendre à ce que le module augmente avec l'augmentation de l'épaisseur puisque le coeur a un module plus élevé que la peau, du à sa plus grande concentration en PC. Près de la peau, les particules de PC sont orientées dans le sens de l'effort appliqué lui procurant ainsi une contrainte plus élevée. Cette différence s'accentue lorsque l'épaisseur diminue puisque le pourcentage de coeur diminue. Les mêmes raisons expliquent l'augmentation de l'élongation à l'écoulement. Dans ce cas, le pré-étirement des particules de PC, lors du

remplissage de la cavité selon la direction de la contrainte appliquée, peut expliquer cette augmentation. Il est normal que l'élongation à la rupture n'augmente pas (voir figure II-11) puisque la diminution de l'épaissseur ne modifie pas l'adhésion entre les phases.

Ainsi mouler une pièce directement sous forme d'échantillon de traction ASTM D647 avec une épaisseur de 6 mm serait avantageux car l'écoulement est aisé et les effets de peau peuvent être étudiés en usinant les surfaces et les cotés s'il y a lieu.

Les faibles propriétés obtenues pour des échantillons avec une ligne de soudure (voir tableaux II-8 et II-9 et figures II-13 à II-15) s'expliquent en plusieurs points: le mauvais amalgame à la ligne de soudure des deux fronts d'écoulement qui sont déja refroidis, l'orientation perpendiculaire des particules de PC au niveau de la jonction et la présence d'une entaille en "V" due à l'air emprisonné (voir figure III-11). Lorsqu'il y a une ligne de soudure, le module de l'échantillon D647 est plus élevé que celui de l'échantillon D638. A 40% PC, les échantillons D638 cassent dès leur sortie du moule et le module des échantillons D647 diminue jusqu'à 964 MPa. L'écart type, lorsqu'il y a une ligne de soudure, augmente beaucoup avec l'augmentation de la concentration de PC.

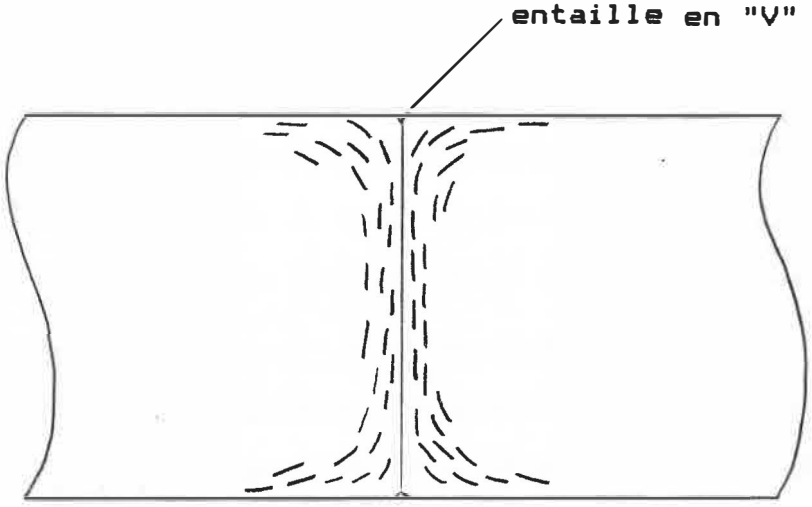


Figure III-11 - Orientation des particules à la ligne de soudure.

Pour des concentrations aussi élevées, le mélange est très visqueux donc il refroidit plus vite, car le front d'écoulement avance lentement, empêchant la formation de liens entre les deux fronts d'écoulement. La figure II-14 montre bien la diminution drastique (près de 80%) de la contrainte pour des taux élevés de PC lorsqu'il y a une ligne de soudure, quel que soit le type d'échantillon utilisé. Sans ligne de soudure, les échantillons D638 ont une contrainte nettement supérieure. La même diminution drastique est observée (voir figure II-15) pour l'élongation au seuil d'écoulement, qui est en fait l'élongation à la rupture lorsqu'il s'agit d'un mélange avec une ligne de soudure. Pour ces pièces, la rupture se produit à des élongations très faibles, soit environ 3%.

La diminution de la contrainte pour le PP vierge avec ligne de soudure pour un échantillon ASTM D638 semble être uniquement due à l'entaille en "V". Pour un échantillon ASTM D647, l'entaille a été éliminée lors de l'usinage (une entaille implique un facteur de concentration de contraintes). Des observations visuelles d'échantillons avec une ligne de soudure montrent que la surface du joint est presque lisse et donc que le PC est bien orienté perpendiculairement à la surface, c'est dire parallèle à l'écoulement. Il en résulte donc des diminutions drastiques de la contrainte et de l'élongation à l'écoulement tel que

montré aux figures II-14 et II-15. En effet, dès qu'il y a une ligne de soudure même pour des faibles pourcentages de PC, le mélange devient fragile tandis que pour le PP vierge l'élongation à l'écoulement diminue très peu.

Ainsi, pour l'étude des propriétés mécaniques et des effets de la ligne de soudure, de la peau et de l'orientation des particules, il est conseillé d'utiliser une plaque rectangulaire ou un échantillon de traction ASTM D647. La section étant plus grande, les études peuvent être plus spécifiques en usinant correctement l'échantillon.

III-3 Rapport de viscosité

Les valeurs utilisées dans les figures II-16 à II-20 proviennent des tableaux II-11 et II-12. La figure II-16 montre qu'il y a deux zones de variation pour le rapport E_2/E_1 selon le rapport de viscosité p. La limite entre ces deux zones se situe autour de p=6. Dans les deux zones, le rapport E_2/E_1 diminue légèrement avec l'augmentation du rapport de viscosité. Les mêmes constatations sont tirées de la figure II-20 (pour le module d'élasticité en flexion) mais les valeurs de E_{f2}/E_{f1} sont toujours plus élevées d'environ 0.15 par rapport à E_2/E_1.

La figure II-17 montre également deux zones dont la limite se situe autour de p=7. Dans la première zone, le rapport $\sigma_{é2}/\sigma_{é1}$ reste constant tandis que dans la deuxième zone, le rapport diminue sensiblement avec l'augmentation du rapport de viscosité. A la figure II-18, la limite entre les zones se situe également à p=7 et dans les deux zones le rapport $\epsilon_{é2}/\epsilon_{é1}$ augmente. Malgré cette augmentation, le rapport $\epsilon_{é2}/\epsilon_{é1}$ est toujours en dessous du rapport $\epsilon_{PC}/\epsilon_{PP}$ (0.73). A la figure II-19, deux zones pour l'élongation à la rupture apparaissent. Une zone "élevée" où la valeur de ϵ_r est égale à environ 21% et une zone "basse" où ϵ_r est égale à environ 13%. La limite entre ces zones se situe autour de p=10.

Les particules de PC sont plus faciles à déformer si elles sont dans une matrice plus visqueuse. En effet avec un rapport de viscosité p élevé, les forces de cisaillement pour déformer les particules de PC doivent être plus élevées. Ainsi pour le rapport p le plus élevé (donc avec la matrice la moins visqueuse), les particules de PC sont plus grosses car elles n'ont pas été très étirées: les propriétés du mélange diminuent donc. La figure III-12 illustre bien ce phénomène, la schématisation a été faite à partir de la figure II-21. La valeur de p=7 provient des constatations faites à partir des figures II-16 à II-18 et II-20.

Selon le rapport de viscosité, la déformation à la surface des particules de PC varie (voir figure II-26) ce qui influence beaucoup les propriétés du mélange. Karger-Kocsis et Csikai [23] recommendent une vitesse d'injection plus élevée pour des mélanges dont le rapport de viscosité est plus élevé. Le taux de cisaillement augmente avec la vitesse et permet de mieux déformer les particules.

A 20% PC l'effet du rapport de viscosité n'est pas marquant (voir figure II-16 à II-20) au niveau des différences obtenues mais la limite qui sépare les deux zones de variation est clairement déterminée.

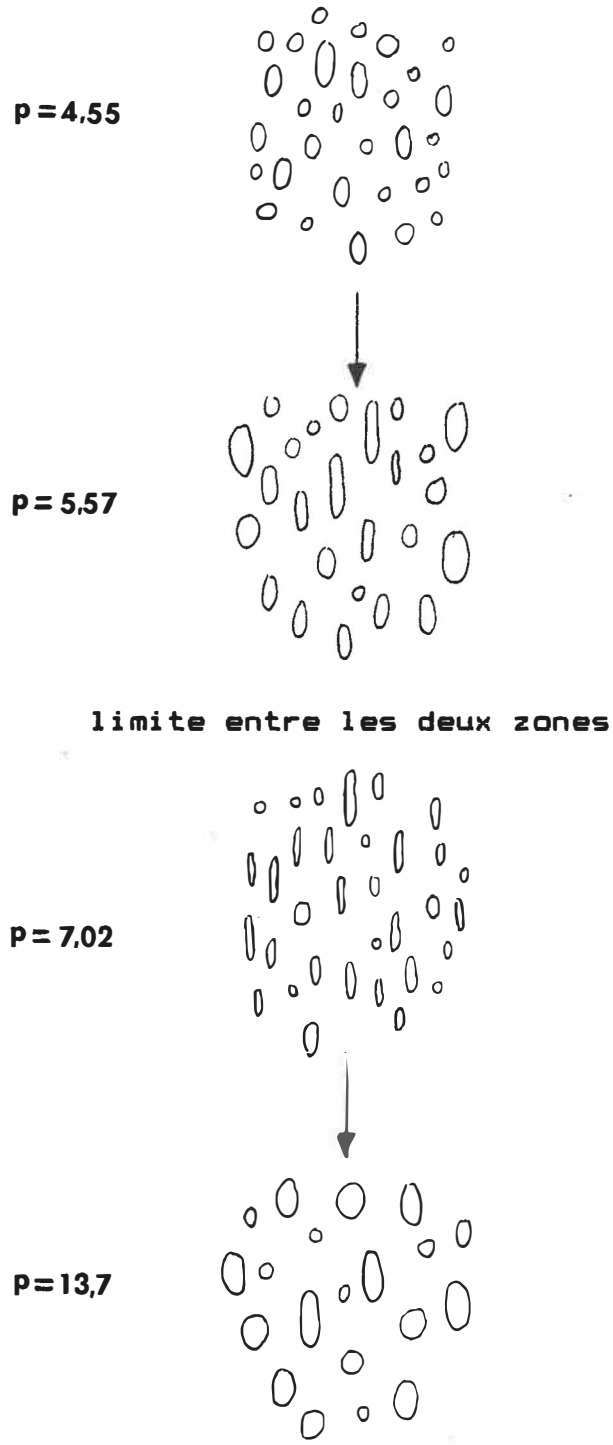


Figure III-12 – Représentation schématique de la forme des particules de PC selon le rapport de viscosité p

Les faibles différences s'explique par le fait que l'échantillon ASTM D647 est privé de l'effet de peau dans les coins lors de son usinage. Or près de la surface la déformation est grande et semble varier beaucoup selon le rapport de vicosité (voir figures II-19 et II-26) et des observations visuelles montrent que la rupture passe de fragile, pour un rapport p élevé, à une rupture ductile, pour un rapport p plus faible. Si à 20%, la différence est faible, elle s'agrandit beaucoup avec l'augmentation de la concentration du PC (voir figures II-8 et II-9); jusqu'à 20% pour 40% de PC.

La figure III-13 propose un modèle pour la variation du rapport E_2/E_1 en fonction du rapport p, de la concentration de PC et de l'épaisseur. Les courbes ont été tracées à partir des points expérimentaux et des constatations tirées auparavant lors de cette discussion (voir figures III-1 à III-3 et III-5). Les différences notées aux figures II-8 et II-9 s'expliquent donc. Pour un mélange avec un faible rapport p (407 p=5.57) les propriétés sont meilleures mais le moulage est plus difficile (au niveau du temps d'injection, du refroidissement) du à la plus grande viscosité du PP PD 888. Pour un mélange avec un rapport p élevé (403 p=13.7), les propriétés sont moins bonnes mais le moulage est plus aisé.

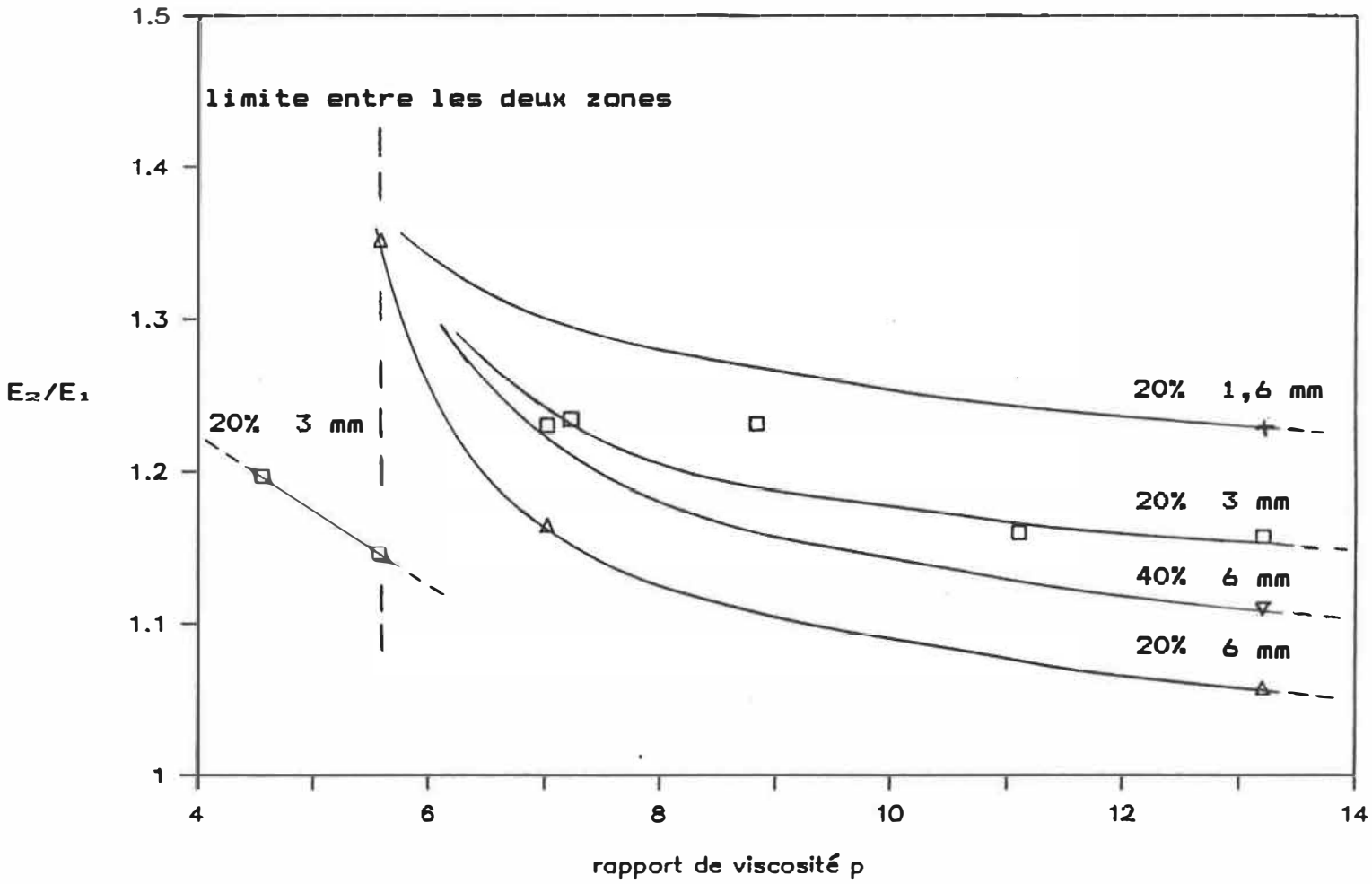


Figure III-13 - Rapport de module E_2/E_1 - effet du rapport de viscosité p - modèle proposé.

Favis et al. [26] ont noté l'accroissement du diamètre des particules de PC ainsi que de la polydispersité avec l'augementation du rapport de viscosité. De plus en analysant la figure II-3, la remarque suivante est faite: les particules de PP dans un mélange PC/PP sont plus petites que les particules de PC dans un mélange PP/PC ayant la même concentration pour la phase dispersée. Cette différence est due à la plus grande facilité à se déformer du PP grâce à sa viscosité moins élevée que celle du PC.

Plusieurs auteurs [36,47,48] ont noté des différences au niveau de la morphologie et des propriétés mécaniques lorsque le rapport de viscosité varie. Leurs résultats confirment les tendance observées pendant cette étude. Taylor [33] a noté que lorsque des particules sont dispersées dans un liquide Newtonien, à partir d'un rapport de viscosité de 4, les forces visqueuses ne sont pas assez élevées pour briser les particules. En moulage par injection cette valeur n'est pas valable étant donné les forces de cisaillement assez élevées qu'il y a lors du remplissage de la cavité. Taylor prédit une rupture des particules ("droplet breakup") lors de la diminution du rapport p. La figure III-12 montre cette réduction des dimensions des particules de PC lors de la diminution du rapport de viscosité. Il y a toutefois une limite à p=7 où les particules redeviennent plus grosses.

CONCLUSION

Après cette étude d'un mélange PP/PC, de nombreuses conclusions peuvent être tirées. D'autant plus qu'en les juxtaposant avec les résultats de Favis et ses collaborateurs [25,26], les effets dus au moulage par injection sont mis en évidence.

- C'est un mélange immiscible mais dont la nature semi-cristalline du PP en fait un mélange particulier. En effet, ses propriétés mécaniques sont semblables à celles d'un mélange ayant une adhésion parfaite. Toutefois après l'inversion de phase, le mélange se comporte comme un mélange incompatible avec une adhésion très faible.

- Lors du remplissage de la cavité, l'écoulement de type "fontaine" oriente les particules de PC le long du front d'écoulement. La structure présente alors deux zones: la peau avec des particules de PC plus déformées par le cisaillement et un noyau avec des sphères mais avec une concentration de PC plus élevée. Le mélange offre de faibles propriétés lorsqu'il y a une ligne de soudure. L'orientation parallèle des particules de PC à la ligne de soudure empêche la fusion des deux fronts d'écoulement et agit comme un facteur de concentration de contrainte.

- Le rapport de viscosité p a un effet non-négligeable sur les propriétés du mélange. En effet la déformation des particules de PC est plus facile pour des faibles rapport de viscosité. La force de cisaillement nécessaire pour déformer les particules est moins élevée.

- L'analyse des propriétés mécaniques et une brève étude morphologique montrent qu'il existe une limite du rapport de viscosité (autour de p=7) où les dimensions des particules de PC diminuent d'un coup et recommencent à augmenter par la suite.

Les suggestions suivantes sont apportées afin d'élargir les objectifs apportés à l'éventuel poursuite de ce travail.

- Le choix d'un mélange avec un rapport de viscosité assez élevé (autour de 7), une matrice de nature cristalline ainsi qu'une phase mineure plus rigide que la matrice offre des propriétés intéressantes et un intérêt commercial. Il est intéressant d'utiliser une concentration de la phase dispersée entre 20% et 40% selon les objectifs visés.

