NNT : 2018SACLX002

Influence du vieillissement en atmosphère confinée sur la prédiction de la durée de vie des joints adhésifs

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay
préparée à l'Ecole Polytechnique

École doctorale n°579 : sciences mécaniques et énergétiques, matériaux et géosciences (SMEMAG)
Spécialité de doctorat: Mécanique des Matériaux

Thèse présentée et soutenue à Palaiseau, le 01 février 2018, par

M. Alexandre Jouan

Composition du Jury :

M. Renald Bernner Directeur de recherche, UPMC (– Unité de recherche)	Président
M. Erwan Verron Professeur, Ecole Centrale de Nantes (– Unité de recherche)	Rapporteur
M. Alexandre Lion Professeur, UniBwM (– Unité de recherche)	Rapporteur
Mme Véronique Doquet Directrice de recherche, Ecole Polytechnique (– Unité de recherche)	Examinatrice
M. Yann Marco Professeur, ENSTA Bretagne (– Unité de recherche)	Examinateur
M. Andrei Constantinescu Directeur de recherche, Ecole Polytechnique (– Unité de recherche)	Directeur de thèse
Mme Nathalie Lacroix Docteur, Schlumberger (– Entreprise)	Invitée
M. Frédéric Pauchet Ingénieur, Schlumberger (– Entreprise)	Invité

Thèse de doctorat

Remerciements

Cette thèse a été réalisée au Laboratoire de Mécanique des Solides de l'Ecole Polytechnique en collaboration CIFRE avec l'entreprise Schlumberger, sous la direction d'Andrei Constantinescu et avec le suivi de Nathalie Lacroix.

Je voudrais tout d'abord remercier Andrei pour son accompagnement au quotidien aussi subtil qu'efficace scientifiquement, et aussi calme que chaleureux humainement. Les autres doctorants de la #teamConstantinescu le savent bien, une « bonne » thèse n'est pas uniquement du fait du seul thésard. J'étais effectivement assez loin de me douter qu'un simple projet CASTEM d'élève ingénieur déboucherait sur un tel résultat plusieurs années plus tard ! J'ai également une pensée pour le directeur du laboratoire Patrick Le Tallec qui m'aura fait découvrir ainsi qu'à beaucoup de mes camarades d'alors les joies - et les peines ? - de la MMC qui m'accompagneront encore pendant un paquet d'années.

Je remercie Nathalie pour son aide et son recul en tant que scientifique non-mécanicienne (oui, certaines personnes font ce choix étonnant) qui ont constitué un apport certain vis-à-vis de l'interprétation des résultats et des décisions prises pour l'orientation des axes de travail au cours de la thèse. Son suivi régulier et bienveillant - au sujet des travaux de thèse, mais pas que - sera certainement irremplaçable. J'en profite également pour citer l'équipe Techno de Schlumberger qui m'a accueilli, et que je remercie pour son soutien et les nombreuses conversations pas toujours professionnelles mais le plus souvent scientifiques que j'ai pu avoir avec ses membres ! Sans oublier l'équipe tennis et l'équipe voile avec lesquelles j'ai pu faire quelques matchs/sorties pour le moins mémorables.

Je remercie les membres du jury de soutenance : Renald pour l'apport fructueux de son code de calcul aux résultats de la thèse et pour avoir présidé ce jury ; Alexander et Erwan pour avoir accepté de rapporter le manuscrit au détriment plus ou moins certifié de leurs vacances et Noël et pour l'apport de leurs modèles dans l'exploitation des résultats de la thèse ; Véronique et Yann pour leur contribution plus ou moins subtile suite à des présentations et des discussions au laboratoire ou en conférence.

Je remercie naturellement tous les membres du laboratoire avec lesquels j'ai pu interagir : Anna, Christiane, Alexandra et les autres administratifs ; François et Antoine pour leur précieuse contribution technique à l'atelier ; Hakim, Philippe, Jean-Christophe, Jean-Erik et tous les ingénieurs pour leur sens certain de la débrouille et de l'efficacité ; enfin tous les doctorants, ceux de la team joints (colle ou brasure, pas de jaloux), les Roger de la balle jaune (on en n'a pas fini), ceux du demi-étage (seule une minorité de privilégiés savent accéder à ce lieu tenu secret), et tous les autres !

Je remercie enfin ma famille, qui a sans doute passé plusieurs années sans forcément trop comprendre l'intérêt de triturer de la colle pendant trois ans - pas certain que la soutenance ait été utile dans ce sens, d'ailleurs. Un grand merci pour finir à Caroline, qui m'a épaulé et soutenu depuis le début.

Sommaire

INTRODUCTION GENERALE : 9

CHAPITRE 1 CONTEXTE MATERIAU ET MECANIQUE 11

1.1 Brefs rappels et résultats de MMC 11
1.1.1 Elasticité linéaire 12
1.1.2 Hyperélasticité 14

1.2 Présentation et généralités sur les matériaux de l'étude 16
1.2.1 Généralités sur les polymères 17
1.2.2 Généralités sur les matrices silicones 19
1.2.3 Généralités sur les matrices polyimide 20
1.2.4 Morphologies des particules d'argent utilisées en renfort 20

1.3 Conventions géométriques utilisées et spécificités des joints adhésifs 22

CHAPITRE 2 PROTOCOLES EXPÉRIMENTAUX 25

2.1 Revue comparative de tests de cisaillement pour des joints adhésifs 25

2.2 Mise en pratique technique des géométries de traction et de torsion 46
2.2.1 Géométrie de traction 46
2.2.2 Géométrie de torsion 53

2.3 Conclusion 56

CHAPITRE 3 CARACTERISATION MACROSCOPIQUE EXPERIMENTALE DU COMPORTEMENT VISCOELASTIQUE 59

3.1 Bibliographie et présentations des modèles 59
3.1.1 Modélisation viscoélastique linéaire temporelle 59
3.1.2 Viscoélasticité linéaire fréquentielle 62
3.1.3 Equivalence temps-température et courbes maîtresses 64
3.1.4 Viscoélasticité non linéaire 66

3.2 Résultats expérimentaux et identification des modèles 70
3.2.1 Courbes maîtresses 70
3.2.2 Effet Payne 78
3.2.3 Influence de la pression hydrostatique 82

3.3 Conclusion 85

CHAPITRE 4 ETUDE NUMERIQUE DE LA MICROSTRUCTURE 87

4.1 Présentations des modèles analytiques et des méthodes numériques d'homogénéisation utilisées 92
4.1.1 Homogénéisation en champ moyen 93
4.1.2 Homogénéisation périodique 99
4.1.3 Homogénéisation élastique VS. viscoélastique 102

4.2 Comparaison des résultats d'homogénéisation pour des lois linéaires 103
4.2.1 Représentativité du VER de l'étude 104
4.2.2 Calculs numériques élastiques VS viscoélastiques 107
4.2.3 Influence de la rigidité de la matrice sur le module de cisaillement du joint 108
4.2.4 Influence de l'orientation des particules sur le module de cisaillement du joint 109

4.3 Résultats FEM avec une modélisation hyperélastique de la matrice 112
4.3.1 Dispersion des contraintes hydrostatique et déviatorique 113
4.3.2 Influence de la pression hydrostatique 118
4.3.3 Etude des contraintes résiduelles 119

4.4 Conclusion 121

CHAPITRE 5 MECANISMES ET FACIES DE RUPTURE 123

5.1 Bibliographie des mécanismes de défaillances des joints adhésifs 124
5.1.1 Décohésion matrice-particule 125
5.1.2 Cavitation 126
5.1.3 Couplage des deux phénomènes dans un polymère chargé 128
5.1.4 Décohésion matrice-substrat 129

5.2 Identification des mécanismes 131
5.2.1 Ruptures cohésives 133
5.2.2 Ruptures adhésives 138

5.3 Conclusion 140

CHAPITRE 6 MODELISATION DE LA DUREE DE VIE 143

6.1 Bibliographie des modèles de fatigue de polymères 143
6.1.1 Approche par amorce de fissure 145
6.1.2 Approche par propagation de fissure 150

6.2 Bibliographie des modèles de vieillissement des polymères 153
6.2.1 Vieillissement chimique des polymères 154
6.2.2 Tenue en fatigue de polymères chimiquement vieillis 156

6.3 Cumul de dommage pour un chargement aléatoire proportionnel 159
6.3.1 Prédiction de durée de vie par la mécanique de l'endommagement 160

6.3.2 Cumul de dommage des métaux par l'approche temporelle 162
6.3.3 Cumul de dommage des métaux par l'approche fréquentielle 164

6.4 Résultats des essais de fatigue et proposition de loi de fatigue 166
6.4.1 Résultats des tests et identification d'une loi pour les joints adhésifs silicone 168
6.4.2 Résultats des tests et identification d'une loi pour les joints adhésifs polyimides 174