- L'utilisation d'une cavité ASTM D638 type IV est déconseillée pour l'étude des mélanges car leur section est trop faible et elle crée des problèmes lors du remplissage.

- Un complément intéressant à apporter serait une étude plus poussée de la morphologie grâce à une technique d'analyse d'images telle qu'utilisée par Favis et al. [26], afin de déterminer exactement les dimensions de la phase dispersée.

- Enfin l'étude des propriétés des mélanges en fatigue serait un domaine très intéressant à investiguer vue les nombreuses applications qui impliquent des sollicitations de ce type, d'autant plus que cette étude apporterait d'autres informations nécessaires à la compréhension du comportement des mélanges polymères.

RÉFÉRENCES

1. **J. BRANDRUP et E.H. IMMERGUT**, Polymer Handbook, Wiley, New York, 1976
2. **L.A. UTRACKI**, Polym. Eng. Sci., 22, 1166 (1982)
3. **L.A. UTRACKI et B.D. FAVIS**, Encyclopedia ofEngineering Materials, N.P. Cheremisinoff Ed., Marcel Dekker Publ., Matawan, 1988.
4. **T. HANCOCK**, Royaume-Uni, Brevet no. 11,147 (1846)
5. **L.H. SPERLING**, Recent Advances in Polymer Blends, Grafts, and Blends, Plenum Press, New York, 1974
6. **D. KLEMPNER et K.C. FRISCH**, Polymer Alloys: Blends, Blocks, Grafts, and Interpenetrating Networks, Plenum Press, New York, 1977
7. **J.A. MANSON et L.H. SPERLING**, Polymer Blends and Composites, Plenum Press, New York, 1976
8. **C.B. BUCKNALL**, Toughened Plastics, Applied Science Publishers, London, 1977
9. **D.R. PAUL et S. NEWMAN**, Polymer Blends, vols I et II, Academic Press, New York, 1978
10. **L. OLABISI, L.M. ROBESON et M.T. SHAW**, Polymer-Polymer Miscibility, Academic Press, New York, 1979
11. **D. KLEMPNER et K.C. FRISCH**, Polmer Alloys II, Plenum Press, New York, 1980
12. **D.R. PAUL et J.W. BARLOW**, J. Macromol. Sci.-Rev. Macromol. Chem., C18, 109 (1980)

13. **L.M. ROBESON**, Polym. Eng. Sci., 24, 587 (1984)

14. **P.J. PERRON**, Adv. Polym. Technol., 6, 79 (1986)

15. **S. GROSS**, Chem. Week, 137, (24), SAS1 (1985)

16. **M. LAUZON**, Canad. Plast., 44, (1), 33 (1986)

17. **L.A. UTRACKI**, Inter. Polym. Proc., 2, 3 (1987)

18. **J.W. BARLOW et D.R. PAUL**, Polym. Eng. Sci., 21, 985 (1981)

19. **G.N. AVGEROPOULOS, F.C. WEISSERT, P.H. BIDDISON et G.C.A. BOHM**, Rubber Chem. and Technol., 49, 93 (1976)

20. **M.V. TSEBRENKO, N.M. REZANOVA et G.V. VINOGRADOV**, Polym. Eng. Sci., 20, 1023 (1980)

21. **J. KARGER-KOCSIS, A. KALLO et V.N. KULEZNEV**, Acta Polymerica, 33, 14 (1982)

22. **J. KARGER-KOCSIS, A. KALLO et V.N. KULEZNEV**, Polymer, 25, 279 (1984)

23. **J. KARGER-KOCSIS et I. CSIKAI**, Polymer. Eng. Sci., 4, 241, (1987)

24. **S. WU**, Polym. Eng. Sci., 27, 335 (1987)

25. **B.D. FAVIS, J.P. CHALIFOUX et P. VAN GHELUWE**, S.P.E. ANTEC Tech. Papers, 33, 1326 (1987)

26. **B.D. FAVIS et J.P. CHALIFOUX**, Polym. Eng. Sci., 27, 1591 (1987)

27. **L. D'ORAZIO, R. GRECO, C. MANCARELLA, E. MARTUSCELLI, G. RAGOSTA et C. SYLVESTRE**, Polym. Eng. Sci., 22, 536 (1982)

28. **C. CIMMINO, L. D'ORAZIO, R. GRECO, G. MAGLIO, M.**

MALINCONICO, C. MANCARELLA, E. MARTUSCELLI, R. PALUMBO et C. RAGOSTA, Polym. Eng. Sci., 24, 48 (1984)

29. **C. CIMMINO, F. COPPOLA, L. D'ORAZIO, R. GRECO, G. MAGLIO, M. MALINCONICO, C. MANCARELLA, E. MARTUSCELLI, et C. RAGOSTA**, , Polym. Eng. Sci., 27, 1874 (1986)
30. **W.M. BARENSTEIN, D. HEIKENS et P. PIET**, Polymer, 15, 119 (1974)
31. **H. VAN OENE**, J. Colloid Interf. Sci., 40, 448 (1972)
32. **N. TOKITA**, Rubber Chem. and Technol., 50, 292 (1977)
33. **G.I. TAYLOR**, Proc. R. Soc., A226, 34 (1954)
34. **K. MIN, J.L. WHITE et J.F. FELLERS**, J. Appl. Polym. Sci., 29, 2117 (1984)
35. **Z. TADMOR**, J. Appl. Polym. Sci., 18, 1753 (1974)
36. **W.J. HO et R. SALOVEY**, Polym. Eng. Sci., 21, 839 (1981)
37. **R.C. THAMM**, Rubb. Chem. Technol., 50, 24 (1977)
38. **P. CIELO, B.D. FAVIS et X. MALDAGUE**, IMRI Symposium, Polyblends (1987)
39. **J.L. WHITE et W. DIETZ**, Polym. Eng. Sci., 19, 1081 (1979)
40. **S.C. MALGUARNERA**, Polym. Plast. Technol. Eng., 18, 1 (1982)
41. **E. NOLLEY, J.W. BARLOW et D.R. PAUL**, Polym. Eng. Sci., 21, 586 (1981)
42. **S.G. KIM et N.P. SUH**, Polym Eng. Sci., 26, 1200 (1986)
43. **L. NIELSEN**, J. Compos. Mater., 1, 100 (1967)
44. **S. WU**, Polymer, 26, 1855 (1985)

45. **S.Y. HOBBS**, Polym. Eng. Sci., 26, 74 (1986)

46. **J.R. STELL, D.R. PAUL et J.W. BARLOW**, Polym. Eng. Sci., 16, 496 (1976)

47. **T. KUNORI et P.H. GEIL**, J. Macromol. Sci.Phys., B18, (1), 93 (1984)

48. **T. KUNORI et P.H. GEIL**, J. Macromol. Sci.Phys., B18, (1), 135 (1984)

49. **A. EINSTEIN**, Ann. Physik, 17, 549 (1905)

50. **H.M. SMALLWOOD**, J. Appl. Phys., 15, 758 (1944)

51. **Y. SATO et J. FURUKAWA**, Rubber Chem. Technol., 35, 857 (1962)

52. **E.H. KERNER**, Proc. Phys. Soc., 69B, 808 (1956)

53. **S. UEMURA et M. TAKAYANAGI**, J. Appl. Polym. Sci., 10, 113 (1966)

54. **B. PAUL**, Trans. Mettalurg. Soc. AIME, 218, 36 (1960)

55. **J. LEIDNER**, J. Appl. Polym. Sci., 8, 1639 (1974)

56. **L. NICOLAIS et M. NARKIS**, Polym. Eng. Sci., 11, 194 (1971)

57. **S.Y. HOBBS**, J. Macromol., Sci.-Rev. Macromol. Chem., C19, (2), 221 (1980)

58. **A. GARTON**, Polym. Eng. Sci., 22, 124 (1982)

59. **J.R. WHITE et E.L. THOMAS**, Rubber Chem. and Technol., 57, (3), 457 (1984)

60. **B. HARTMANN, G.F. LEE et W. WONG**, Polym. Eng. Sci., 27, 823 (1987)

61. **Z. DOBKOWSKI, Z. KOHMAN et B. KRAJEWSKI**, Polymer Blends,

E. Martuscelli, R. Palumbo and M. Kryszewski Ed., Plenum Press, New York, 1980

62. **H.F. BRINSON**, Exp. Mech., 11, 467 (1971)

63. **C. BAUWENS-CROWET**, J. Mater. Sci., 9, 1197 (1974)

64. **J.H. SOUTHERN et R.L. BALLMAN**, J. Appl. Polym. Sci., 24, 693 (1979)

65. **M. FUJIYAMA et T. WAKINO**, J. Appl. Polym. Sci., 35, 29 (1988)

ANNEXE 1

RÉSULTATS DÉTAILLÉS

A l'annexe 1.1, les résultats sont présentés dans le même ordre que dans les tableaux II-6, II-8 à II-11, pour les tests de traction. Les tests de traction qui ont été réalisés sans extensomètre, sont représentés par des courbes de traction à l'annexe 1.2. A l'annexe 1.3, les résultats des tests de flexion, des tableaux II-7 et II-12, sont présentés en détail.

Annexe 1.1

Pour les derniers échantillons de quelques unes des séries, les résultats sont présentés à l'annexe 1.2 sous forme de courbes de traction.

PD 888 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,00	12,76	1176	2,8
2	3,00	12,66	1162	2,8
3	3,02	12,62	1167	2,7
4	3,02	12,60	1167	2,9
5	3,00	12,76	1169	2,8
6	3,02	12,66	1165	2,7
7	3,04	12,80		
8	3,02	12,66		
9	3,06	12,74		
10	3,02	12,76		

407-10 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,00	12,68	1147	2,2
2	3,02	12,68	1141	2,1
3	3,02	12,66	1156	2,3
4	3,02	12,76	1157	2,2
5	3,02	12,66	1155	2,3
6	3,02	12,68	1143	2,2
7	3,04	12,70	1151	2,3
8	3,04	12,64		
9	3,04	12,60		
10	3,02	12,70		
11	3,02	12,70		
12	3,02	12,58		

407-20 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,02	12,60	1160	2,0
2	3,02	12,76	1166	2,0
3	3,02	12,50	1148	2,0
4	3,04	12,70	1158	2,0
5	3,04	12,60	1144	2,1
6	3,02	12,68		
7	3,02	12,80		
8	3,02	12,76		
9	3,02	12,66		
10	3,02	12,60		

407-30 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,02	12,76	1258	1,8
2	3,02	12,80	1246	1,9
3	3,02	12,76	1246	1,8
4	3,02	12,64	1232	1,8
5	3,02	12,76	1238	1,8
6	3,02	12,76	1251	1,8
7	3,02	12,74		
8	3,00	12,74		
9	3,02	12,74		
10	3,02	12,70		
11	3,02	12,76		

407-40 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,04	12,74	1331	1,5
2	3,02	12,78	1322	1,6
3	3,02	12,70	1333	1,7
4	3,02	12,66	1316	1,7
5	3,02	12,76	1335	1,7
6	3,02	12,72	1323	1,6
7	3,02	12,74	1342	1,5
8	3,02	12,66		
9	3,02	12,66		
10	3,02	12,76		
11	3,02	12,76		
12	3,02	12,76		

6331 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,02	12,70	-	-
2	3,04	12,66	1219	2,7
3	3,02	12,68	1217	2,6
4	3,04	12,58	1214	2,7
5	3,02	12,50	1207	2,7

403-10 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,14	12,66	1203	2,1
2	3,18	12,64	1215	2,3
3	3,18	12,74	1222	2,2
4	3,17	12,70	1214	2,3
5	3,20	12,76	1219	2,2
6	3,18	12,76	1215	2,1
7	3,20	12,84		
8	3,20	12,73		
9	3,18	12,82		
10	3,20	12,70		
11	3,20	12,68		

403-20 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,10	12,60	1202	1,8
2	3,10	12,76	1223	1,9
3	3,14	12,50	1243	1,9
4	3,10	12,70	1215	1,9
5	3,10	12,60	1225	1,9
6	3,12	12,74		
7	3,14	12,70		
8	3,16	12,53		
9	3,14	12,76		
10	3,14	12,70		

403-30 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,10	12,70	1282	1,9
2	3,10	12,76	1282	1,8
3	3,10	12,66	1268	1,7
4	3,10	12,70	1282	1,7
5	3,10	12,70	1271	1,9
6	3,10	12,70	1268	1,9
7	3,10	12,70	1286	1,9
8	3,10	12,74		
9	3,10	12,70		
10	3,10	12,70		
11	3,10	12,70		

407-40 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,10	12,66	1282	2,0
2	3,10	12,70	1285	1,6
3	3,08	12,70	1269	1,6
4	3,12	12,70	1311	2,0
5	3,08	12,70	1273	1,5
6	3,08	12,70	1277	1,6
7	3,06	12,66	1270	1,7
8	3,04	12,72		
9	3,04	12,72		
10	3,04	12,70		
11	3,06	12,70		

507-80 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,00	12,90	1814	1,3
2	3,02	12,86	1846	-
3	3,00	12,76	1768	1,7
4	3,00	12,98	1809	-
5	3,02	12,84	1774	1,4

395-80 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,04	12,66	1702	1,6
2	3,04	12,86	1744	1,6
3	3,04	12,84	1725	1,6
4	3,02	12,68	1694	1,4
5	3,02	12,86	1750	1,5

6331 - échantillon D638

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,10	5,84	522	2,9
2	3,10	5,84	520	2,8
3	3,10	5,84	530	2,9
4	3,10	5,84	533	2,8
5	3,10	5,84	522	2,8
6	3,10	5,84	525	2,8

403-20 - échantillon D638

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,14	5,74	645	1,8
2	3,14	5,72	638	1,8
3	3,14	5,88	623	1,9
4	3,12	5,76	635	1,8
5	3,12	5,87	615	1,8

403-30 - échantillon D638

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,10	5,86	631	1,8
2	3,06	5,72	662	1,7
3	3,10	5,88	662	-
4	3,10	5,88	653	1,8
5	3,10	5,90	666	1,9
6	3,10	5,86	653	1,8

403-40 - échantillon D638

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,14	5,78	728	1,2
2	3,14	5,74	716	1,6
3	3,12	5,72	719	1,7
4	3,14	5,90	719	1,6
5	3,10	5,74	707	-
6	3,20	5,90	721	-

6331 l.s.- échantillon D638

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,10	5,74	450	2,8
2	3,10	5,75	454	2,6
3	3,11	5,74	453	2,8
4	3,14	5,86	458	2,8

403-10 l.s.- échantillon D638

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,06	5,70	321	0,6
2	3,04	5,68	343	0,7
3	3,10	5,70	354	0,8
4	3,04	5,72	363	0,6
5	3,08	5,82	342	0,6

403-20 l.s.- échantillon D638

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,10	5,84	232	0,3
2	3,10	5,84	229	0,3
3	3,10	5,84	224	0,4
4	3,10	5,84	226	0,3

403-30 l.s.- échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,14	5,84	154	0,3
2	3,10	5,70	147	0,2
3	3,10	5,70	143	0,2
4	3,10	5,70	149	0,2

6331 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,00	12,72	1267	2,7
2	2,96	12,76	1251	2,9
3	3,04	12,74	1276	2,7
4	3,00	12,72	1268	3,0
5	3,02	12,54	1253	2,8

403-10 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,02	12,78	1022	2,4
2	2,96	12,82	998	2,4
3	2,96	12,78	1007	2,0
4	2,96	12,76	1001	2,2
5	2,96	12,82	1003	-

403-20 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,04	12,66	1036	1,5
2	3,02	12,60	1016	1,6
3	3,02	12,72	1019	1,9
4	3,04	12,60	1018	1,6
5	3,04	12,60	1021	1,6

403-30 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,02	12,76	1041	1,5
2	3,02	12,80	1055	1,6
3	3,00	12,82	1050	1,5
4	2,98	12,78	1039	1,5

403-40 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,00	12,76	1082	1,5
2	3,00	12,72	1081	1,5
3	3,02	12,76	1095	1,5
4	3,04	12,66	1083	1,5

6331 l.s.- échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,08	12,88	1250	3,0
2	3,00	12,72	1122	2,8
3	2,96	12,90	1228	2,7
4	3,06	12,72	1252	2,9
5	2,98	12,80	1236	2,7
6	2,96	12,84	1244	2,8

403-10 l.s.- échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,00	12,84	698	-
2	2,98	12,82	754	0,7
3	3,00	12,70	771	1,0
4	3,00	12,82	750	-
5	3,00	12,82	800	0,7

403-20 l.s.- échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,00	12,82	556	0,5
2	2,98	12,80	513	0,5
3	3,06	12,90	523	0,3
4	3,06	12,72	543	0,5
5	2,98	12,78	520	0,6

403-30 l.s.- échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,02	12,84	325	0,4
2	3,02	12,76	291	0,3
3	3,04	12,74	346	0,4
4	3,02	12,68	328	0,3
5	3,04	12,72	323	-
6	2,98	12,70	352	-

403-40 l.s.- échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	2,98	12,74	216	0,1
2	2,96	12,70	-	0,2
3	2,94	12,76	136	0,1
4	3,00	12,50	-	0,3
5	3,02	12,70	166	0,1

PD 888 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	5,84	12,68	-	-
2	5,88	12,66	-	-
3	5,84	12,54	-	-
4	5,86	12,66	-	-
5	5,88	12,66	-	-
6	5,90	12,66	-	-
7	5,88	12,62	-	-
8	5,86	12,64		
9	5,90	12,70		
10	5,86	12,70		
11	5,90	12,70		
12	5,88	12,68		

407-20 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	5,94	12,72	2196	1,8
2	5,94	12,68	2200	1,8
3	6,00	12,76	2220	1,8
4	5,96	12,70	2179	1,8
5	5,94	12,76	-	1,9
6	5,92	12,74	2164	1,8
7	6,00	12,70		
8	5,94	12,70		
9	5,92	12,70		
10	5,94	12,70		
11	5,92	12,64		
12	5,92	12,68		

507-20 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	6,02	12,62	2139	1,9
2	5,94	12,58	2173	1,9
3	5,96	12,64	2170	1,9
4	6,02	12,56	2134	1,9
5	6,06	12,56	2139	1,9
6	6,10	12,64	2140	1,8
7	5,94	12,70		
8	5,98	12,64		
9	5,94	12,64		
10	6,06	12,58		
11	6,00	12,62		

507-20 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,04	12,80	1187	2,1
2	3,04	12,80	1190	1,9
3	3,02	12,76	1184	2,0
4	3,02	12,70	1200	-
5	3,04	12,72	1192	-
6	3,04	12,76		
7	3,04	12,70		
8	3,04	12,80		
9	3,04	12,70		
10	3,04	12,78		
11	3,04	12,64		

6331 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	5,90	12,64	-	-
2	5,84	12,68	-	-
3	5,92	12,76	-	-
4	5,94	12,60	-	-
5	5,94	12,62	-	-
6	5,90	12,66		
7	5,92	12,66		
8	5,86	12,68		
9	5,90	12,74		

6331 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	1,60	12,64	629	2,7
2	1,58	12,68	630	2,9
3	1,58	12,74	632	2,8
4	1,58	12,68	628	2,8
5	1,58	12,60	618	3,2
6	1,59	12,70	624	3,1
7	1,58	12,66		
8	1,59	12,64		
9	1,60	12,68		
10	1,58	12,64		

403-20 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	5,98	12,60	2270	1,6
2	5,94	12,64	2253	1,7
3	5,92	12,64	2264	1,7
4	5,96	12,66	2320	1,7
5	5,94	12,62	2274	1,7
6	5,96	12,66	2301	1,6
7	5,96	12,70	-	-
8	5,98	12,66		
9	5,98	12,62		
10	5,98	12,62		
11	5,96	12,62		
12	5,94	12,68		

403-20 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	1,63	12,72	677	1,9
2	1,63	12,72	685	1,9
3	1,63	12,74	682	1,8
4	1,62	12,70	675	1,8
5	1,61	12,70	675	1,8
6	1,60	12,70		
7	1,63	12,70		
8	1,61	12,70		
9	1,61	12,70		
10	1,62	12,74		
11	1,62	12,70		

403-40 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	6,00	12,70	2305	1,5
2	6,04	12,68	2278	1,5
3	6,00	12,70	-	1,5
4	6,02	12,70	2299	1,5
5	6,02	12,70	2309	1,6
6	6,04	12,70	2265	1,4
7	6,02	12,70	2273	1,5
8	6,04	12,66		
9	6,04	12,76		
10	5,98	12,70		
11	6,02	12,70		
12	6,02	12,68		

397-20 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,06	12,78	1179	1,7
2	3,04	12,70	1183	2,0
3	3,04	12,76	1174	1,9
4	3,04	12,76	1173	1,9
5	3,02	12,70	1183	1,7
6	3,02	12,70	1187	1,6
7	3,02	12,74	1185	1,6
8	3,04	12,70		
9	3,04	12,74		
10	3,02	12,70		
11	3,02	12,74		
12	3,04	12,80		

PD 893 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,00	12,72	1175	3,1
2	3,00	12,74	1161	3,1
3	3,00	12,74	1176	3,2
4	3,02	12,70	-	-
5	3,00	12,70	1166	2,5
6	3,00	12,74		
7	3,02	12,70		
8	3,02	12,58		
9	3,00	12,76		

395-20 - échantillon D647

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,06	12,70	1252	1,7
2	3,06	12,66	1258	1,9
3	3,06	12,76	1283	1,9
4	3,06	12,68	1268	1,9
5	3,06	12,66	1282	1,9
6	3,06	12,78	1273	1,7
7	3,06	12,80		
8	3,06	12,76		
9	3,06	12,66		
10	3,06	12,76		
11	3,06	12,78		
12	3,06	12,70		

405-20 - échantillon D647

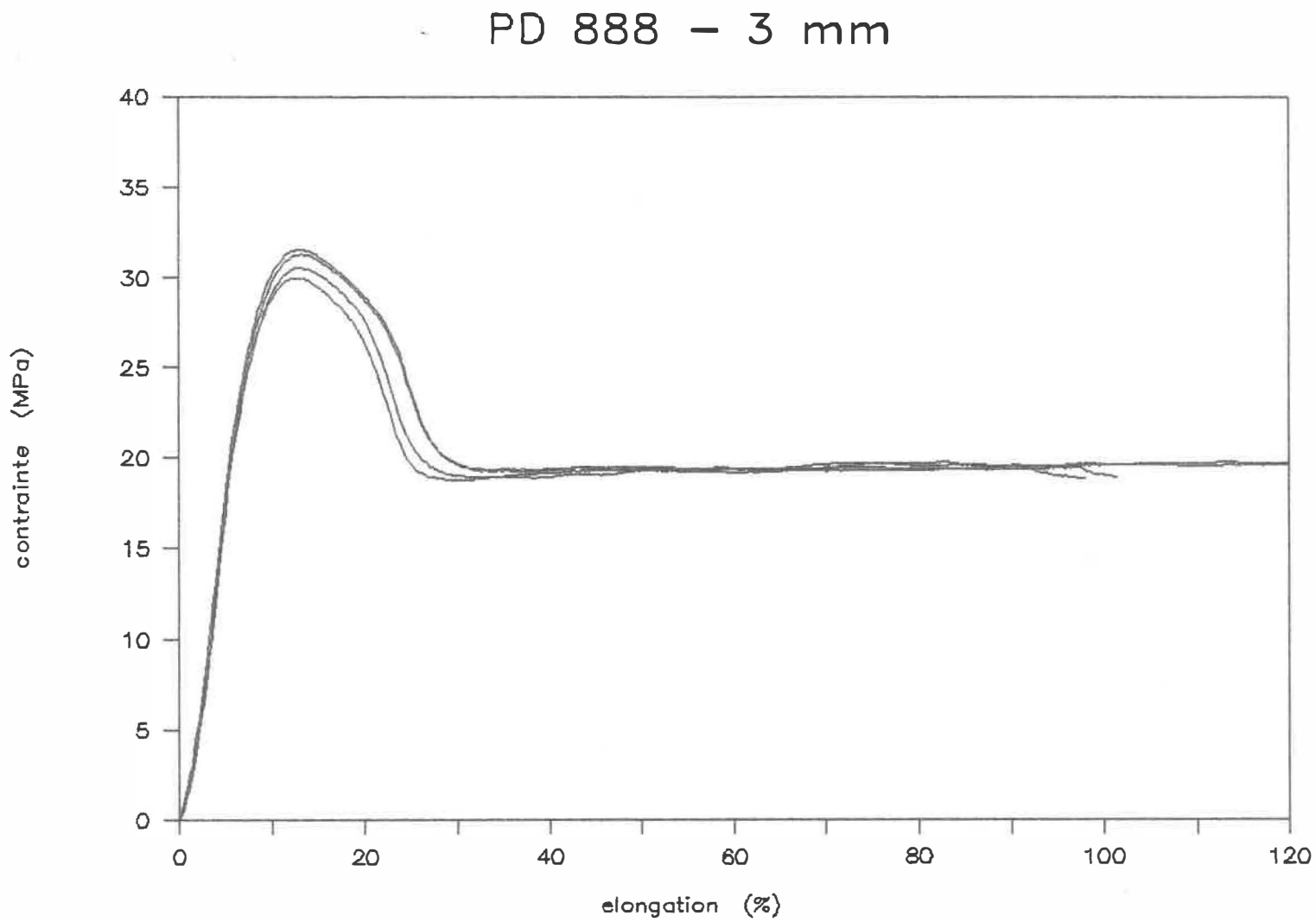
	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,10	12,86	1245	-
2	3,10	12,66	1226	2,0
3	3,10	12,76	1246	1,9
4	3,10	12,74	1257	1,9
5	3,10	12,78	1252	1,9
6	3,10	12,70	1251	1,9
7	3,06	12,74		
8	3,10	12,78		
9	3,14	12,70		
10	3,10	12,78		
11	3,10	12,74		

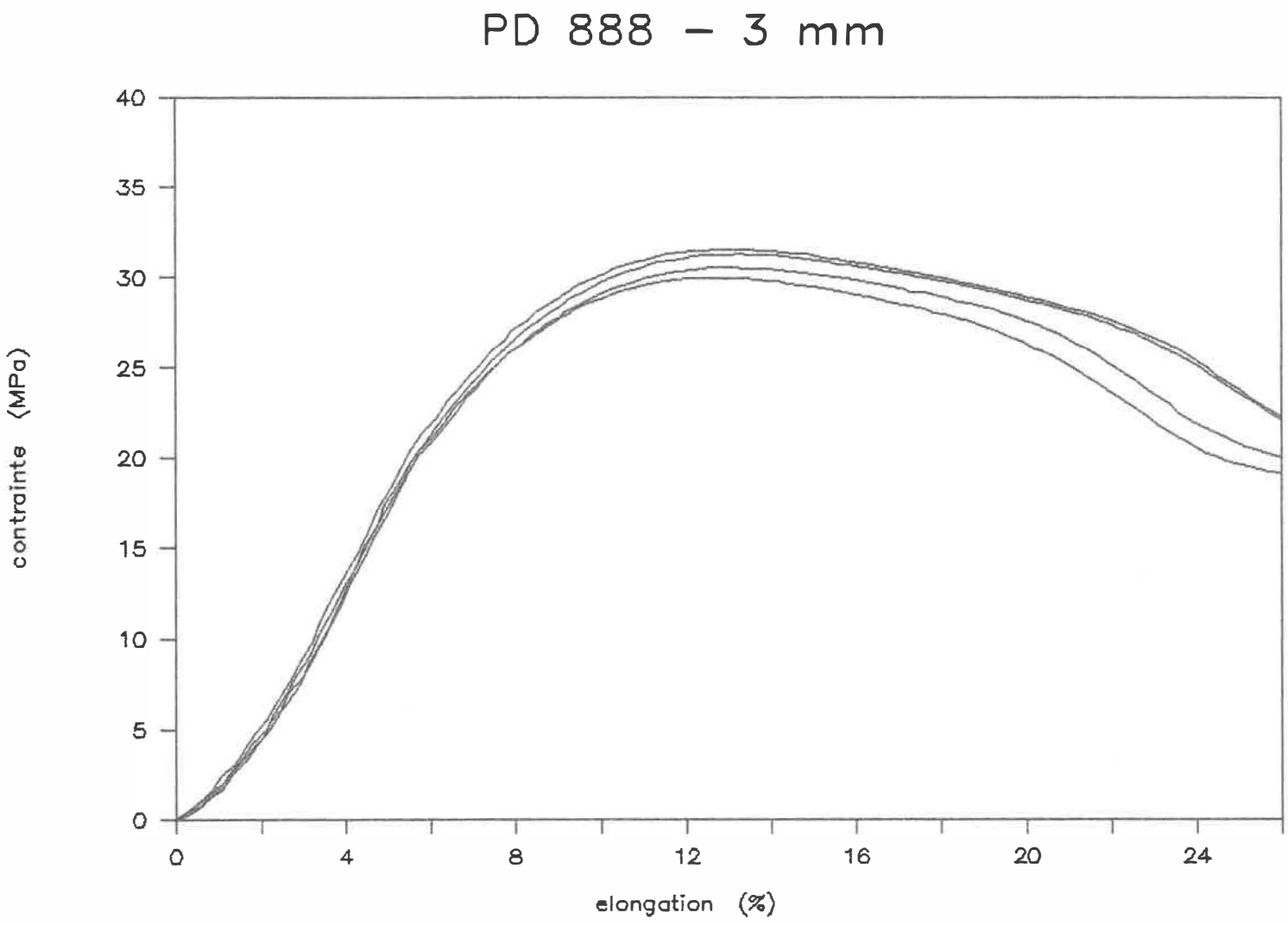
393-20 - échantillon D647

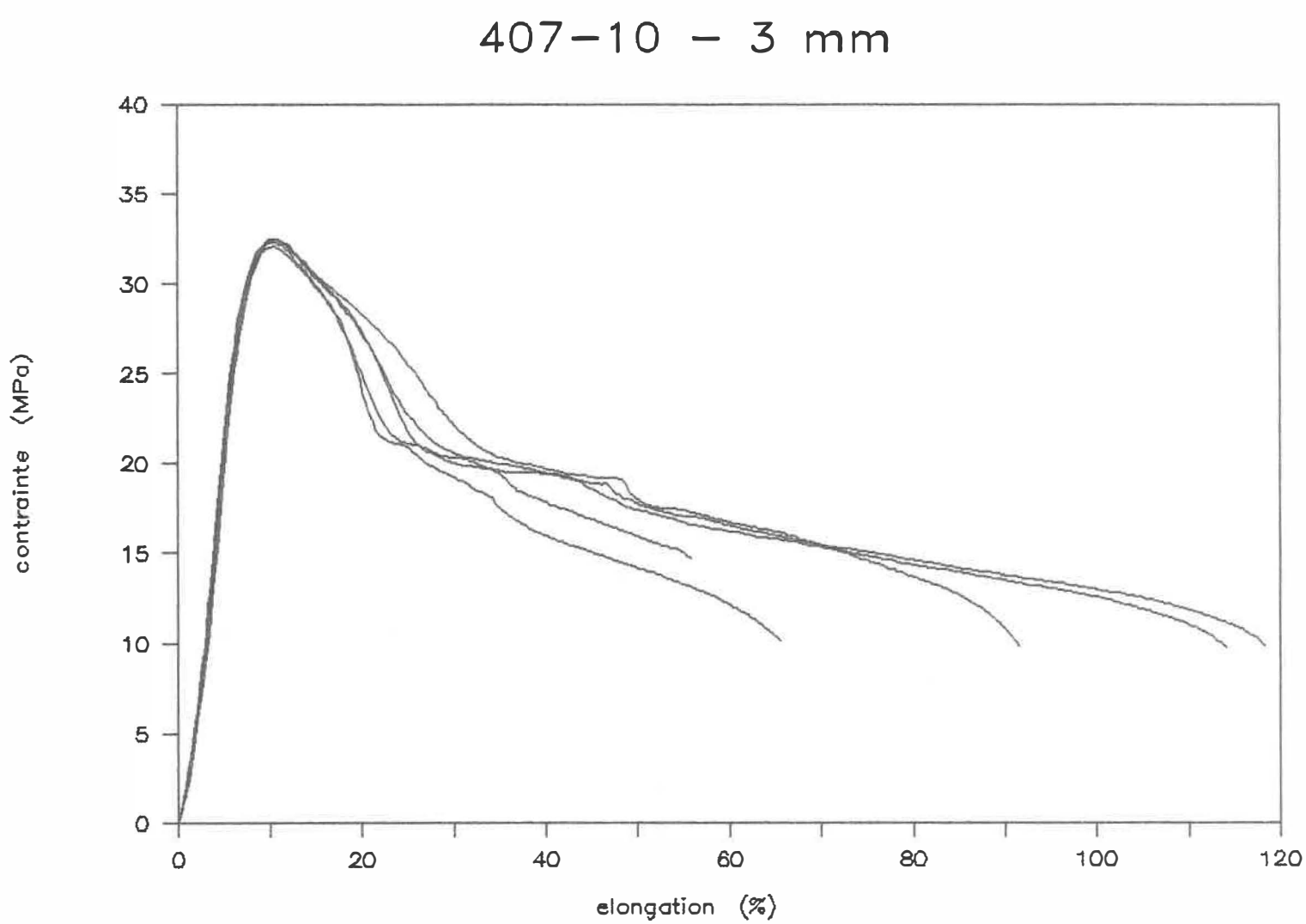
	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)	étirement (mm)
1	3,04	12,76	1195	1,8
2	3,06	12,70	1167	1,8
3	3,04	12,70	1181	1,8
4	3,04	12,76	1179	-
5	3,06	12,78	1191	1,9
6	3,06	12,78	1187	-
7	3,04	12,70	1175	1,9
8	3,04	12,82		
9	3,04	12,78		
10	3,06	12,76		
11	3,04	12,76		
12	3,04	12,76		