6.5 Conclusion 179

CONCLUSION GENERALE 183

BIBLIOGRAPHIE 187

ANNEXES 198

Annexe A. Dispositif expérimental de vieillissement sous atmosphère confinée 198

Annexe B. Calcul de l'auto-échauffement des joints adhésifs sous sollicitation cyclique à 10 Hz 201

Annexe C. Détermination de l'énergie d'activation du vieillissement de la colle silicone 204

Introduction générale :

Aujourd'hui, les industries pétrolières développent des produits électroniques de pointe pour évaluer et caractériser les formations rocheuses, suivre finement et précisément le forage d'un puits pétrolier et l'évolution de ses grandeurs caractéristiques en phase de production. Ces outils électroniques sont sollicités dans des conditions de plus en plus extrêmes : en effet, on estime que $15\,\%$ des puits pétroliers ont une température ambiante située entre $150°C$ et $175°C$, et $2\,\%$ à $3\,\%$ une température ambiante supérieure à $200°C$. Les brasures classiques au plomb, suite aux nouvelles normes environnementales, seront bientôt éliminées de l'électronique. De plus les brasures sans plomb (type SAC) ont un point de fusion nettement plus bas que celles au plomb, ce qui limite leur emploi à hautes températures. Une alternative à ces brasures est l'utilisation de colles conductrices : ces colles, matrices polymères chargées de fines particules conductrices, remplissent le même rôle que les brasures tout en respectant les normes environnementales puisqu'elles ne contiennent pas de plomb. En outre, elles présentent comme avantages :

- une mise en place et une utilisation facilitées par rapport aux brasures avec moins d'étapes dans le processus d'assemblage ;
- des températures de polymérisation plus basses que celles de refusion des brasures, sollicitant moins l'assemblage durant la cuisson et induisant de ce fait moins de contrainte résiduelle dans l'assemblage ;
- un gain de poids lié à la faible densité de la matrice polymère.

Ces avantages conduisent également les fabricants à utiliser les adhésifs comme alternative à d'autres assemblages mécaniques (vissé, soudé, riveté, etc) dans certaines situations.

Depuis leurs débuts, les adhésifs continuent de présenter pour principale faiblesse leur manque de fiabilité. Ils ne peuvent donc pas encore être considérés comme une alternative totalement viable en toute situation. D'une part, plusieurs études effectuées depuis vingt ans environ sur le comportement en fatigue en sollicitation thermique et mécanique d'assemblages collés et d'éprouvettes massiques montrent une défaillance accrue après une certaine durée d'utilisation et de sollicitation. D'autre part, le dégazage progressif des solvants initialement contenus dans les adhésifs ainsi que leur vieillissement pendant la vie en service du produit en atmosphère confinée peuvent dégrader les propriétés mécaniques de ces adhésifs. Utiliser des joints adhésifs structuraux en milieu confiné implique de maîtriser l'interaction possible avec les produits de dégazage. Mais la compréhension des mécanismes de défaillance reste floue, et l'étude en vieillissement sous différentes atmosphères confinées (vide, gaz inerte, air…) reste à faire. Il est donc toujours important de pouvoir comprendre et simuler le comportement des colles et des assemblages collés durant le cycle de vie des outils électroniques.

On s'intéresse donc à la mise en place d'outils de prédiction de la durée de vie thermomécanique d'adhésifs prenant en compte le vieillissement à l'air libre ou dans des milieux confinés.

Le présent manuscrit détaille les aspects suivants de l'étude menée pendant ce travail de thèse :

- Le premier chapitre introduit le cadre scientifique et industriel de ce travail de thèse.
- Le deuxième chapitre détaille les protocoles expérimentaux suivis pour mettre en place les essais mécaniques effectués.
- Le troisième chapitre présente une caractérisation viscoélastique expérimentale complète des joints adhésifs par la méthode de DMA (Dynamic Mechanical Analysis).
- Le quatrième chapitre consiste en une étude numérique qualitative de l'hétérogénéité microstructurelle matrice/charges des joints étudiés dans cette thèse.
- Le cinquième chapitre s'attarde sur l'analyse des faciès de rupture des joints obtenus après les tests de fatigue.
- Le sixième et dernier chapitre décrit l'étude du comportement en fatigue avec l'obtention de modèles décrivant au mieux les courbes de fatigue obtenues expérimentalement.

Chapitre 1 Contexte matériau et mécanique

Ce premier chapitre vise à définir le cadre fondamental sur lequel repose le travail effectué dans cette thèse. En premier lieu, il rappelle les bases de Mécanique des Milieux Continus (MMC) nécessaires à la compréhension générale du manuscrit. Il présente ensuite les caractéristiques générales des matériaux qui constituent les joints adhésifs étudiés. Enfin, il introduit les spécificités géométriques et structurelles des joints adhésifs et les hypothèses principales qui en découlent directement.

1.1 Brefs rappels et résultats de MMC

Cette thèse se situe dans le cadre général de la mécanique des milieux continus (MMC) dont les bases seront supposées connues [1] [2]. Quelques résultats les plus importants d'élasticité linéaire en petites déformations ainsi que d'hyperélasticité utiles pour la compréhension du manuscrit sont rappelés dans ce paragraphe.

Un solide matériel passe sous l'effet d'une transformation Φ d'une configuration initiale $\mathcal{C}_0$ non-déformée à une configuration actuelle $\mathcal{C}_t$ déformée selon le schéma de la Figure 1. Ainsi tout point matériel à la position $\underline{X}$ en configuration initiale se trouve à la position $\underline{x} = \Phi(\underline{X}, t)$ en configuration actuelle. Le déplacement du point matériel s'écrit $\underline{u}(\underline{X}, t) = \Phi(\underline{X}, t) - \underline{X} = (\Phi - I)(\underline{X}, t)$ [2].

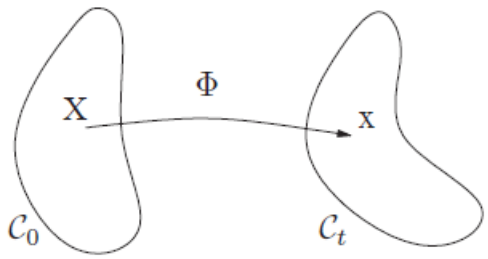


Figure 1 : Transformation Φ d'un solide matériel

A partir du gradient de la transformation $F = \nabla\phi$, le tenseur des dilatations C ainsi que la mesure de la déformation de Green-Lagrange E sont définis de la manière suivante :

$$C = {}^tF \cdot F$$

$$E = \frac{1}{2}(C - I) = \frac{1}{2}\left({}^tF \cdot F - I\right)$$

Etant donné sa construction, le tenseur des dilatations C a des propriétés de symétrie et ses valeurs propres sont le carré des dilatations principales λ_i.

La description des efforts $\underline{T}$ sur une facette solide de normale $\underline{n}$ de surface $\mathrm{d}S$ en configuration actuelle fait appel au tenseur de Cauchy σ :

$$\underline{T} = \sigma \cdot \underline{n} \mathrm{d}S$$

On définit ici deux mesures différentes de la contrainte qui seront abondamment utilisées dans le manuscrit :

- la contrainte hydrostatique σ_h, opposée de la pression hydrostatique p

$$\sigma_h = -p = \left(\frac{1}{3}\right) \mathrm{tr}\, \sigma$$

- la contrainte équivalente σ_{eq}, définie comme la norme du déviateur $s = \sigma - \sigma_h I$

$$\sigma_{eq} = \sigma_{VM} = \sqrt{\frac{3}{2}(\sigma - \sigma_h I) : (\sigma - \sigma_h I)}$$

1.1.1 Elasticité linéaire

Dans le cadre des petites déformations ($\left\|\nabla \underline{u}\right\| \ll 1$), la déformation de Green-Lagrange peut être raisonnablement approximée par le tenseur des déformations linéarisé ε :

$$E \approx \varepsilon = \frac{1}{2}\left(\nabla \underline{u} + {}^{t}\nabla \underline{u}\right)$$

Dans le cadre de l'élasticité linéaire en petites déformations ($\|\varepsilon\| \ll 1$), le tenseur d'élasticité $\boldsymbol{C}$ (à ne pas confondre avec le tenseur des dilatations C) et de souplesse $\boldsymbol{S}$ du matériau peuvent être introduits pour obtenir la loi de comportement reliant les tenseurs de contrainte et déformations :

$$\sigma = \boldsymbol{C} : \varepsilon \quad \text{et} \quad \varepsilon = \boldsymbol{S} : \sigma$$

Etant donné la symétrie de σ et de ε et les symétries majeure et mineures de $\boldsymbol{C}$ et $\boldsymbol{S}$, les notations de Voigt permettent de réécrire ces relations sous forme vectorielle pour $[\sigma]$ et $[\varepsilon]$ et matricielle pour $[\boldsymbol{C}]$ et $[\boldsymbol{S}]$, ce qui donne l'équation suivante pour $[\boldsymbol{C}]$:

$$[\sigma] = [\boldsymbol{C}][\varepsilon] \Leftrightarrow \begin{bmatrix} \sigma_{11} \\ \sigma_{22} \\ \sigma_{33} \\ \sigma_{23} \\ \sigma_{31} \\ \sigma_{12} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \boldsymbol{C}_{1111} & \boldsymbol{C}_{1122} & \boldsymbol{C}_{1133} & \boldsymbol{C}_{1123} & \boldsymbol{C}_{1131} & \boldsymbol{C}_{1112} \\ & \boldsymbol{C}_{2222} & \boldsymbol{C}_{2233} & \boldsymbol{C}_{2223} & \boldsymbol{C}_{2231} & \boldsymbol{C}_{2212} \\ & & \boldsymbol{C}_{3333} & \boldsymbol{C}_{3323} & \boldsymbol{C}_{3331} & \boldsymbol{C}_{3312} \\ & & & \boldsymbol{C}_{2323} & \boldsymbol{C}_{2331} & \boldsymbol{C}_{2312} \\ & & & & \boldsymbol{C}_{3131} & \boldsymbol{C}_{3112} \\ & & & & & \boldsymbol{C}_{1212} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} \\ \varepsilon_{22} \\ \varepsilon_{33} \\ \gamma_{23} \\ \gamma_{31} \\ \gamma_{12} \end{bmatrix}$$

avec $\gamma_{ij} = 2\varepsilon_{ij}$ pour la déformation de cisaillement dans le plan ij.

La relation pour $[\boldsymbol{S}]$ est tout à fait similaire : $[\varepsilon] = [\boldsymbol{S}][\sigma]$. Pour un matériau orthotrope, le tenseur des souplesses $[\boldsymbol{S}]$ peut s'écrire comme suit dans le repère principal de l'orthotropie :

$$[\boldsymbol{S}] = \begin{bmatrix} \frac{1}{E_1} & \frac{-\nu_{21}}{E_2} & \frac{-\nu_{31}}{E_3} & & & \\ \frac{-\nu_{12}}{E_1} & \frac{1}{E_2} & \frac{-\nu_{32}}{E_3} & 0\ 0\ 0 & 0\ 0\ 0 & \\ \frac{-\nu_{13}}{E_1} & \frac{-\nu_{23}}{E_2} & \frac{1}{E_3} & & & \\ & & & \frac{1}{G_{23}} & 0 & 0 \\ & 0\ 0\ 0 & & 0 & \frac{1}{G_{31}} & 0 \\ & 0\ 0\ 0 & & & & \\ & & & 0 & 0 & \frac{1}{G_{12}} \end{bmatrix} \quad \text{avec} \quad \frac{\nu_{ij}}{\nu_{ji}} = \frac{E_i}{E_j}$$

avec E_i les modules d'Young dans les directions i, ν_{ij} les coefficients de Poisson caractérisant la contraction du matériau dans la direction i quand il est étiré dans la direction j, et G_{ij} le module de cisaillement dans le plan ij. Le Tableau 1 suivant résume les simplifications du tenseur dans le cadre particulier de l'isotropie transverse, la symétrie cubique et l'isotropie :

Isotropie transverse autour de l'axe 3		Symétrie cubique	Isotropie
$E_1 = E_2 = E_T$ $E_3 = E_L$ $\nu_{12} = \nu_{21} = \nu_{TT}$ $\nu_{13} = \nu_{31} = \nu_{23} = \nu_{32} = \nu_{LT}$	$G_{23} = G_{31} = G_{LT}$ $G_{12} = G_{TT} = \frac{E_T}{2(1+\upsilon_{TT})}$	$E_i = E$ $\nu_{ij} = \nu$ $G_{ij} = G$	$E_i = E$ $\nu_{ij} = \nu$ $G = \frac{E}{2(1+\upsilon)}$

Tableau 1 : Simplifications du tenseur des souplesses dans le cadre de l'isotropie transverse, la symétrie cubique et l'isotropie

Pour un matériau isotrope incompressible, $\nu = 0.5$ et $G = E/3$.

Dans le cas de matériaux à symétrie cubique et isotropes, le tenseur d'élasticité $\boldsymbol{C}$ peut s'exprimer de manière équivalente :

$$[\boldsymbol{C}] = \begin{bmatrix} \lambda+2\mu & \lambda & \lambda & 0\ 0\ 0 \\ \lambda & \lambda+2\mu & \lambda & 0\ 0\ 0 \\ \lambda & \lambda & \lambda+2\mu & 0\ 0\ 0 \\ 0\ 0\ 0 & & & G\ 0\ 0 \\ 0\ 0\ 0 & & & 0\ G\ 0 \\ 0\ 0\ 0 & & & 0\ 0\ G \end{bmatrix} \quad \text{avec} \quad \begin{cases} \mu \neq G \text{ pour la symétrie cubique} \\ \mu = G \text{ pour l'isotropie} \end{cases}$$

Dans le cas isotrope, (λ, G) sont appelés les coefficients de Lamé et permettent d'exprimer le module de compressibilité isotrope $K = \lambda + (2/3)G$. L'incompressibilité d'un matériau se traduit par $K \to \infty$, c'est-à-dire $\lambda \to \infty$ car G reste fini (égal au tiers du module d'Young E).

L'écart à l'isotropie DEV pour une symétrie cubique peut être quantifié de la manière suivante [3] :

$$DEV = \boldsymbol{C}_{11} - \boldsymbol{C}_{12} - 2\boldsymbol{C}_{44} = 2(\mu - G)$$

Nous introduirons dans cette thèse une variante normalisée $DEV_n = DEV/2\boldsymbol{C}_{44} = (\mu - G)/G$.

1.1.2 Hyperélasticité

L'hypothèse des petites déformations ne s'applique pas toujours dans le cas des polymères qui peuvent parfois atteindre plusieurs centaines de pourcent de déformation tout en restant globalement élastiques. Cette propriété est appelée l'hyperélasticité. Elle est habituellement modélisée par l'intermédiaire d'une densité d'énergie de déformation élastique $W(E)$ souvent considérée pour un matériau isotrope comme étant fonction des élongations principales λ_i ou encore des invariants du tenseur des dilatations [2] qui peuvent s'exprimer en fonction des λ_i comme suit :

$$\begin{cases} I_1 = {\lambda_1}^2 + {\lambda_2}^2 + {\lambda_3}^2 \\ I_2 = {\lambda_1}^2{\lambda_2}^2 + {\lambda_2}^2{\lambda_3}^2 + {\lambda_1}^2{\lambda_3}^2 \\ I_3 = {\lambda_1}^2{\lambda_2}^2{\lambda_3}^2 = J^2 \quad \text{avec} \quad J = \det F \end{cases}$$

En notant ρ la masse volumique du matériau en configuration actuelle, la loi de comportement s'écrit

$$\sigma = \rho F \cdot \frac{\partial W}{\partial E} \cdot {}^tF \qquad \left(\text{auquel est rajouté } -p\underline{\underline{1}} \text{ en cas d'incompressibilité } J = \lambda_1\lambda_2\lambda_3 = 1\right)$$

De nombreuses expressions de $W(E)$ dans le cas de l'incompressibilité ($\rho = \rho_0$) ont été postulées par différents auteurs pour trouver une relation contrainte-déformation qui corresponde le mieux à leurs résultats expérimentaux. Les formes les plus classiquement utilisées font partie des séries polynomiales de Rivlin-Saunders [4] du type

$$\rho_0 W(E) = \sum_{i,j} C_{ij}(I_1 - 3)^i (I_2 - 3)^j$$

Les deux plus connues parmi ces séries sont les modèles Néo-Hookéen et de Mooney-Rivlin [5] :

$\rho_0 W_{NH}(E) = C_{10}(I_1 - 3)$	$\rho_0 W_{MR}(E) = C_{10}(I_1 - 3) + C_{01}(I_2 - 3)$

On voit que le modèle Néo-Hookéen est un cas particulier du modèle de Mooney-Rivlin pour lequel $C_{01} = 0$. La réponse en traction uniaxiale d'un matériau incompressible obéissant à une loi de Mooney-Rivlin est illustrée Figure 2 et s'écrit

$$\sigma = 2\left(C_{10} + \frac{C_{01}}{\lambda}\right)\left(\lambda^2 - \frac{1}{\lambda}\right)$$