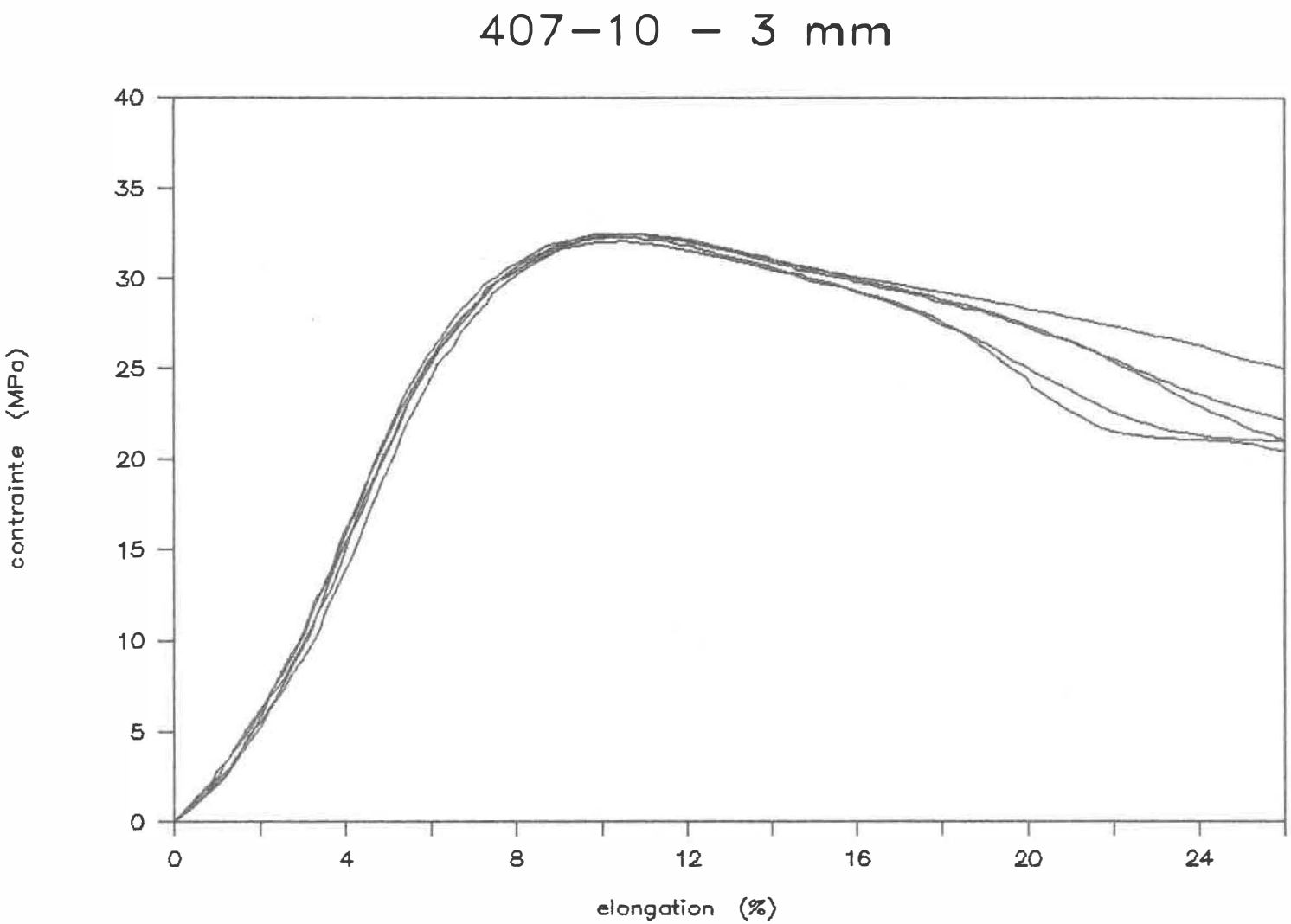
Annexe 1.2

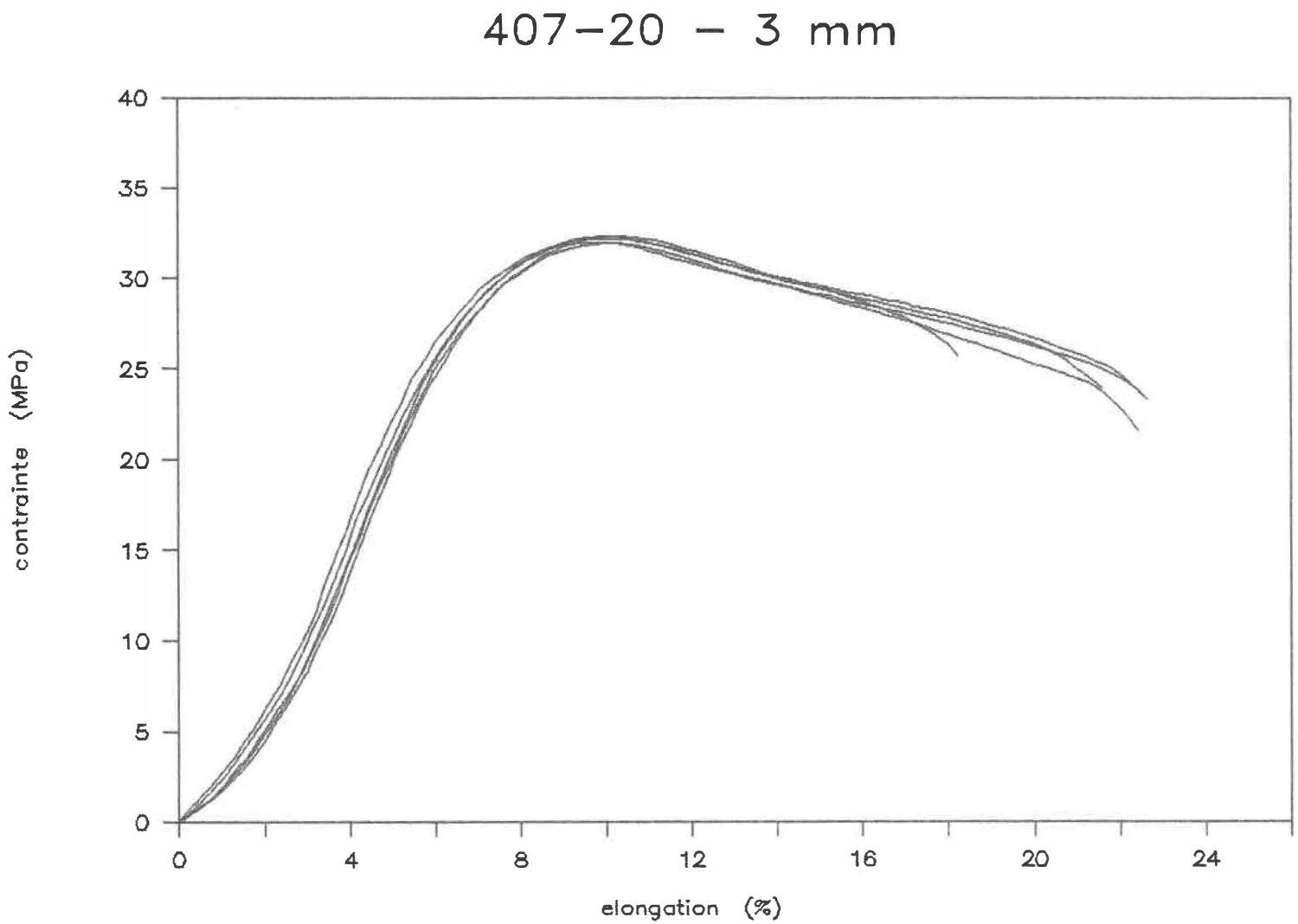
Dans cette partie, 28 courbes de traction sont incluses. Quelques unes sont présentées deux fois (l'élongation maximum, en abscisse, est égale à 25% ou 120%) afin de mieux visualiser le comportement de l'échantillon lors de l'étirement.

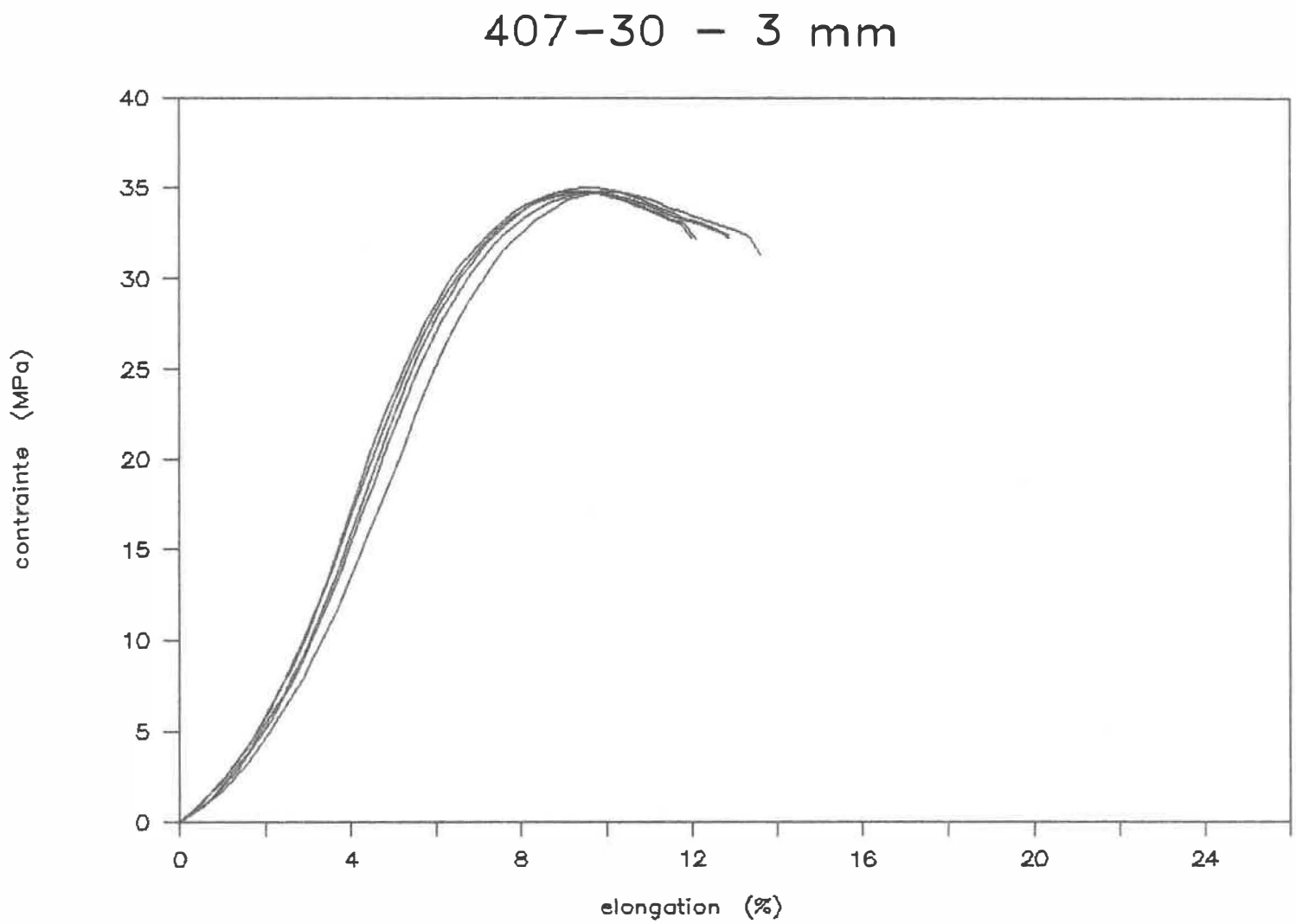

PD 888 - 3 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
20
40
60
80
100
120
elongation (%)

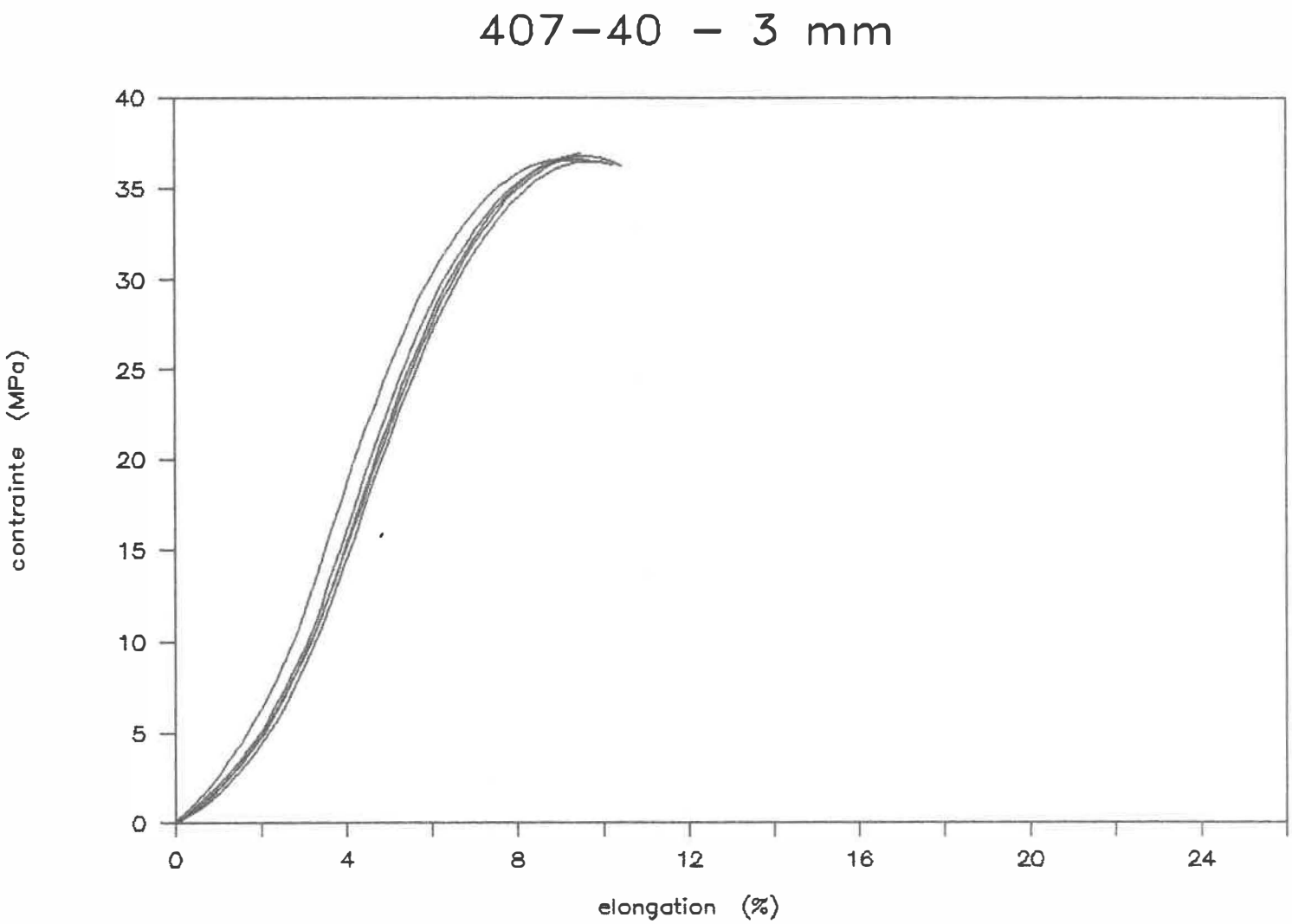

PD 888 - 3 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

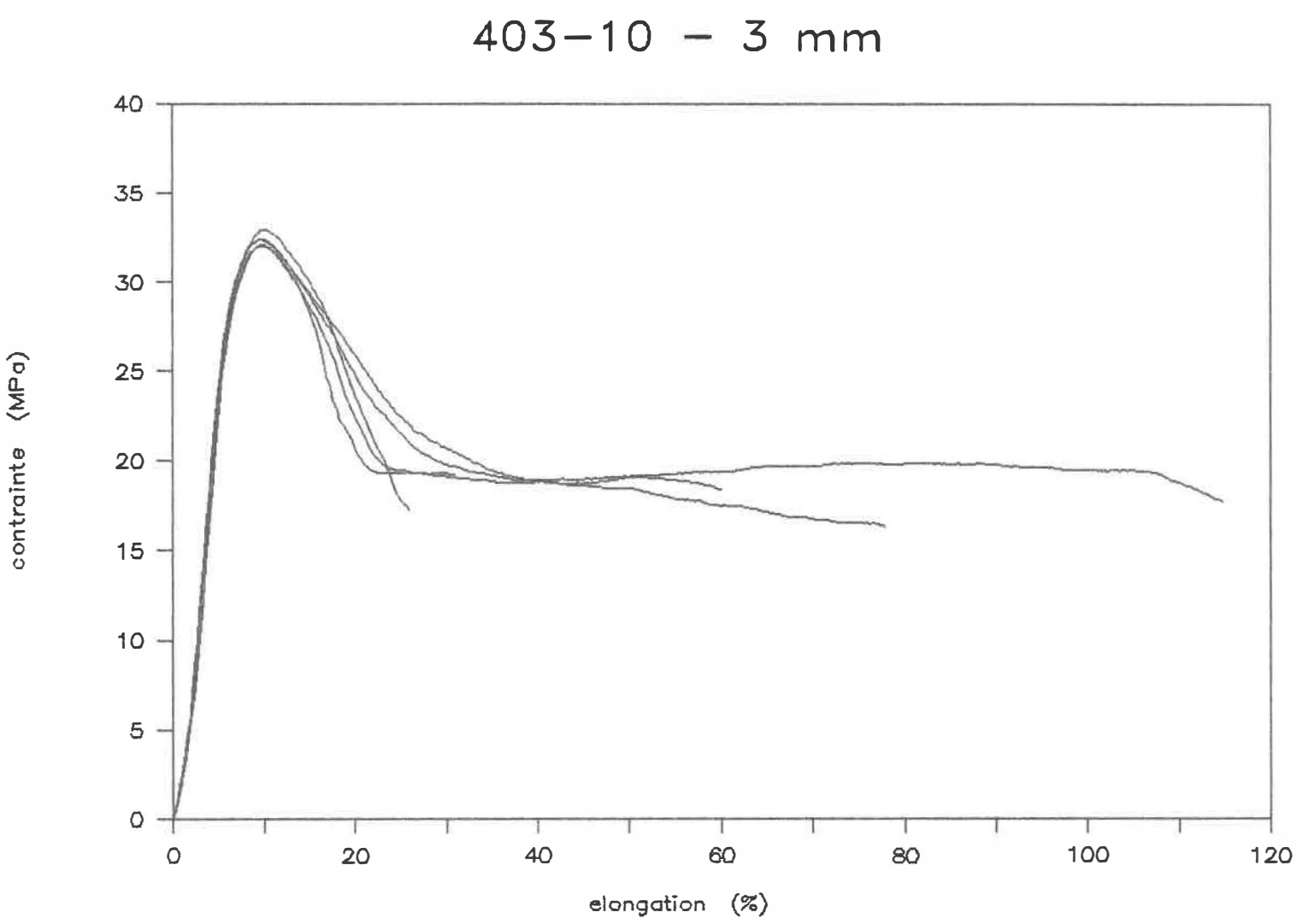

407-10 - 3 mm
contrainte (MPa)
elongation (%)
0
5
10
15
20
25
30
35
40
0
20
40
60
80
100
120