L'identification avec un modèle linéaire élastique aux petites déformations ($\lambda \to 1$) donne

$$2(C_{10} + C_{01}) = G = E/3 \quad (\nu = 0.5)$$

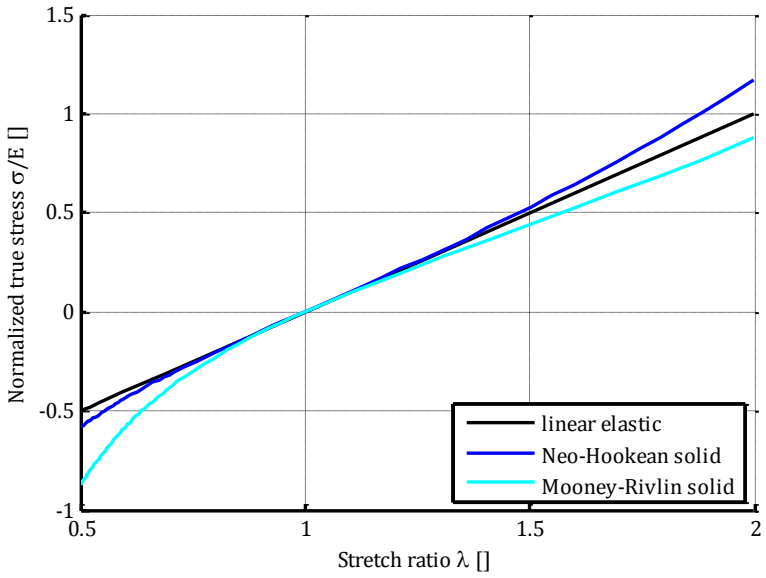


Figure 2 : Réponse normalisée lors d'une traction uniaxiale pour un matériau linéaire élastique (noir) de module E, néo-Hookéen (bleu foncé) avec $C_{10} = E/6$, et Mooney-Rivlin (bleu clair) avec $C_{10} = C_{01} = E/12$

Dans le cas d'élastomères compressibles, les invariants déviatoriatiques sont habituellement considérés

$$\begin{cases} I_3 = J^2 \\ \overline{I_1} = J^{-2/3} I_1 = J^{-2/3}\left({\lambda_1}^2 + {\lambda_2}^2 + {\lambda_3}^2\right) \\ \overline{I_2} = J^{-4/3} I_2 = J^{-4/3}\left({\lambda_1}^2{\lambda_2}^2 + {\lambda_2}^2{\lambda_3}^2 + {\lambda_1}^2{\lambda_3}^2\right) \end{cases}$$

Les lois Néo-Hookéenne et de Mooney-Rivlin deviennent

$\rho_0 W_{NH}(E) = C_{10}\left(\overline{I_1} - 3\right) + \frac{1}{D_1}(J-1)^2$	$\rho_0 W_{MR}(E) = C_{10}\left(\overline{I_1} - 3\right) + C_{01}\left(\overline{I_2} - 3\right) + \frac{1}{D_1}(J-1)^2$

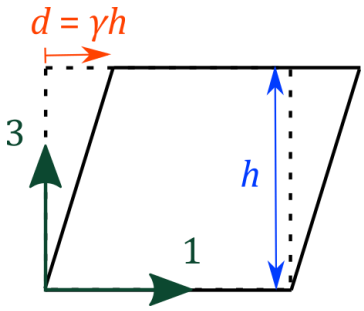
L'identification aux petites déformations ($\lambda \to 1$) donne

$$2(C_{10} + C_{01}) = G \quad \text{et} \quad \frac{2}{D_1} = K \text{ , d'où } \nu = \frac{3K/G - 2}{6K/G + 2} = \frac{3 - 2D_1 C_{10}}{6 + 2D_1 C_{10}} \qquad \textbf{Eq 1}$$

La présence du coefficient C_{01} du modèle de Mooney-Rivlin indroduit un adoucissement absent dans le modèle Néo-Hookéen. Contrairement au modèle linéaire élastique uniquement valable aux très petites déformations, ces deux modèles hyperélastiques donnent des résultats tout à fait raisonnables jusqu'à des déformations de l'ordre de $\varepsilon \sim 25\ \%$ [4]. Au-delà, il faudra leur préférer des modèles polynomiaux avec des ordres plus élevés ou des modèles logarithmiques capables de générer des raidissements et des asymptotes verticales pour une élongation maximale à déterminer expérimentalement. Le lecteur pourra par exemple se référer aux travaux de Gent [4], Arruda et Boyce [6], Hart-Smith [7] ou encore Ogden [8] pour de tel modèles.

Les déformations traitées dans cette étude n'étant pas supérieures à 35 %, les seuls modèles envisagés dans la suite du manuscrit seront les modèles Néo-Hookéen et Mooney-Rivlin. Dans le cadre spécifique des joints adhésifs, il est intéressant de noter la réponse de ces modèles à une sollicitation de glissement

simple. Ainsi, considérons un matériau incompressible isotrope obéissant à une loi de Mooney-Rivlin soumis à une transformation de glissement simple dans le plan 13 illustrée ci-contre de gradient



$$F = \begin{bmatrix} 1 & 0 & \gamma_{13} \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad \text{en notant} \quad \gamma_{13} = \frac{d}{h}$$

Le calcul donne

$$\sigma_{13} = 2(C_{10} + C_{01}) \times \gamma_{13} = G \times \gamma_{13}$$

Ainsi dans le cas particulier d'un matériau hyperélastique isotrope avec une loi Mooney-Rivlin soumis à un glissement simple, la relation entre la contrainte σ_{ij} et le glissement γ_{ij} est identique à celle obtenue par l'élasticité linéaire $\sigma_{ij} = G_{ij}\gamma_{ij}$.

1.2 Présentation et généralités sur les matériaux de l'étude

Les colles retenues dans cette étude sont deux colles conductrices commerciales utilisées par Schlumberger :

- la première est une colle à matrice silicone élastomère réticulée
- la seconde est une colle à matrice polyimide thermodurcissable

Les informations dont Schlumberger dispose sur ces colles se limitent aux fiches techniques du fournisseur, en libre accès sur Internet. En particulier, aucun détail n'est donné sur les caractéristiques du matériau polymère (fonctionnalisation, longueur de chaîne, taux de réticulation…) sinon le type de matériau polymère dont il s'agit : silicone ou polyimide. Les principales informations de ces fiches sont résumées dans le Tableau 2 ci-dessous :

Colle	colle silicone	colle polyimide
Polymère	Silicone	Polyimide
Charges	Argent	Argent
Densité	4,0	-
Perte de masse après cuisson	0,87 %	26 %
Température de transition vitreuse T_g	-45°C	240°C
Température d'utilisation	-40°C à 200°C	-
Coefficient d'expansion thermique α	330×10^{-6} K^{-1} pour $T > T_g$	41×10^{-6} K^{-1} pour $T < T_g$
Conductivité électrique	$1{,}7 \times 10^{6}$ Siemens/m	$7{,}7 \times 10^{5}$ Siemens/m
Conductivité thermique	-	2 W/(m · K)
Contrainte à rupture en cisaillement sur une puce de 2x2 mm²	1,1 MPa	9,5 MPa

Tableau 2 : Principales données fournisseur pour les joints silicone et polyimide

Ces deux colles sont constituées d'une matrice polymérique (silicone ou polyimide) au comportement viscoélastique. De plus, vu leur utilisation dans le domaine de l'électronique, elles possèdent des propriétés de conductivité électrique et thermique. En effet les joints adhésifs doivent conduire le courant nécessaire aux composants électroniques, et dissiper la chaleur produite par effet Joule dans ces composants lors de leur fonctionnement. Les colles sont donc chargées avec des particules d'argent, métal possédant les meilleures caractéristiques aux conditions normales de température et pression avec une conductivité électrique de $62{,}1 \times 10^6\,\mathrm{Siemens/m}$ et une conductivité thermique de $420\ \mathrm{W/(mK)}$.

Il est également intéressant de noter la perte de masse importante qui a lieu lors de la polymérisation du joint polyimide. Cette perte est due à la présence d'un solvant qui s'évapore lors de la cuisson du joint. Ce solvant est nécessaire à des fins de dilution et d'homogénéisation du polymère avant poymérisation. La présence de ce solvant entraine des difficultés supplémentaires dans la mise en œuvre du joint que détaillera le Chapitre 2 de cette étude.

La suite de ce chapitre présente quelques rappels sur les polymères, les matrices silicone et polyimide. Enfin, l'observation par microscopie électronique des joints polymérisés permettra de donner quelques précisions sur les particules d'argent.

1.2.1 Généralités sur les polymères

Les polymères sont des matériaux macromoléculaires complexes qui peuvent être décrits comme des chaînes constituées d'une succession de monomères reliés entre eux par des liaisons covalentes chimiques. Les chaînes peuvent être linéaires : le monomère ne présente que deux liaisons covalentes, une avec le monomère précédent de la chaîne et une avec le suivant. Si le monomère peut faire plus que deux liaisons covalentes avec ses homologues, un réseau tridimensionnel de chaînes réticulées est obtenu. Dans le cas de chaînes linéaires, le polymère présente une température de fluidification T_f au-dessus de laquelle il devient un liquide visqueux. Dans ce cas de chaînes réticulées, le passage à l'état liquide est impossible sans rupture de chaînes : le polymère ne possède donc pas de température de fluidification et augmenter la température conduira directement à la décomposition chimique. D'autre part, les polymères sont traditionnellement représentés sous forme amorphe, c'est-à-dire avec une répartition spatiale des chaînes totalement aléatoire (d'où l'image du plat de spaghettis souvent utilisée). Dans certains cas, des domaines cristallins peuvent coexister dans la phase amorphe du polymère. Ces cristallites sont le plus souvent sous forme de sphérolites à l'échelle micronique, constituées de juxtapositions de lamelles suivant une distribution radiale. Elles possèdent une température de fusion T_{fc} caractéristique du matériau.

Tous les polymères présentent une température de transition vitreuse T_g, correspondant à l'apparition de mouvements moléculaires de relativement grande amplitude des chaînes. En dessous de cette température, le volume libre dans le polymère est trop faible et les éventuels mouvements possibles pour les chaînes sont isolés (rotations de groupes secondaires, changements de conformation…). La déformation est donc majoritairement enthalpique et le polymère reste rigide : ce régime est appelé le

régime vitreux du polymère. Au-dessus de cette température, les chaînes peuvent bouger les unes par rapport aux autres, la déformation devient principalement entropique et le polymère s'assouplit beaucoup par rapport au régime vitreux : c'est le régime caoutchoutique du matériau. Les polymères sont traditionnellement séparés en quatre catégories selon leur rigidité [9]. Celles-ci sont illustrées dans la Figure 3 :

- les ***polymères amorphes non réticulés*** : ils possèdent une température de fluidification car ils sont linéaires. Ils sont habituellement appelés thermoplastiques si leur T_g est supérieure à la température ambiante T_{amb} et élastomères si $T_g < T_{amb}$.
- les ***polymères thermoplastiques semi-cristallins*** : ce sont les homologues des thermoplastiques amorphes, mais ils possédent une température de fusion $T_{fc} > T_g$ en-dessous de laquelle des cristallites se développent dans le matériau. Sur la plage de température $[T_g\ ; T_{fc}]$, le polymère est donc un solide souple intermédiaire entre l'état vitreux et l'état caoutcoutique.
- les ***réseaux thermodurcissables*** : ils possèdent un réseau très densément réticulé les rendant très stables, d'où $T_g > T_{amb}$. Ils ne possèdent pas de température de fluidification et restent donc solides à haute température jusqu'à décomposition chimique.
- les ***élastomères réticulés*** : leur réseau de chaîne est souvent bien moins réticulé que celui des thermodurcissables, d'où leur $T_g < T_{amb}$. Cette réticulation entraîne des changements très importants de propriétés dans la zone de T_g, mais ces polymères ne restent pas moins solides jusqu'à leur décomposition chimique à haute température.

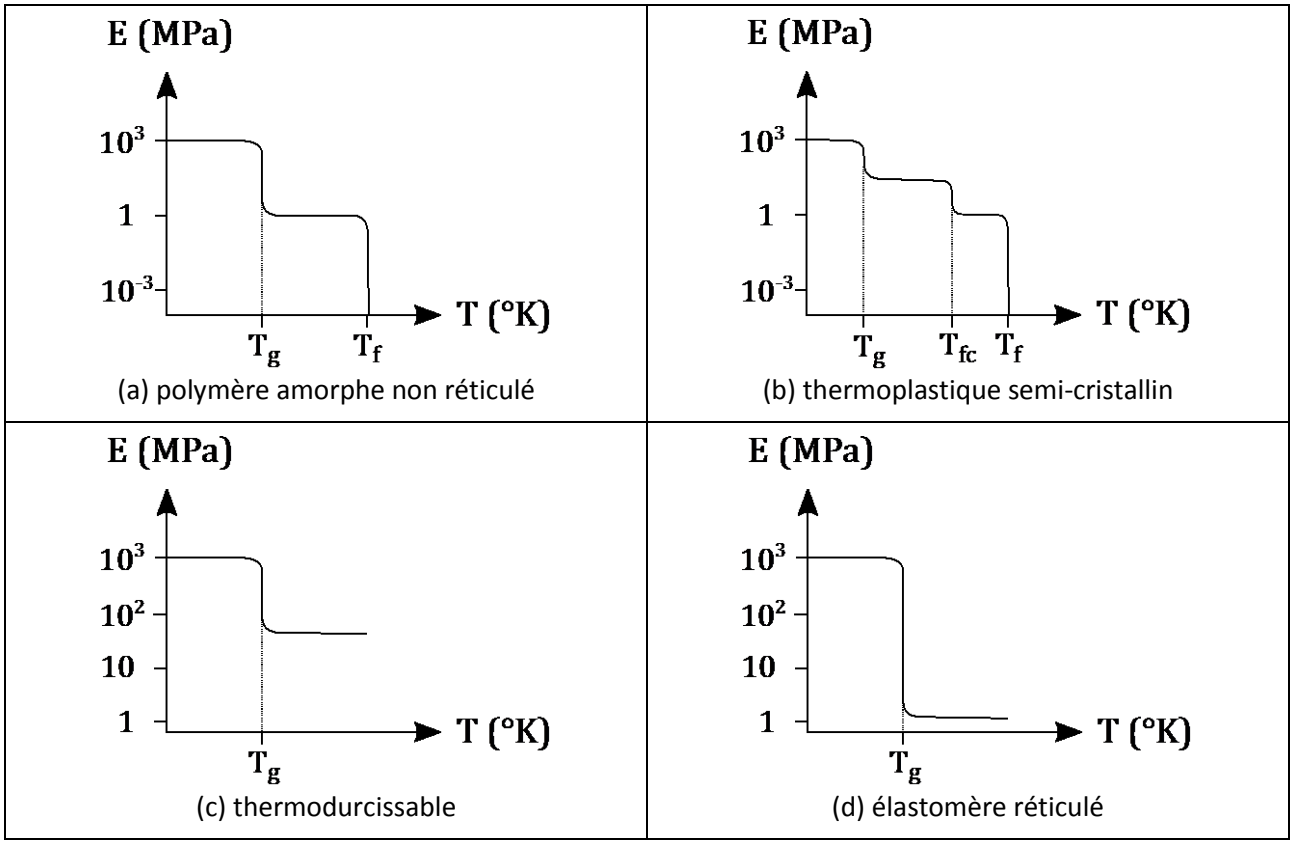


Figure 3 : Illustration de l'évolution de la rigidité des polymères selon leur catégorie

1.2.2 Généralités sur les matrices silicones

Les silicones sont également appelées polysiloxanes en référence aux noms **si**licium, **ox**ygène et **al**canes. La chaîne polymère d'une silicone est constituée d'une alternance d'atomes Si (silicium) et O (oxygène), comme illustré Figure 4. Le motif de base est appelé siloxane. La haute énergie de la liaison covalente Si - O ($452\ \mathrm{kJ/mol}$ contre $348\ \mathrm{kJ/mol}$ pour une liaison C - C pour comparaison) donne aux silicones leur caractère thermostable.

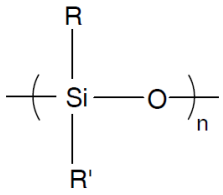


Figure 4: Motif de base d'un polysiloxane

Le silicium pouvant faire quatre liaisons covalentes, sa fonctionnalité est définie comme le nombre d'atomes d'oxygène lui étant liés. Les autres liaisons sont faites avec des groupes alkyles, nommés R dans les schémas du Tableau 3.

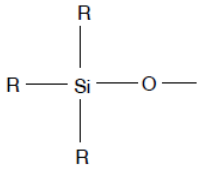
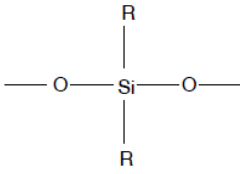
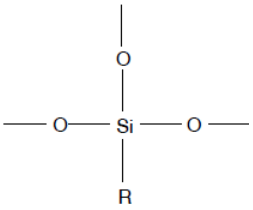
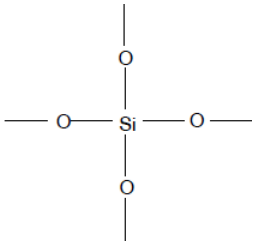
Fonctionnalité	Mono (M)	Di (D)	Tri (T)	Quadri (Q)
Motif				

Tableau 3: Fonctionnalités des motifs siloxanes

Un polysiloxane linéaire est donc une succession de motifs di-fonctionnels avec deux motifs mono-fonctionnels à ses extrémités. Le silicone le plus courant est le polydimethylsiloxane linéaire, où les groupements R sont des groupements méthyl CH_3, et la nomenclature fonctionnelle serait MD_nM. Les motifs tri-fonctionnels et quadri-fonctionnels introduisent des ramifications de chaînes et permettent donc une réticulation des chaînes dans toutes les directions pour former des réseaux de matrice tridimensionnels. Les silicones sont des élastomères réticulés, puisqu'ils sont caoutchoutiques à température ambiante. Les températures de transition vitreuse typiques pour les silicones sont aux alentours de $-120℃$. Certains silicones peuvent éventuellement cristalliser et donc présenter une température de fusion aux alentours de $-45℃$. Il est intéressant de voir que la T_g annoncée par le fournisseur (reportée dans le Tableau 2) correspond à ce que la littérature définit habituellement comme une température de fusion T_{fc}.