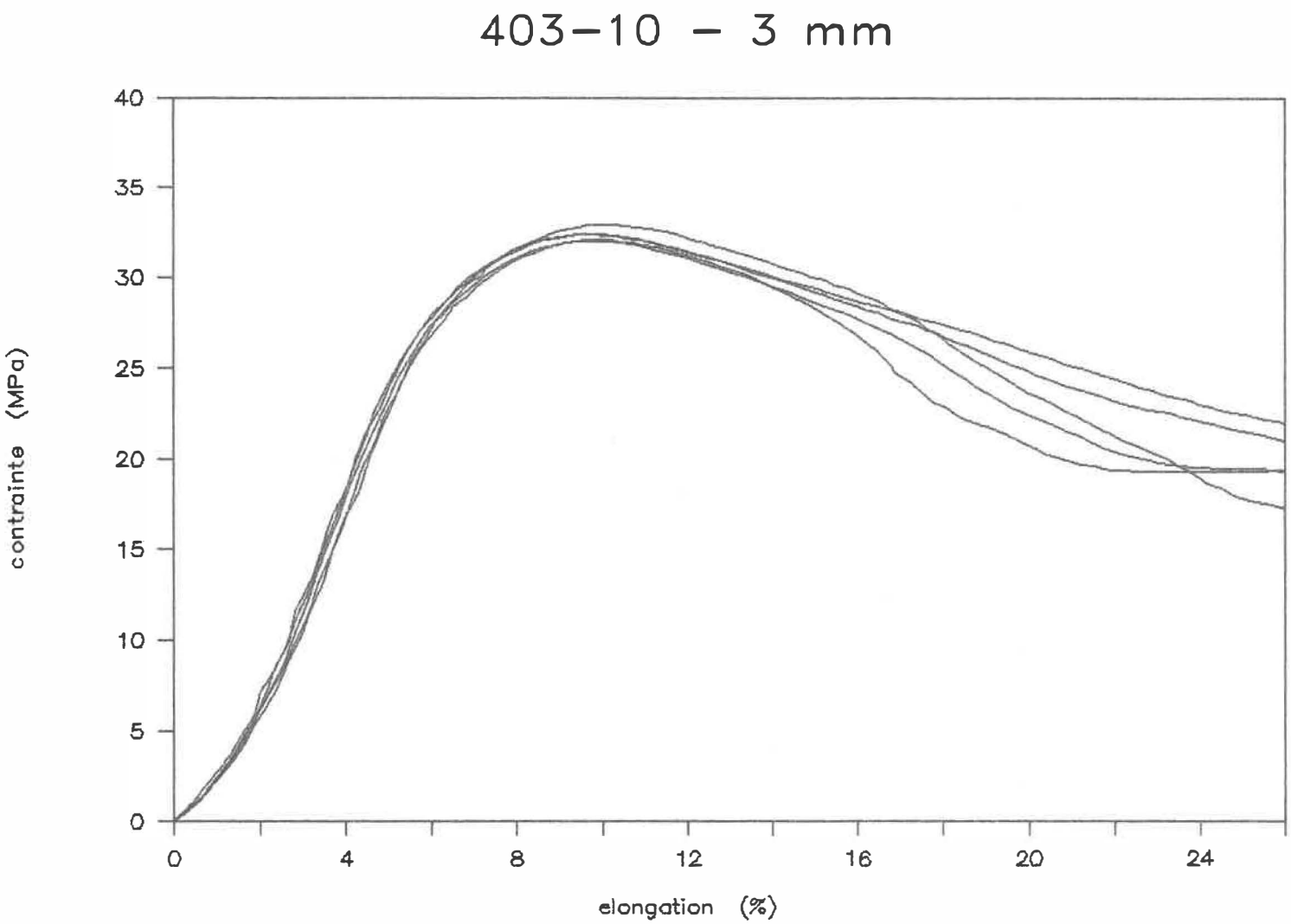

407-10 - 3 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

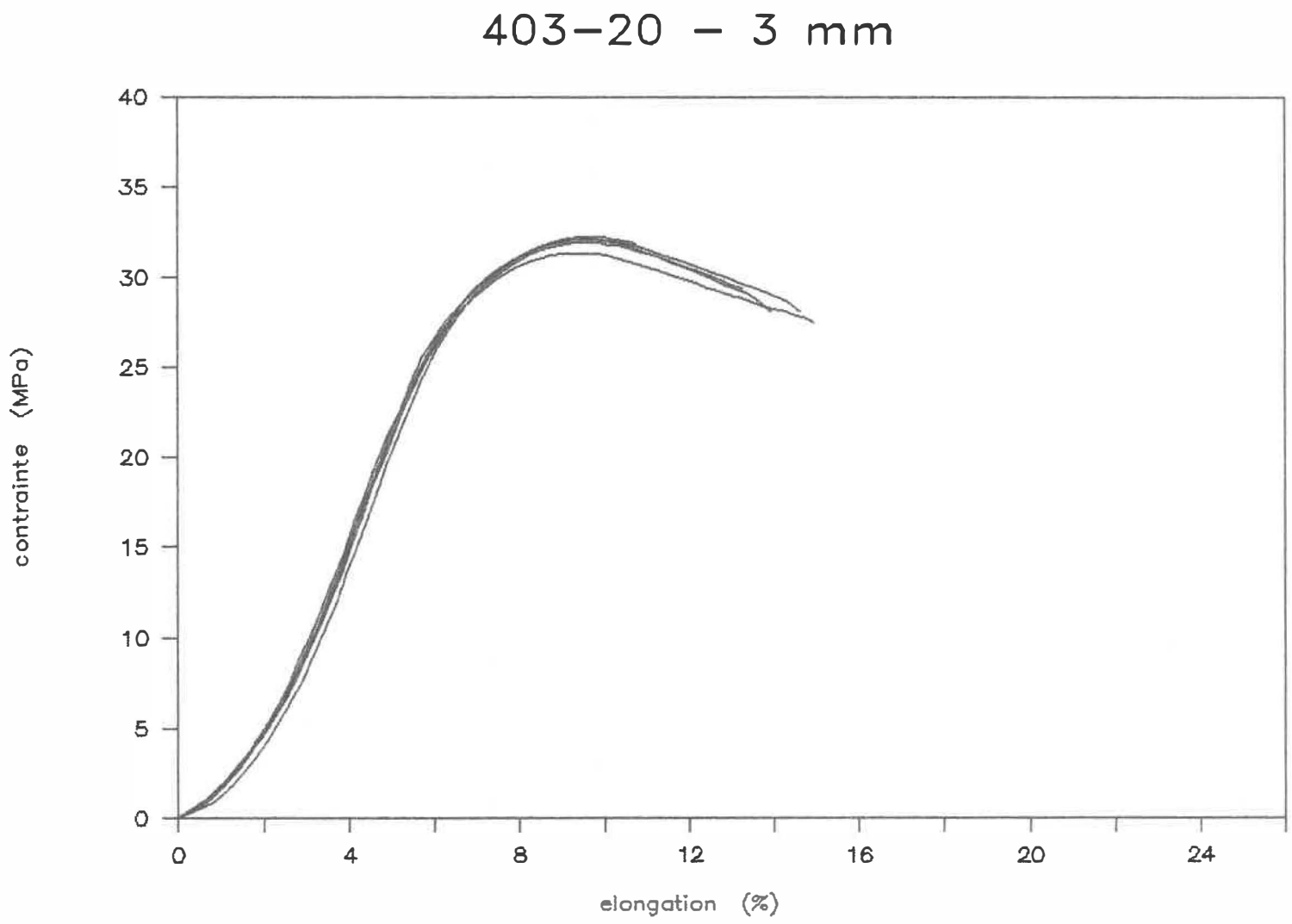

407-20 - 3 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

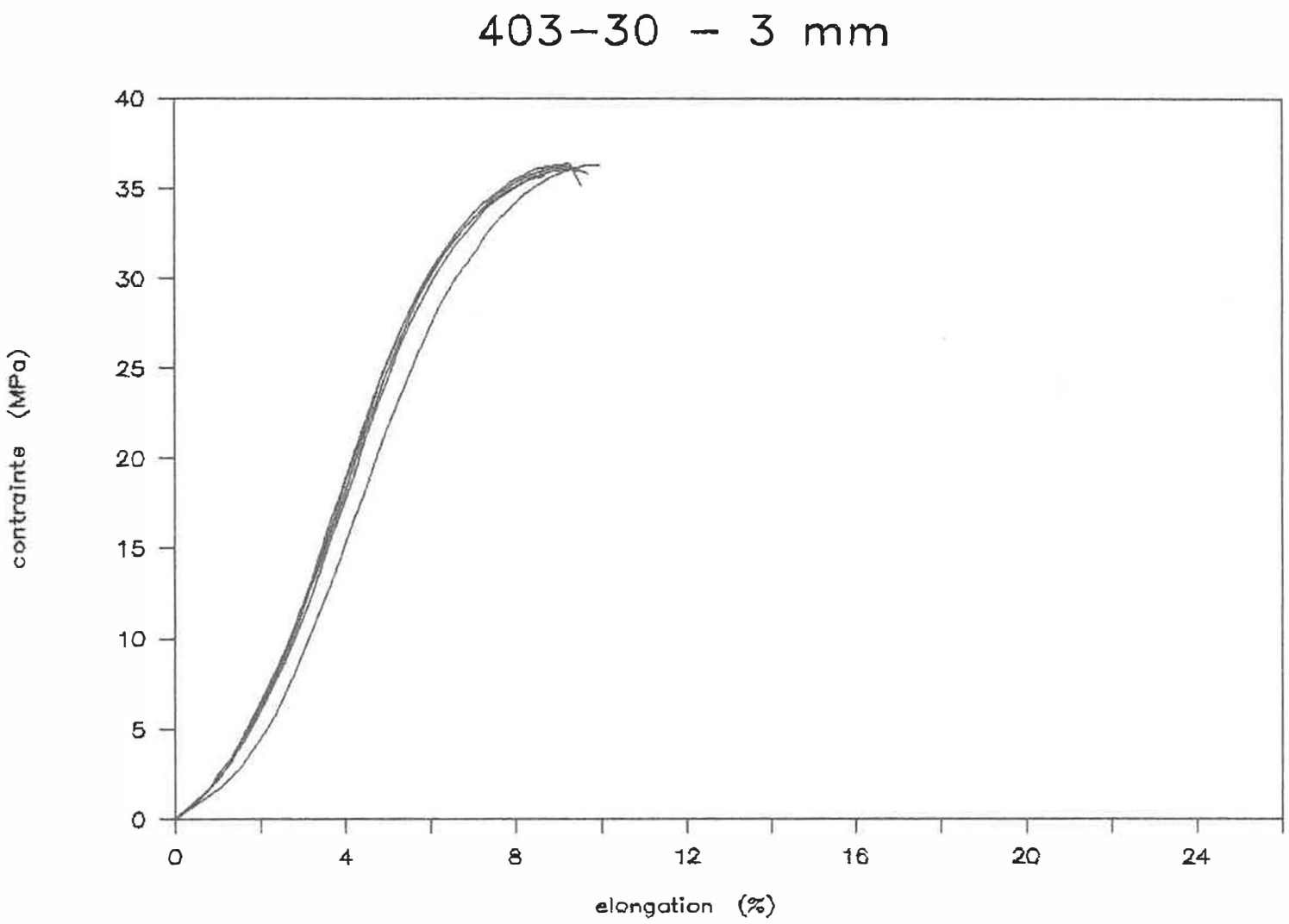

407-30 - 3 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

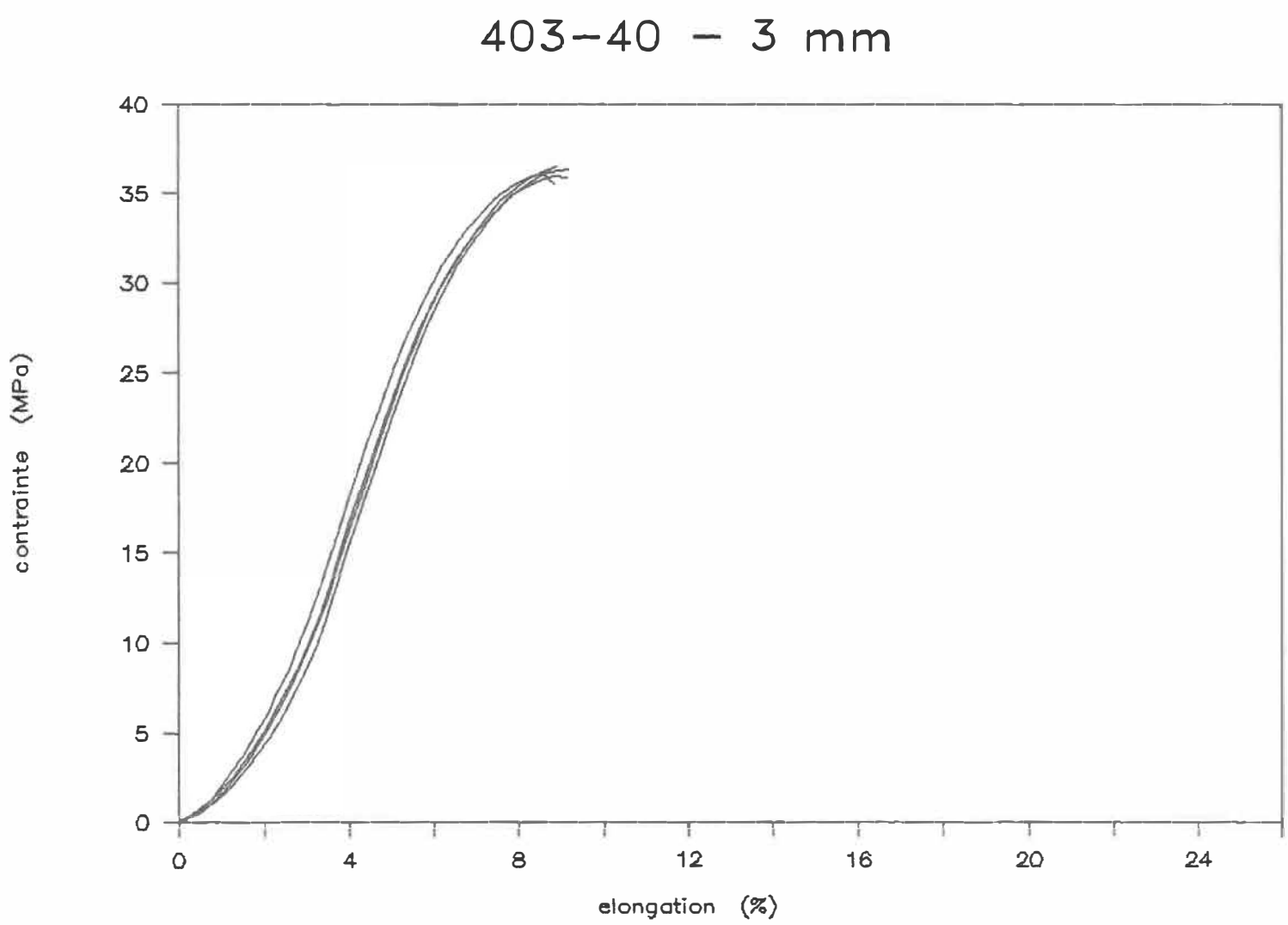

407-40 - 3 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)


403-10 - 3 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
20
40
60
80
100
120
elongation (%)

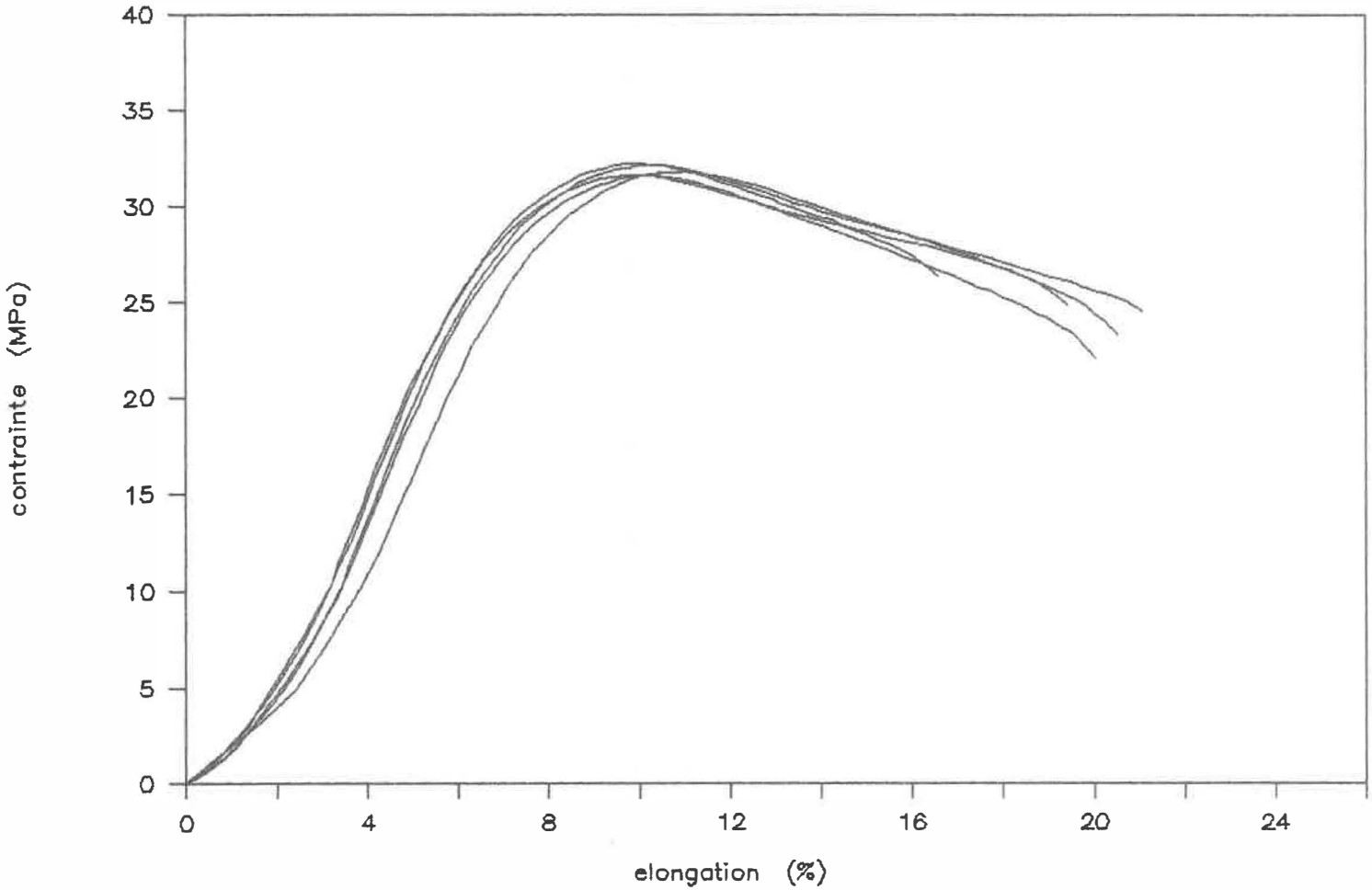

403-10 - 3 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)


403-20 - 3 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

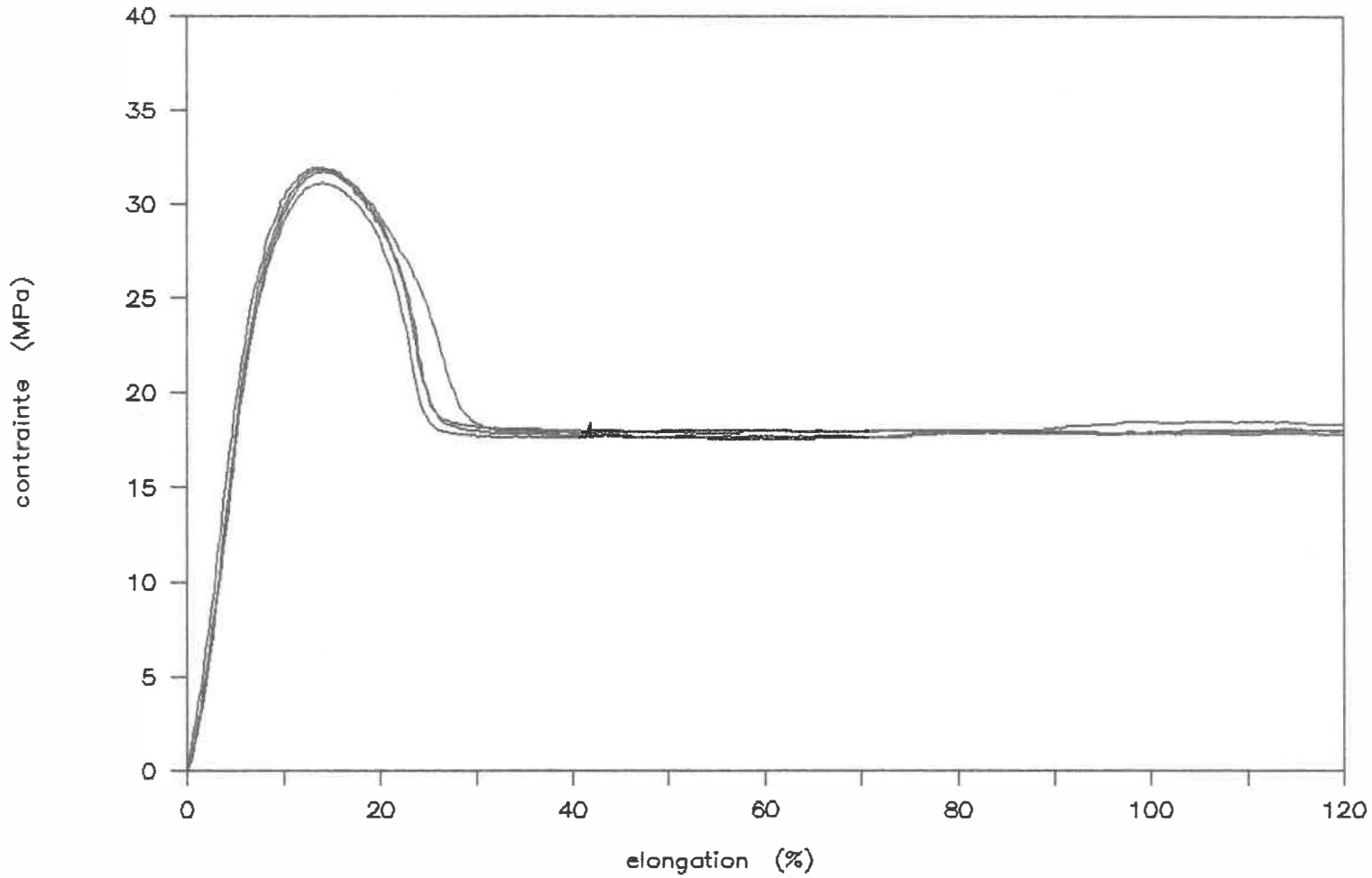

403-30 - 3 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

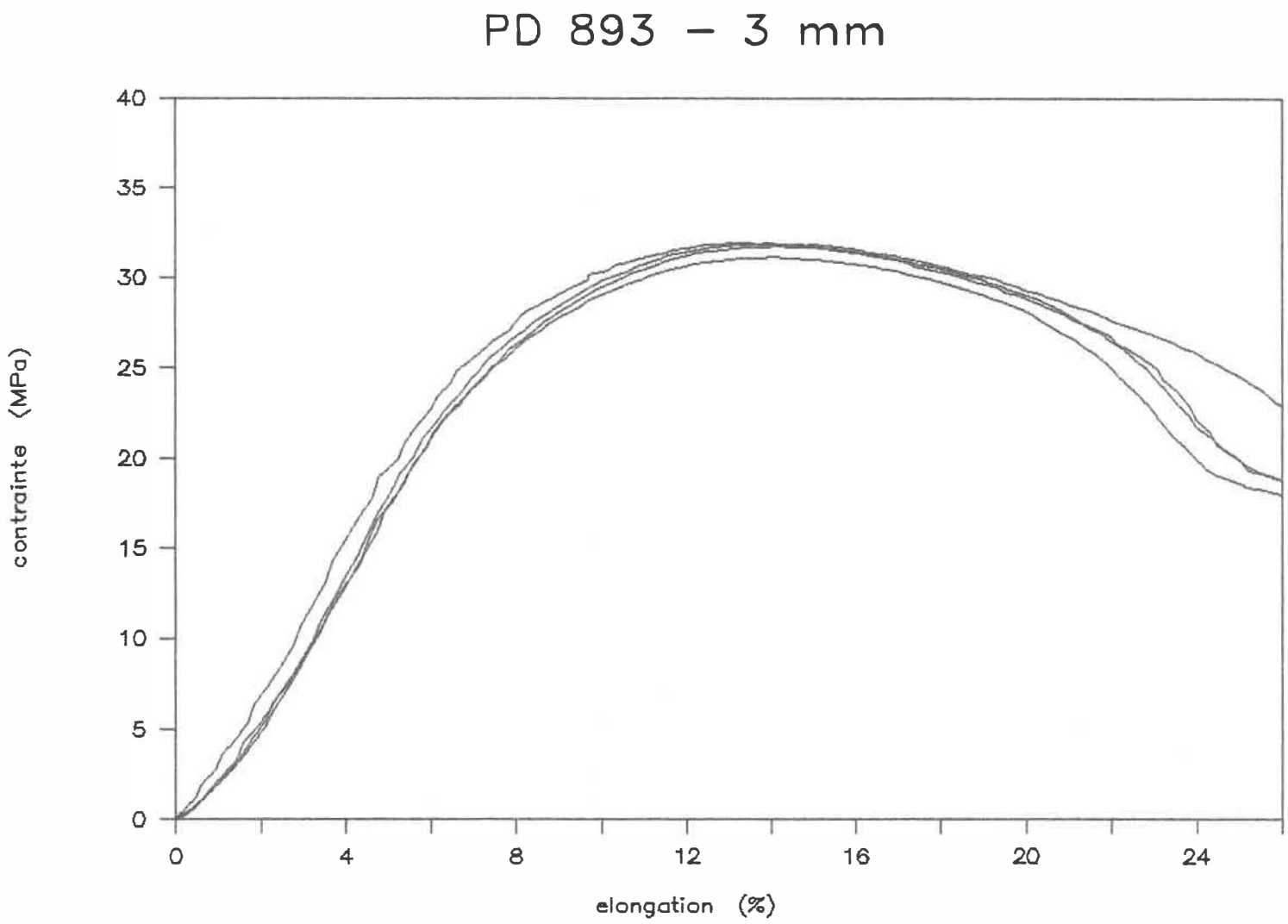

403-40 - 3 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

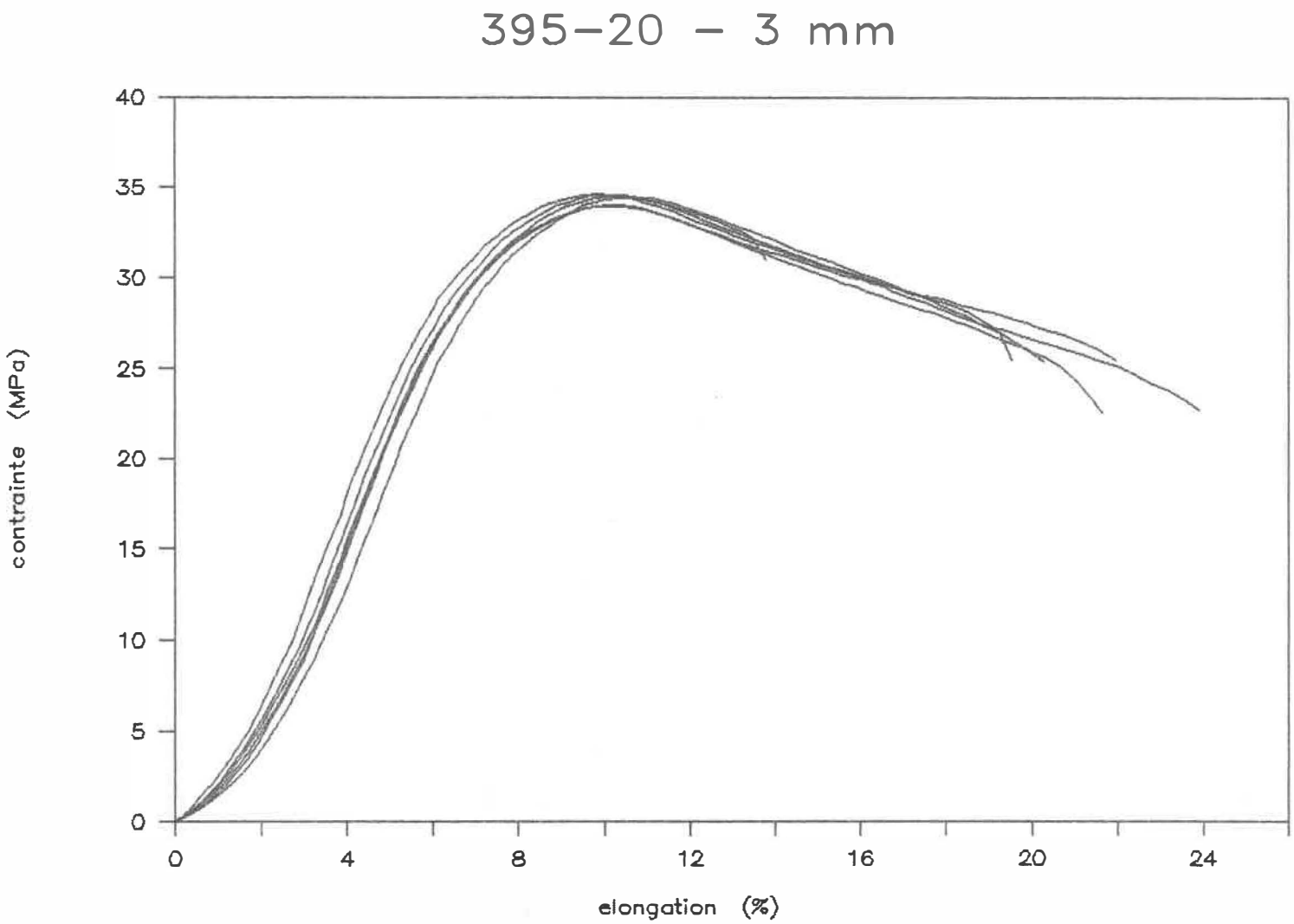
397-20 - 3 mm


40
35
30
25
20
15
10
5
0
contrainte (MPa)
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

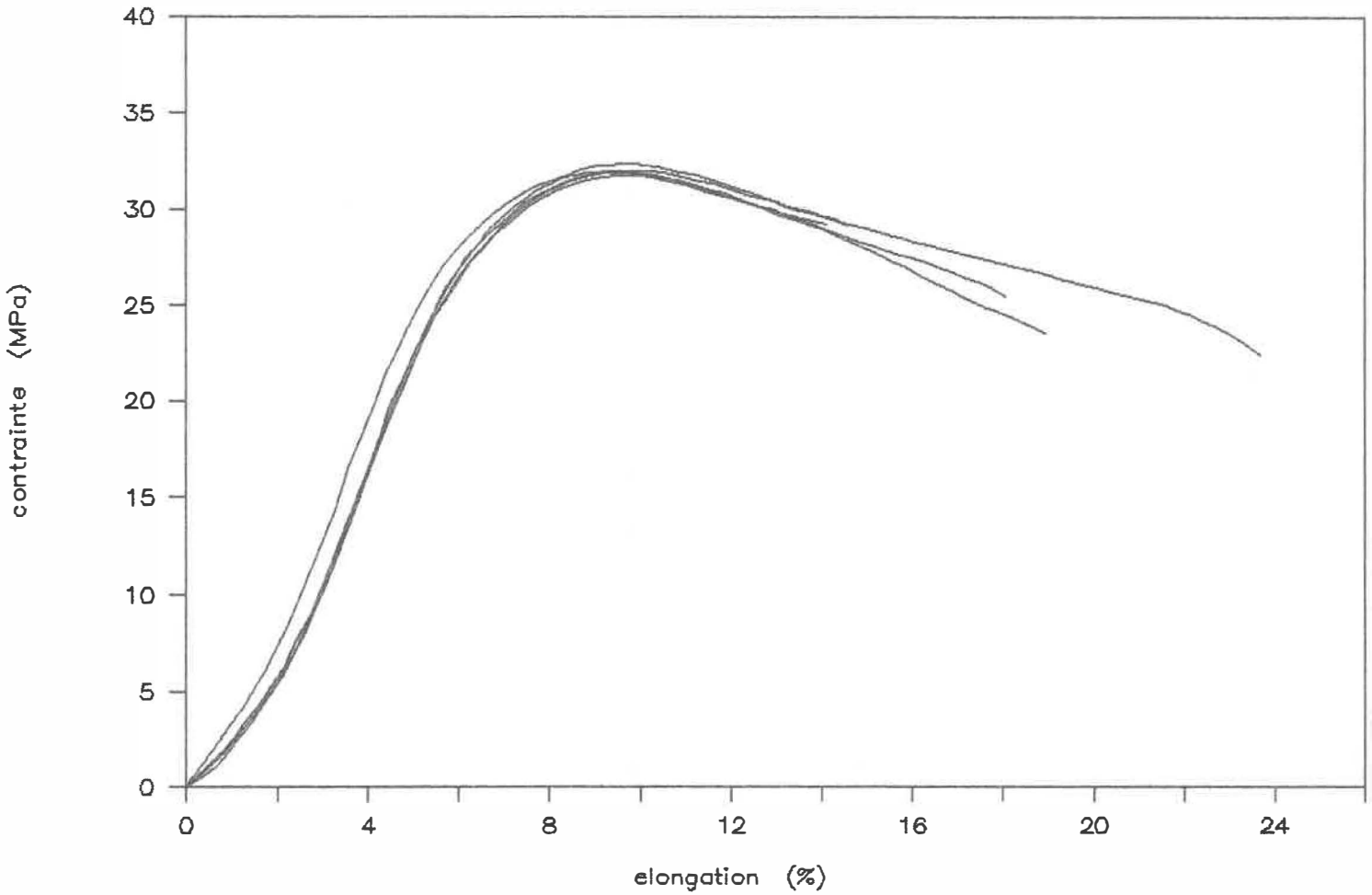
PD 893 – 3 mm


40
35
30
25
20
15
10
5
0
contrainte (MPa)
0
20
40
60
80
100
120
elongation (%)