Les silicones sont des élastomères dont le module d'Young est de l'ordre de quelques MPa à température ambiante et la compressibilité nulle ou quasi nulle ($\nu \sim 0{,}48$ à $0{,}5$).

1.2.3 Généralités sur les matrices polyimide

Les polyimides sont des polymères dont le motif comporte un groupement imide constitué d'un atome d'azote N lié à deux groupes carbonyles R - C = O, dessiné Figure 5 :

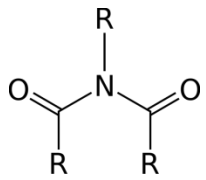
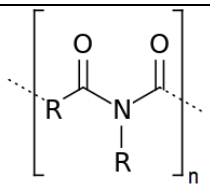
	
Groupement imide	Motif de base d'un polyimide

Figure 5 : Groupement imide et motif de base d'un polyimide

La stabilité en température de ces polymères provient souvent des cycles aromatiques contenus dans les chaînes R et de leurs interactions entre ces cycles et les hétéroatomes accepteurs (azote, oxygène). La structure tétraédrique de l'azote avec le groupement R permet éventuellement, sous réserve de fonctionnalisation, de ramifier et réticuler le réseau de chaînes.

Un exemple de polyimide célèbre est le Kapton commercialisé par l'entreprise DuPont, dont le domaine de stabilité en température est au moins $[-250\text{°C}\,;350\text{°C}]$ grâce à ces nombreux cycles aromatiques illustrés Figure 6.

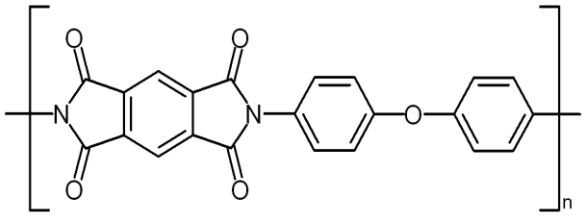


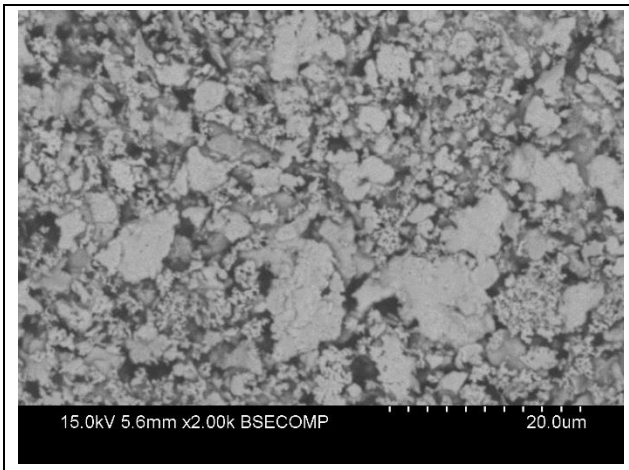
Figure 6 : Motif de base du Kapton

Les polyimides, en particulier aromatiques, ont généralement une T_g au moins égale à 250°C, ce qui est cette fois-ci cohérent avec les données fournisseur du Tableau 2. Ces polymères sont donc dans la classe des résines thermodurcissables. L'ordre de grandeur du module d'Young à température ambiante est de quelques GPa, mais le coefficient de Poisson est habituellement plus faible que pour les élastomères ($\nu \sim 0{,}35$ à $0{,}4$). Ces résines deviennent progressivement incompressibles quand elles sont chauffées au-dessus de leur T_g.

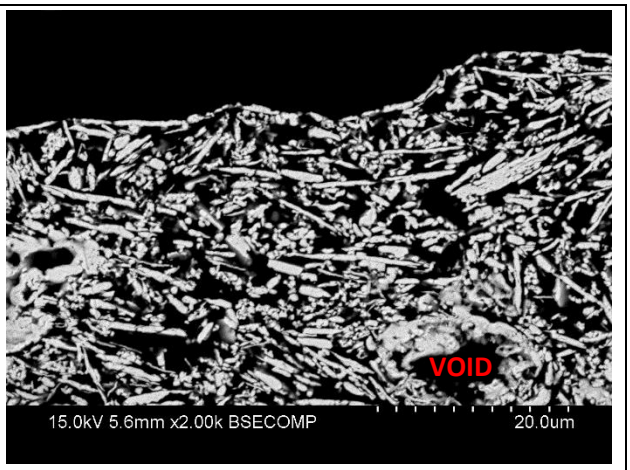
1.2.4 Morphologies des particules d'argent utilisées en renfort

Pour comprendre la morphologie des charges argent utilisées comme renfort des matrices polymères, les joints ont été observés au microscope à balayage électronique (MEB) avec le détecteur d'électrons rétrodiffusés. La tension d'accélération assez élevée ($15\ \text{kV}$) permet de pénétrer sans problème dans la matrice polymère et d'observer les particules sur une profondeur plus importante. Les vues de dessus et de côté des joints polyimide et silicone sont illustrées avec les Figure 7 et Figure 8 ci-dessous. Les taches

claires y représentent les particules d'argent et les interstices noirs la matrice (ou plus rarement des cavités post-polymérisation).

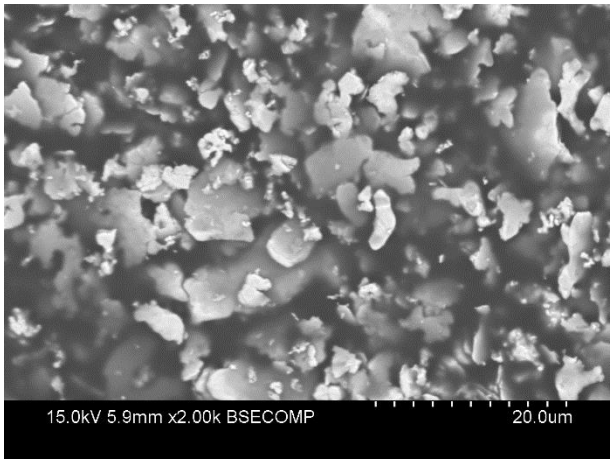


(a)

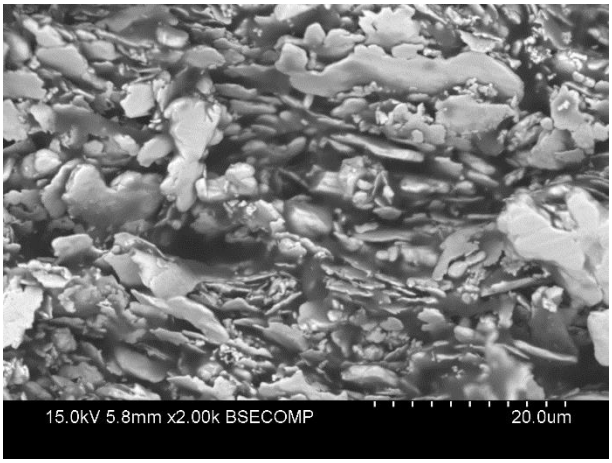


(b)

Figure 7 :Vue de dessus (a) et en coupe (b) d'un joint polyimide



(a)



(b)

Figure 8 : Vue de dessus (a) et en coupe (b) d'un joint silicone

Les charges argent utilisées dans les deux colles de l'étude sont des fines lamelles allongées (appelées « flakes » (« pétales » en français) fortement anisotropes. Une étude plus détaillée de leur forme est présentée au Chapitre 4. Le taux de charge est particulièrement élevé (plus de $50\,\%$ en volume) pour assurer la percolation des charges et conduire le courant électrique, afin de pouvoir utiliser ces colles en remplacement de brasures de composant électroniques sur substrat. La dispersion de la taille des charges est importante (répartition polydisperse) pour atteindre plus facilement les fractions volumiques nécessaires à la percolation des charges : la taille maximale typique des lamelles est d'environ 10 à $20\,\mu\mathrm{m}$ pour une épaisseur de $1\,\mu\mathrm{m}$, mais d'autres particules plus petites (environ 2 à $5\,\mu\mathrm{m}$) sont également présentes.

Les lamelles sont majoritairement orientées de manière horizontale après polymérisation du joint. Ceci peut être interprété comme un effet de la gravité qui tend à faire se poser les particules les unes sur les

autres tant que la matrice n'est pas encore suffisamment polymérisée pour figer leurs positions. Un ordre local est également observé dans l'orientation des lamelles : chaque lamelle a une orientation proche de ses voisines directes, y compris pour les lamelles qui ne sont pas horizontales.