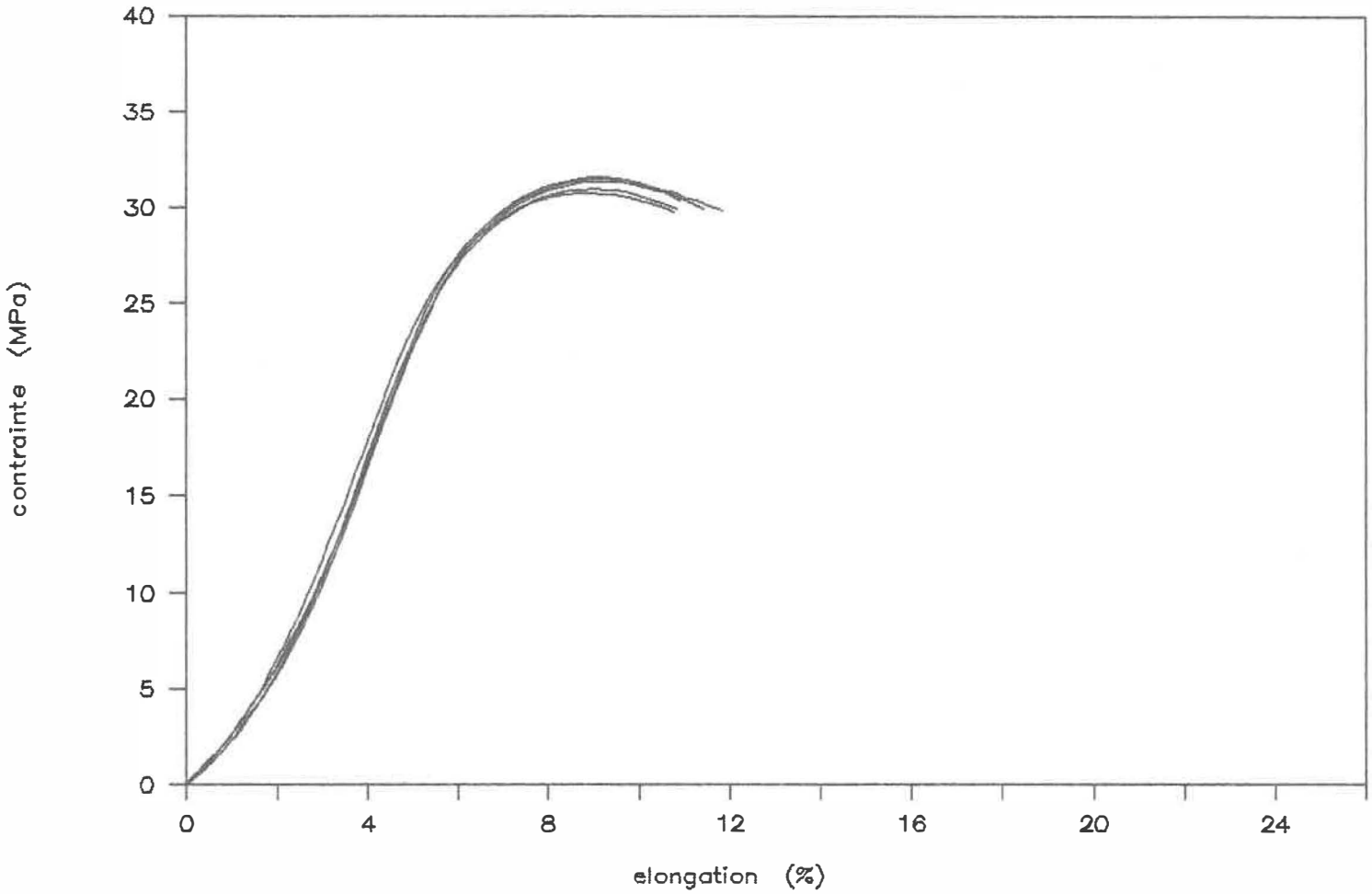

PD 893 - 3 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

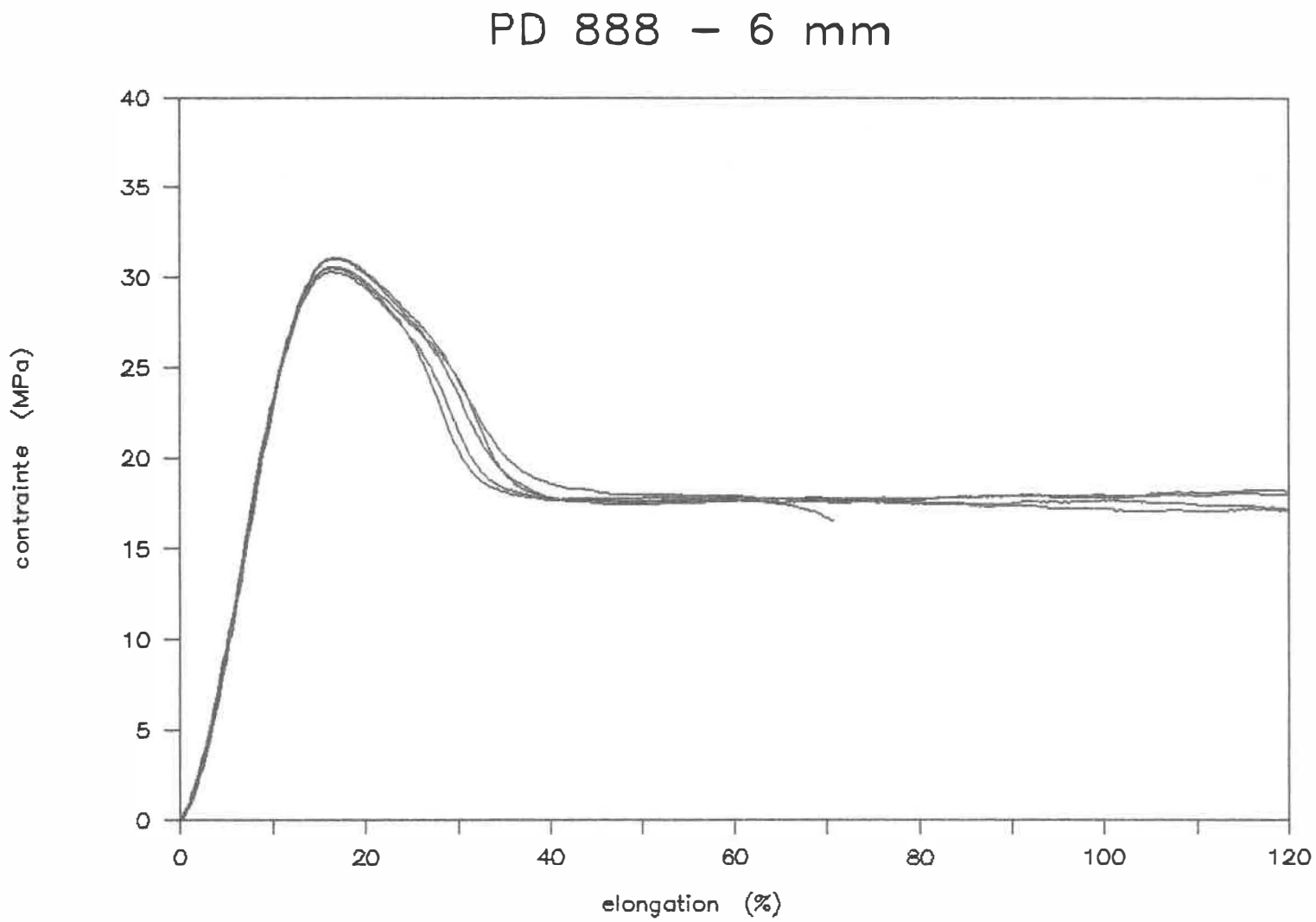

395-20 - 3 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

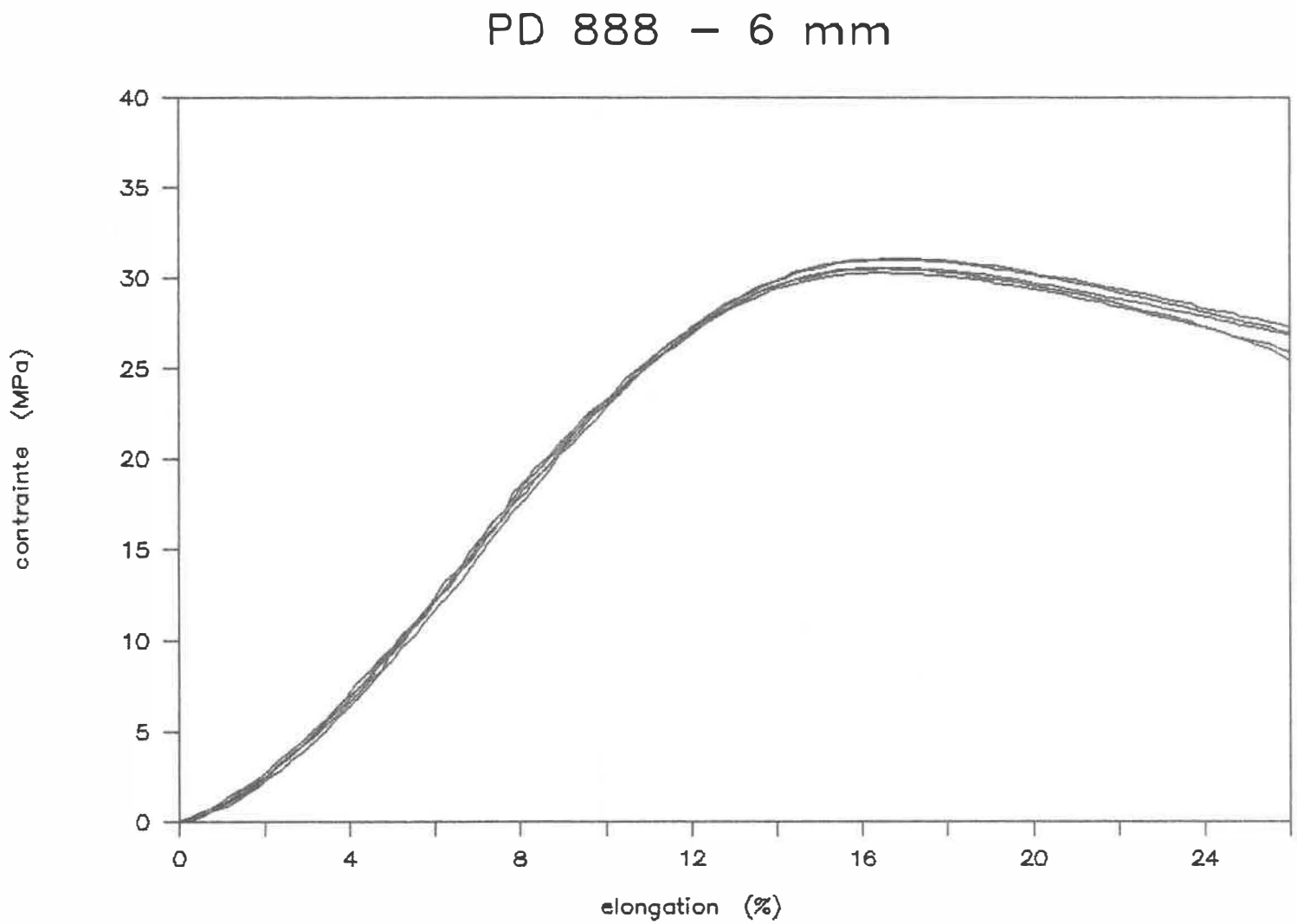
405-20 - 3 mm

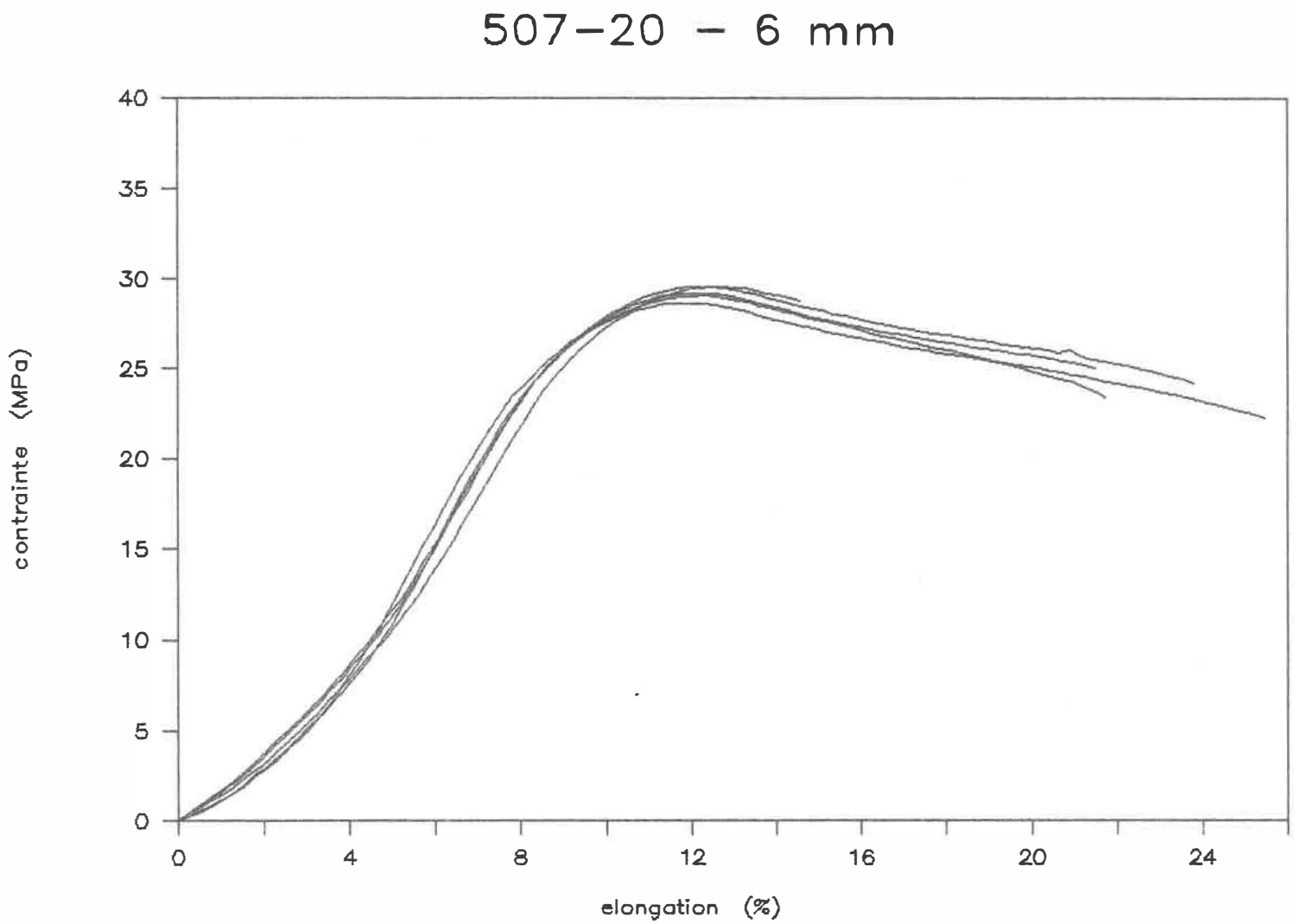

40
35
30
25
20
15
10
5
0
contrainte (MPa)
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

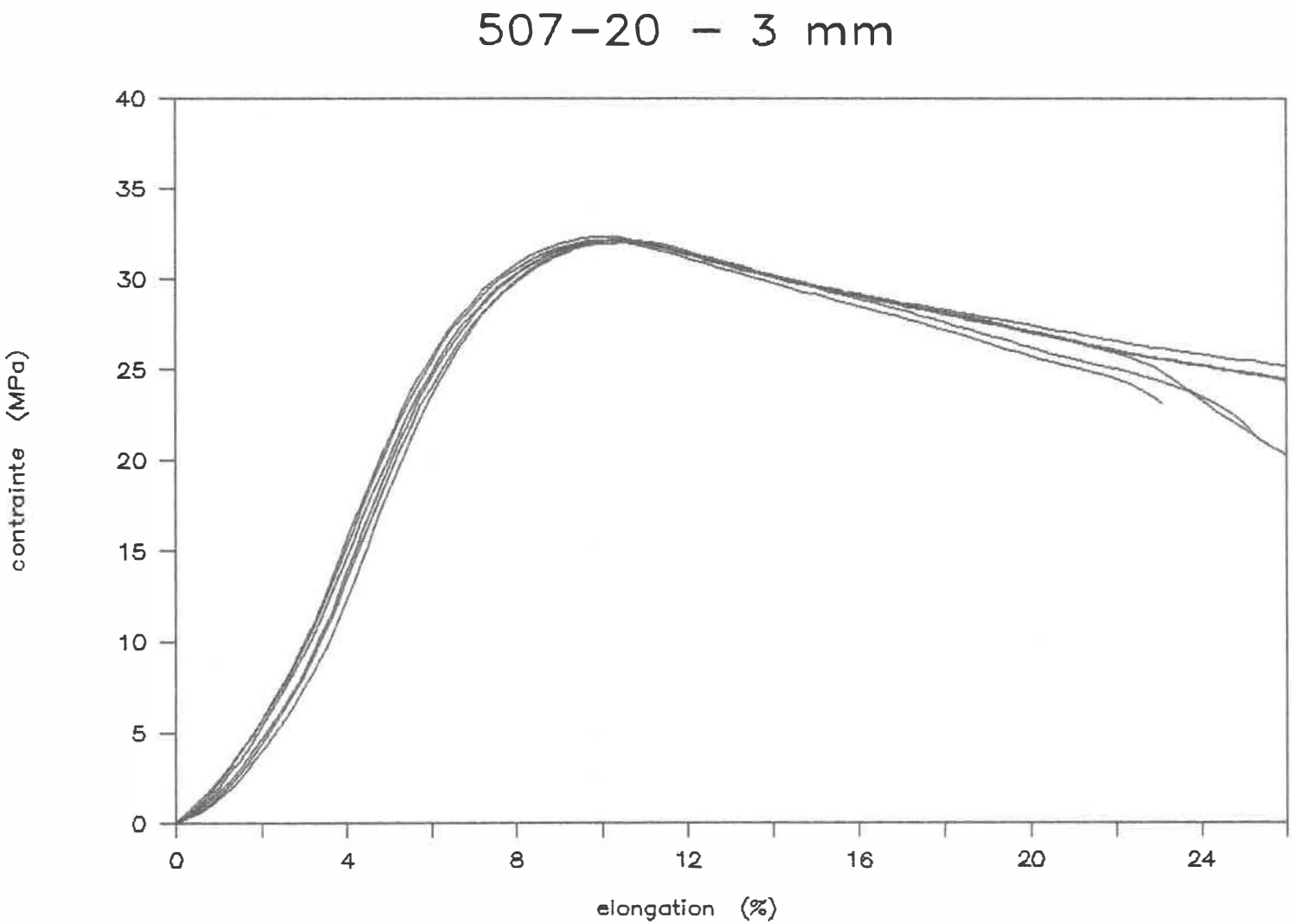
393-20 - 3 mm

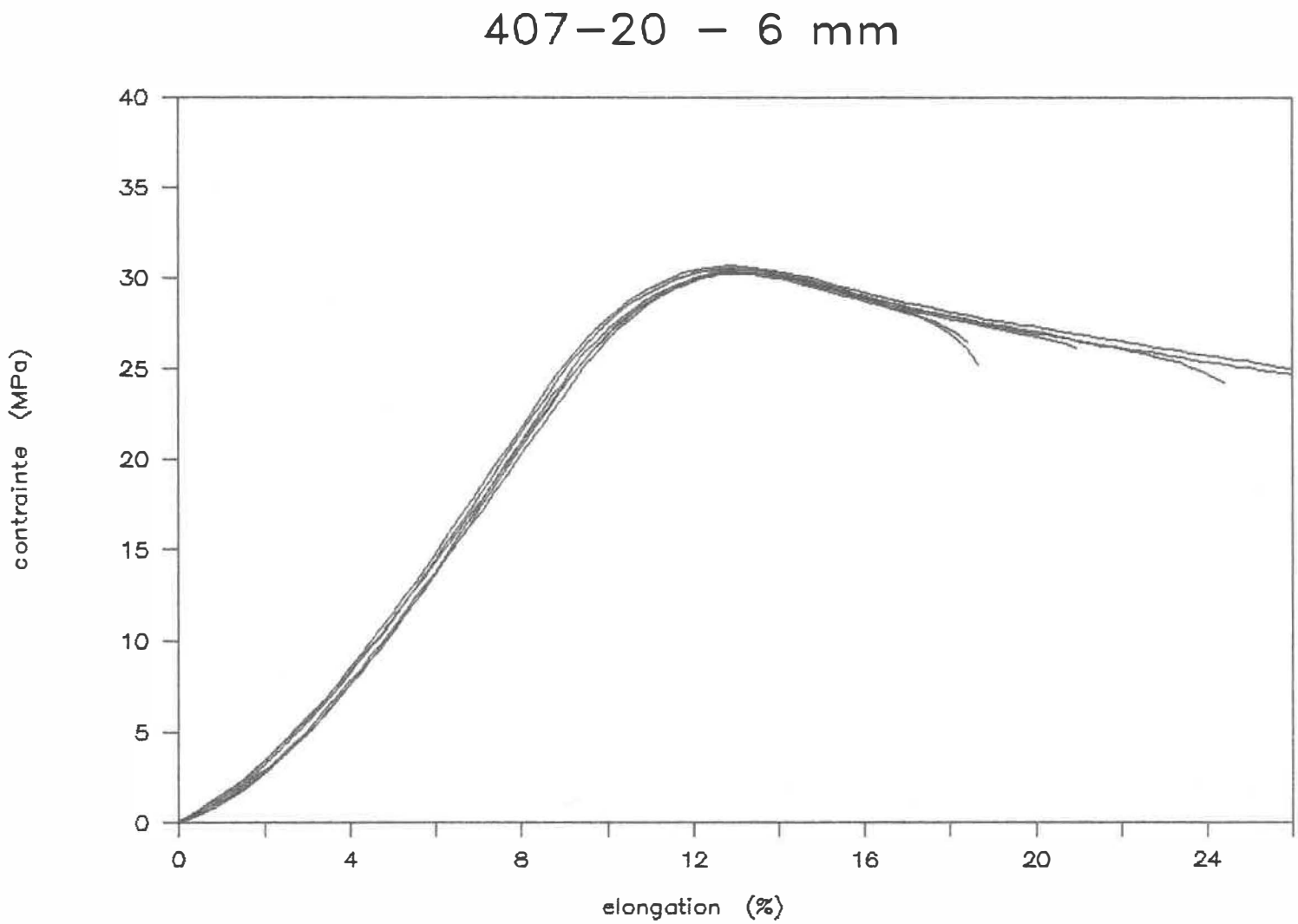

40
35
30
25
20
15
10
5
0
contrainte (MPa)
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

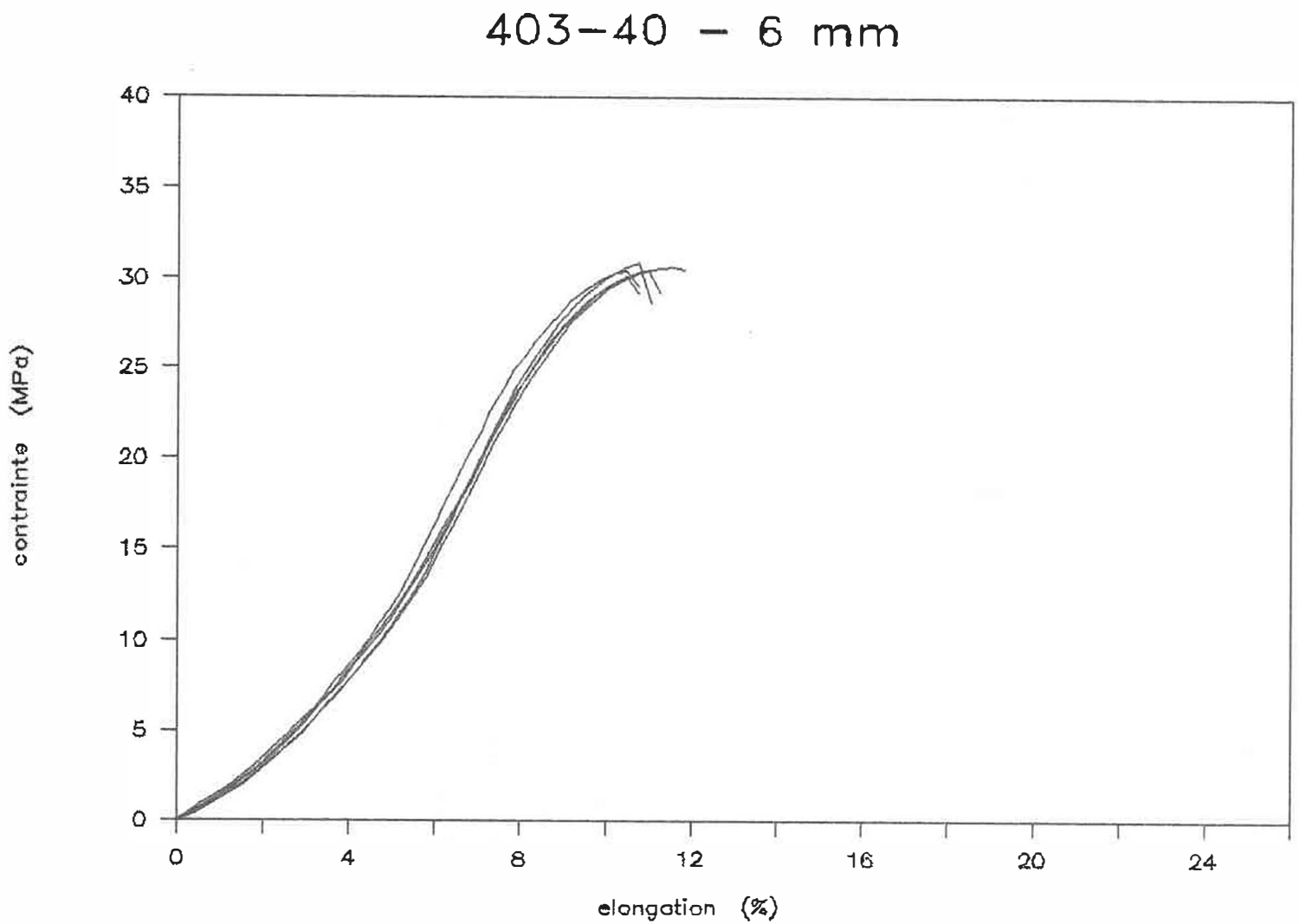

PD 888 - 6 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
20
40
60
80
100
120
elongation (%)


PD 888 - 6 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

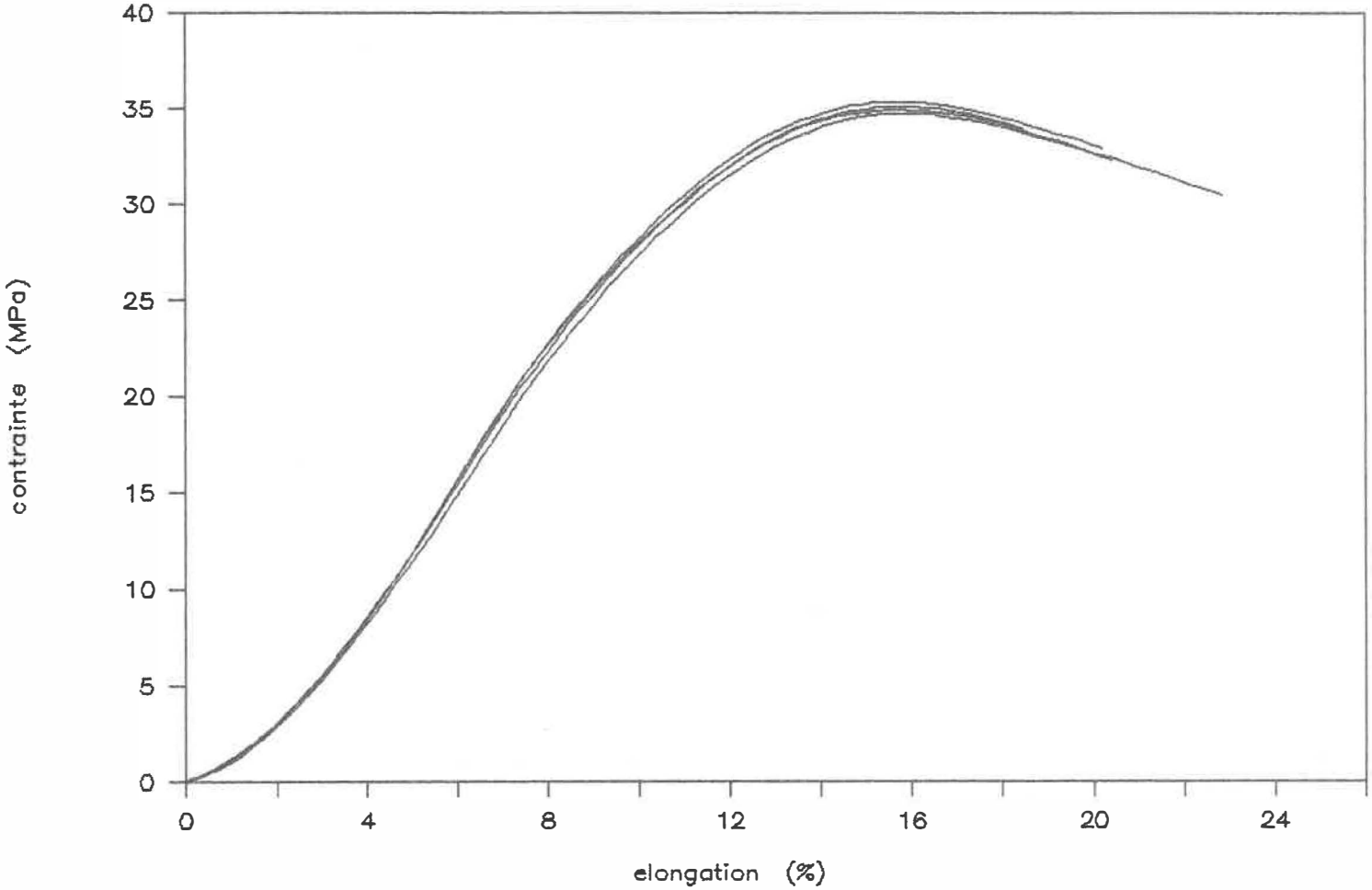

507-20 - 6 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

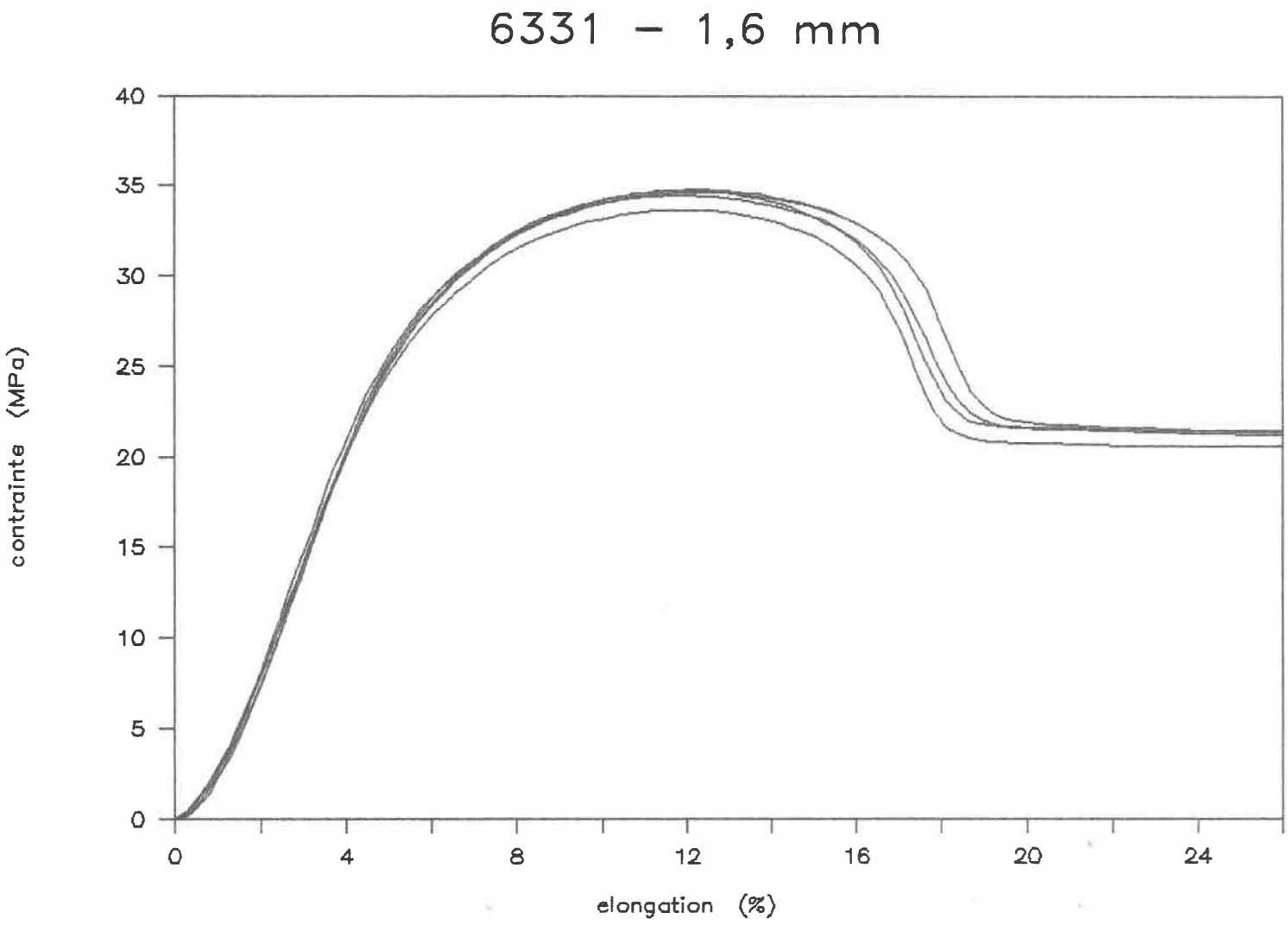

507-20 - 3 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

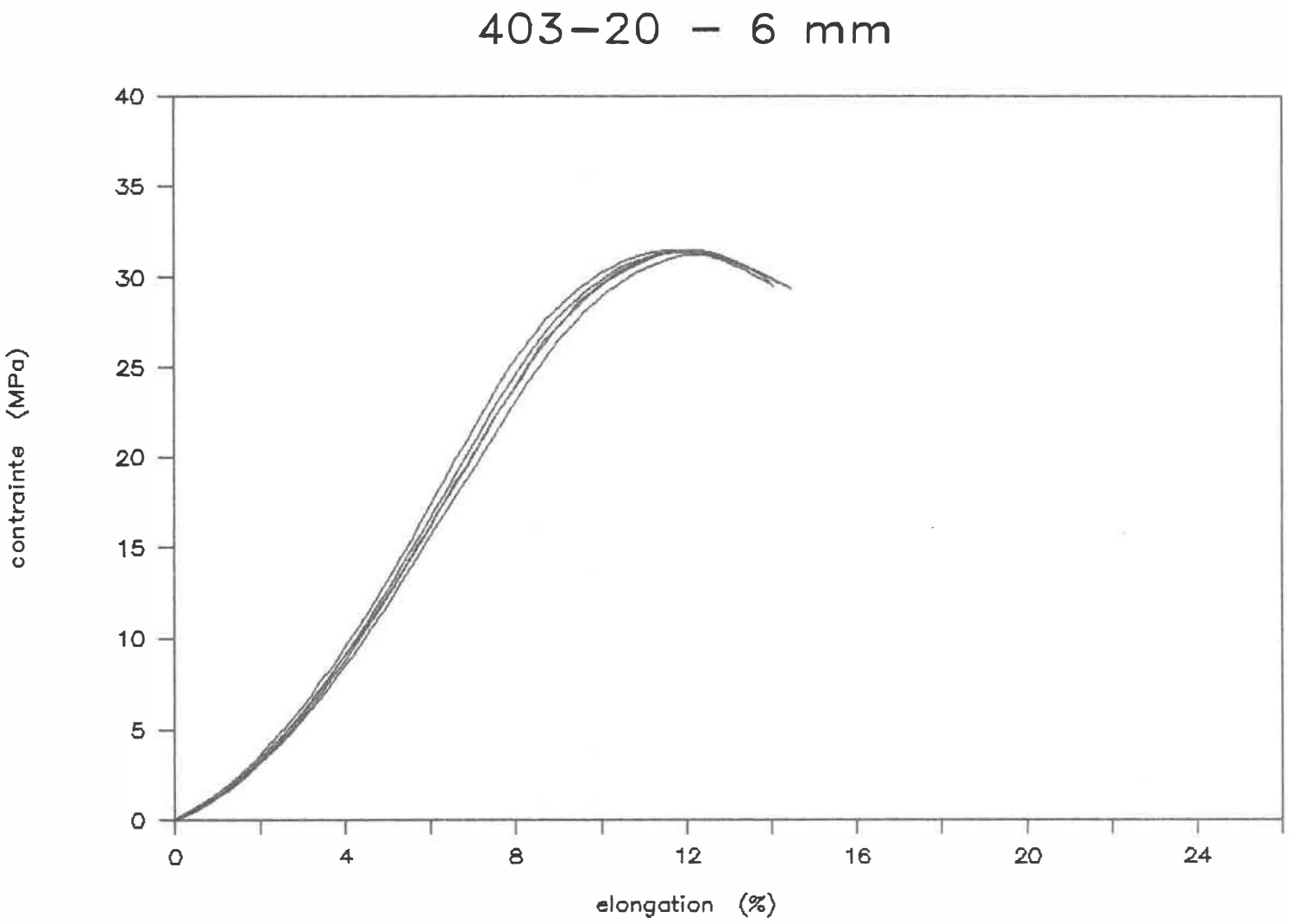

407-20 - 6 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)


403-40 - 6 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

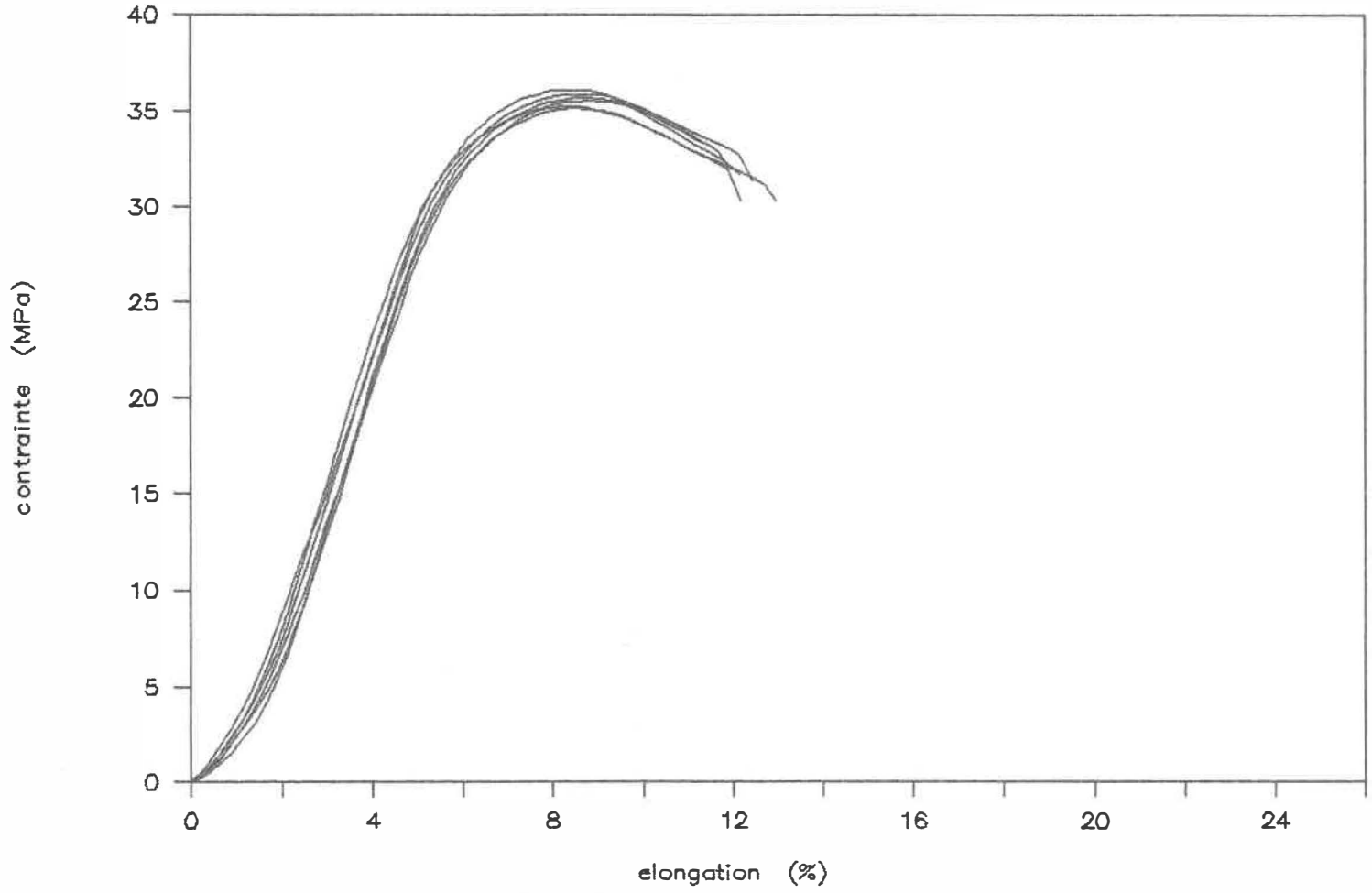
6331 - 6 mm


40
35
30
25
20
15
10
5
0
contrainte (MPa)
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)


6331 - 1,6 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)


403-20 - 6 mm
contrainte (MPa)
40
35
30
25
20
15
10
5
0
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

403-20 - 1,6 mm


40
35
30
25
20
15
10
5
0
contrainte (MPa)
0
4
8
12
16
20
24
elongation (%)

Annexe 1.3

PD 888 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,04	12,16	16,8
2	3,04	12,16	16,5
3	3,02	12,16	16,8
4	3,02	12,16	16,6
5	3,04	12,16	16,3
6	3,04	12,16	16,3

407-10 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,00	12,08	18,3
2	3,00	12,06	18,6
3	3,00	12,02	18,3
4	3,00	12,02	18,6
5	3,00	11,92	18,3
6	3,00	12,10	18,5

407-20 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,00	12,06	19,8
2	3,00	11,98	19,6
3	3,00	12,02	19,6
4	3,00	12,06	19,5
5	3,00	12,00	19,8
6	3,00	12,06	19,8

407-30 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,00	12,07	22,0
2	3,00	12,10	21,7
3	3,00	12,10	21,7
4	3,00	12,10	21,8
5	3,00	12,16	21,5
6	3,00	12,07	21,7

407-40 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,00	12,08	23,3
2	3,02	12,10	22,8
3	3,00	12,06	23,2
4	3,00	12,06	23,2
5	3,00	12,04	23,0
6	3,00	12,02	23,2

6331 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,02	11,94	16,1
2	3,00	12,18	16,5
3	3,02	12,06	15,9
4	3,02	12,05	16,1
5	3,02	12,04	15,9
6	3,00	12,00	16,0

403-10 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,10	12,08	21,3
2	3,14	12,02	20,9
3	3,20	12,06	20,4
4	3,14	12,06	21,0
5	3,18	12,06	21,0
6	3,26	12,10	20,9

403-20 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,14	12,06	23,0
2	3,10	12,06	22,6
3	3,16	11,98	22,1
4	3,14	12,16	22,6
5	3,14	12,16	22,5
6	3,16	12,16	22,5

403-30 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,08	12,16	23,7
2	3,10	11,78	-
3	3,12	11,78	23,0
4	3,10	11,80	23,0
5	3,08	11,84	23,2
6	3,10	11,90	23,5

403-40 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,08	11,94	23,8
2	3,08	11,98	24,0
3	3,08	11,98	23,8
4	3,06	12,18	24,3
5	3,06	12,22	24,0
6	3,06	12,22	24,2

397-20 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,00	12,10	20,8
2	3,00	11,92	20,0
3	3,02	12,10	20,4
4	3,00	11,98	20,4
5	3,00	12,10	20,6
6	3,00	11,92	20,0

507-20 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,04	12,00	-
2	3,02	12,02	22,3
3	3,02	12,08	21,9
4	3,02	12,08	22,8
5	3,02	11,92	21,4
6	3,02	11,80	21,1

PD 893 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,02	12,00	14,8
2	3,04	11,98	15,3
3	3,02	11,90	15,0
4	3,02	12,10	15,1
5	3,02	12,16	15,0
6	3,02	12,24	15,1

395-20 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,06	11,74	20,6
2	3,05	12,06	21,4
3	3,06	12,04	21,1
4	3,06	12,08	21,3
5	3,06	12,10	21,5
6	3,04	12,12	21,5

405-20 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,08	12,26	21,6
2	3,10	12,26	-
3	3,07	12,26	21,5
4	3,06	12,26	21,8
5	3,06	12,18	21,9
6	3,06	12,23	21,4

393-20 - échantillon D790

	épaisseur (mm)	largeur (mm)	force (N)
1	3,04	12,20	21,8
2	3,04	12,16	21,5
3	3,06	12,10	-
4	3,04	12,06	21,6
5	3,04	12,02	21,5
6	3,04	12,10	21,6

ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL
3 9334 00257670 8