1.3 Conventions géométriques utilisées et spécificités des joints adhésifs

Les joints adhésifs que nous allons étudier dans ce manuscrit ont des caractéristiques géométriques spécifiques : ils sont habituellement plans avec une épaisseur beaucoup plus faible que leurs deux autres dimensions, comme illustré dans la Figure 9 (a). Pour toute la suite de ce manuscrit, les conventions spatiales sont données dans la Figure 9 (b) : le plan horizontal $(1,2)$ sera le plan du joint et la direction 3 sera la direction normale au plan du joint, dans le sens de l'épaisseur. L'épaisseur du joint est notée h, sa longueur L dans la direction 1, et sa largeur w dans la direction 2 quand nécessaire. Dans l'application industrielle, les épaisseurs typiques sont aux alentours de $h \sim 30\ \mu\text{m}$, alors que les puces ou autres composants électroniques collés ont des dimensions en longueur et largeur de l'ordre de grandeur du millimètre. La relation $h \ll L, w$ est donc supposée vérifiée en permanence.

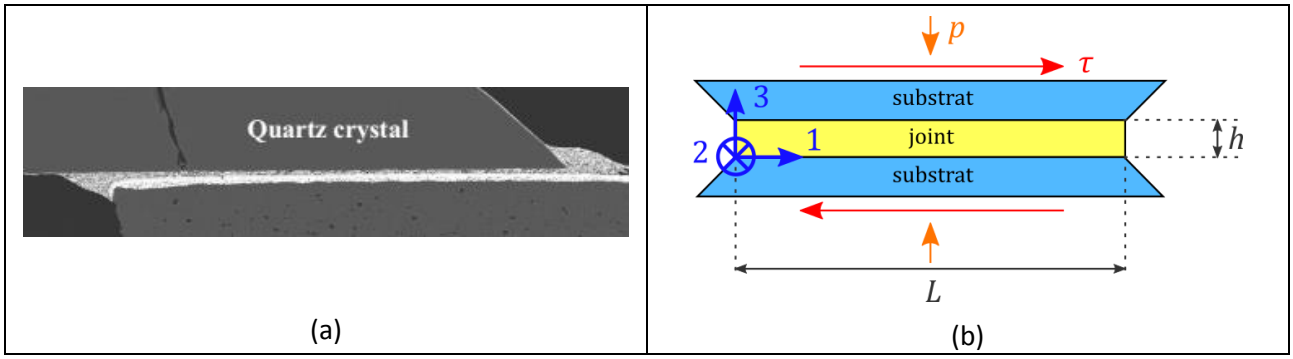


Figure 9 : Géométrie et conventions spatiales pour la description des joints adhésifs

Différents chargements industriels typiques pour une puce collée à un substrat sont présentés sur le schéma de la Figure 10 ci-dessous :

- un chargement thermique : la différence de dilatation thermique entre la puce et le substrat crée une contrainte de cisaillement dans le joint, qui est maximale aux extrémités du joint. Ce chargement crée aussi une contrainte de compression même si la puce et le substrat sont composés du même matériau car le joint polymère a un coefficient d'expansion thermique beaucoup plus élevé.
- un chargement en pression par un fluide extérieur : le joint est comprimé mais l'état de contrainte n'est pas isotrope à cause de la rigidité de la puce et du substrat qui empêche la transmission dans la contrainte de compression dans les directions horizontales (celles du plan du joint).
- un chargement vibrationnel : une contrainte de cisaillement est générée si la vibration est dans le plan du joint, alors qu'une vibration hors-plan génèrera des contraintes normales de manière similaire au chargement en pression.

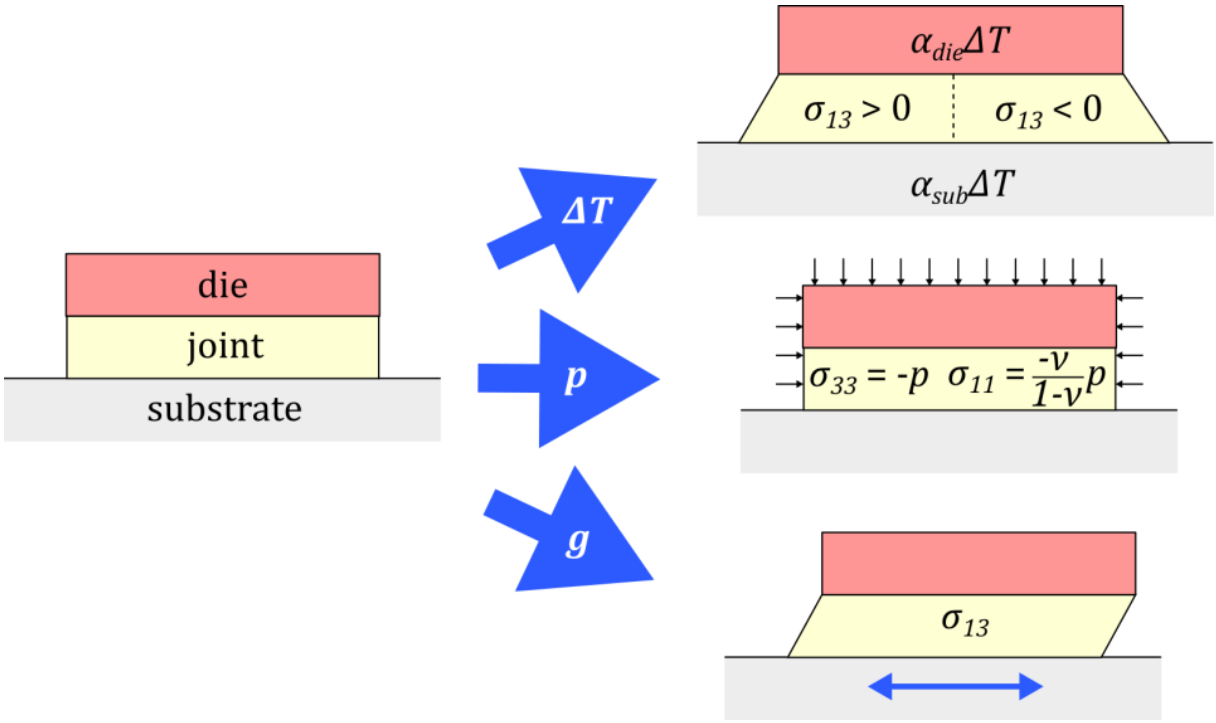


Figure 10 : Schématisation de trois chargements typiques du joint pendant sa vie en service : chargement thermique ΔT, chargement en pression hydrostatique p et en chocs et vibrations g.

Par ailleurs, la raideur des pièces collées (appelés « substrats » par la suite) est généralement beaucoup plus élevée que celle du joint qui les assemble, tant du point de vue matériau (modules élastiques plus élevés $E_{substrat}/E_{joint} \gg 1$) que géométrie (épaisseur plus importante $h_{substrat}/h_{joint} > 1$). Ces deux remarques rendent raisonnables les hypothèses suivantes :

- Le chargement mécanique du joint est entièrement décrit par deux paramètres illustrés Figure 9 (b) : la contrainte de cisaillement σ_{13} (ou de manière équivalente σ_{23}) qui sera appelée par la suite τ, et la contrainte normale hors-plan du joint σ_{33} (nommée $-p$ pour un joint incompressible).
- Lors d'une sollicitation hors-plan $\sigma_{33} \neq 0$, les deux substrats rigides empêchent le joint de se dilater ou de se contracter dans son plan $(1,2)$, cad $\varepsilon_{11} = \varepsilon_{22} = 0$. Dans le cas d'un joint macroscopiquement homogène de coefficient de Poisson ν, les contraintes normales dans le plan s'écrivent $\sigma_{11} = \sigma_{22} = \nu/(1-\nu)\sigma_{33}$. D'où, quand $\nu \sim 0{,}5$, $\sigma_{11} = \sigma_{22} \sim \sigma_{33}$: sous réserve d'incompressibilité du joint, la contrainte hors-plan σ_{33} résulte donc automatiquement en une contrainte hydrostatique pure à l'intérieur du joint $\sigma_h = \sigma_{33} = -p$.
- Le paramètre cinématique associé à la contrainte de cisaillement τ est le glissement simple γ. En petites déformations, τ et γ sont reliés par l'intermédiaire du module de cisaillement G : $\tau = G\gamma$. En hyperélasticité avec une loi de type Néo-Hooke ou Mooney-Rivlin, cette relation linéaire est toujours vérifiée (cf partie 1.1). Elle sera à ce titre toujours utilisée dans cette étude, étant donné les déformations « raisonnables » rencontrées (de l'ordre de maximum 35 %). Il a donc été choisi dans cette thèse d'appeler « module de cisaillement G » le rapport τ/γ, que l'hypothèse des petites déformations soit vérifiée ou non.

- Toujours dans le cas incompressible, l'hypothèse $\varepsilon_{11} = \varepsilon_{22} = 0$ implique nécessairement $\varepsilon_{33} = 0$. La contrainte $\sigma_{33} = -p$ n'a donc pas de paramètre cinématique associé. En revanche elle garde toujours a priori une influence sur le module de cisaillement G du matériau.

Chapitre 2 Protocoles expérimentaux

Les essais expérimentaux menés dans cette thèse ont servi à caractériser le comportement viscoélastique des joints en cisaillement d'une part, et leur tenue en fatigue en cisaillement d'autre part. Ces deux types de test ont donné lieu à deux géométries de test distinctes : une géométrie de torsion pour les tests de caractérisation viscoélastique par rhéomètre, et une géométrie de traction pour les tests de fatigue cyclique. Ce chapitre détaille les données et les choix techniques retenus dans ce travail de thèse pour effectuer les tests expérimentaux de caractérisation et de fatigue.

De nombreuses méthodes de test en cisaillement existent dans la littérature, avec chacune leurs points forts et leurs limites. La première partie de ce chapitre, reprenant directement le contenu d'un article soumis à l'International Journal of Adhesion and Adhesives [10], décrira le travail de bibliographie et les calculs effectués pour aboutir aux géométries choisies. La deuxième partie détaillera les solutions pratiques finalement retenues pour effectuer réellement ces tests de caractérisation et de fatigue.

2.1 Revue comparative de tests de cisaillement pour des joints adhésifs

1. Introduction

In the last decades, adhesive joints obtained a growing share of the bonding and assembly solutions in various industries. This is illustrated by technical studies across various fields like aeronautics and automotive [11], seawater [12], offshore [13] and electronics [14] [15] [16]. The replacement of soldering and welding by adhesive bonding has brought several advantages up: an easier assembly process, lower temperatures during the manufacturing process, alternative to lead soldering, the possibility to bind diverse materials together. The extending area of utilization requires novel mechanical tests to assess the behavior and the reliability of the joints.

Adhesive joints are not always a homogeneous material, but rather often a complex composite material with a specific microstructure. They usually consist of a polymer matrix and filler particles of a filling tissue. The fillers improve the mechanical properties and can also add electrical or thermal properties to the behavior of the adhesive joint. The dimensions of the adhesive joint are characterized by a small thickness when compared with the two in-plane directions. This geometric feature adds further difficulties when measuring the properties or proposing models to characterize their behavior. Moreover, the small thickness will increase the importance of the interfaces in the global behavior of the assembly and the need to characterize it. Technically, these two properties often lead to microscopic homogenization studies and macroscopic model reduction.

Therefore there is a specific need to design specific test geometries other than a classical tensile test specimen (dog bone specimen for example) to access material and interfaces properties of interest. So far several characterization methods have been proposed and documented in the literature. A first

method named the butt joint [11] [17] [18] has a considerable success in the joint community, as it enables a simple manufacturing process and the possibility to perform both tensile and shear tests. However, in the case of torsional load of the butt joint, the spatial stress and strain distributions within the joint are highly heterogeneous. Therefore supplementary numerical corrections are needed for the interpretation of the test results and for acquiring the real material data, as for example the Nadai correction discussed in [11]. Furthermore, in the case of a rate-dependent (viscoelastic) behavior characterization, the strain gradient inside the joint implies a non-uniform strain rate, resulting in a more complex identification procedure. Hence, this method will not be discussed in detail in this paper. Within the methods providing an uniform shear test, one can cite the following groups in order of increasing complexity: the single lap shear test (SLJ) [19] [20] [21] [22], the Thick Adherent Shear Test (TAST) [23] [24], the ARCAN device [25] [26], and the napkin ring test [24] [27]. The later measures substantially different parameter values for the same material as observed in [23], [24], [28] and [29]. In spite of the different comparisons, we still lack a simple overview of the different tests to estimate the differences between the testing configurations. This paper aims at filling this gap by proposing a critical review of the different set-ups, based upon a precise computation of the stress and strain fields using closed-form expression and numerical techniques. The understanding and the quantification of the experimentally obtained differences between the chosen methods illustrate their advantages and drawbacks and permit the optimal design of a specimen.

The article is organized as follows: it first describes the geometry of each studied test method. It then introduces notations, assumptions and criteria of comparison, and describes the analytical and numerical method used. Finally the results are presented and discussed with a focus on the mechanical state at joint mid-plane and joint-substrate interface. As a final consequence of the discussion, a “hybrid” specimen geometry for the test is proposed.

2. Presentation of the test methods

The testing methods exposed next are based on different geometries of the specimen and mechanical set-ups to transmit the applied loading to the joint. The choice of the adhesive joint thickness h and length L are usually let to the experimentalist. The existing standards rather classically define the dimensions and angles of the substrate and will be presented next. In this paper, all dimensions are given in millimeters by default.

The first three designs, denoted as the single lap shear test (SLJ), Thick Adherent Shear Test (TAST), and the ARCAN device are loaded using classical a tensile test machine, whereas the napkin ring test is suitable for a torsional test machine.

2.1. Single lap shear test (SLJ)

In spite of recent developments and criticisms, the lap shear is still the most used method to characterize joint behavior and strength because of its simplicity. It consists of two rectangular plates (substrates) bonded together by the adhesive joint with controlled dimensions (i.e. length L and thickness h), see

Figure 11. The common standards describing this method are ASTM D1002 and ISO 9664. However, let us remark that the set-up does not have the natural symmetries with respect to the adhesive joint and induces as such an additional moment to the loading. This moment causes the substrates to bend, as will be further highlighted.

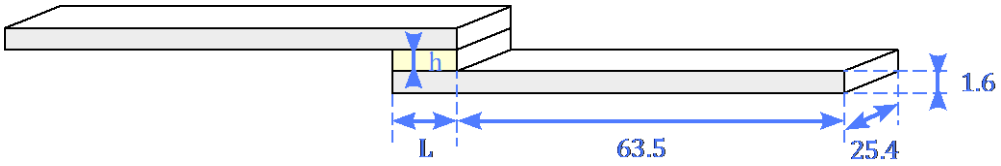


Figure 11: Single lap joint geometry

2.2. Thick Adherent Shear Test (TAST)

To overcome the weaknesses of the lap shear geometry, the TAST method was designed with thicker substrates. This change in substrate dimensions (length and thickness) aims at limiting the bending phenomenon of the substrates due to the rotational moment of the assembly during loading. One machined slot per substrate, separated by a distance L (cf Figure 12), allows the only central area of the joint to be solicited during loading. The engineering standards for this geometry are ASTM D3165 and ISO 11003-2.

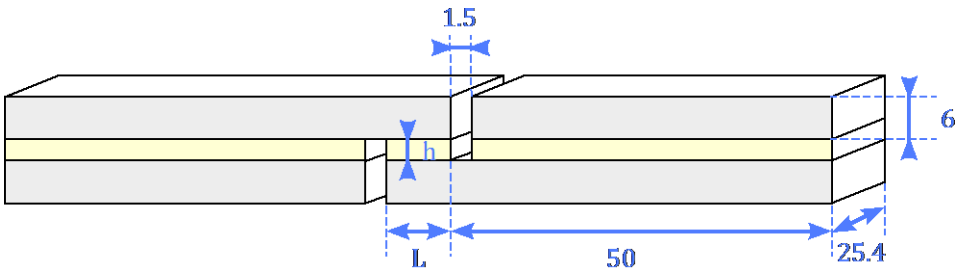


Figure 12: Thick Adherent Shear Test (TAST) geometry

2.3. ARCAN test

The ARCAN geometry adapted to adhesive testing consists in a butterfly shape illustrated in Figure 13, with two holes in each substrate that permits to fix the specimen to a special fixture device. This way, the loading is imposed close to the joint and not at the extremity of the substrate, away from the joint. The positions of the holes, coupled to the geometry of the substrates, are supposed to prevent any spurious bending of the assembly. No particular standard describes this method, therefore dimensions in Figure 13 are chosen according to typical values (in millimeters) found in the literature.

Several conditions between the dimensions of the geometry should be respected to avoid any unexpected effects, more specifically:

- $L_h \geq 5L$ and $L_v \sim L_h - L$: this condition permits to keep the global geometric aspect of the specimen and avoid angles far away from $45°$ and $135°$ for the substrate shape
- $d \leq L_v/8$: this condition ensures that the clamping holes are not too close to the joint, which would deteriorate the loading homogeneity in the joint as the Saint-Venant approximation no longer applies

2.4. Napkin Ring test

The Napkin ring geometry has a cylindrical symmetry as illustrated on Figure 14 and is therefore configured for a twist loading. It consists in two metallic rings bonded together by the joint, which has therefore the same inner and outer radius as the rings. Holes in the ring substrates, away from the joint, allow the assembly to be fixed to a twisting machine with a particular fixture device.

This method is not described in the actual standards. Therefore there is no absolute value for the dimensions to be given but rather some relations between the parameters to be respected:

- $e \leq R/5$: this condition ensures stress homogeneity in the radial direction. The joint transverse area then reads $S \approx 2\pi Re$
- $q \geq 5R$: this condition ensures that the Saint-Venant approximation applies (the stress state of the joint doesn't depend on the clamping conditions on the holes)

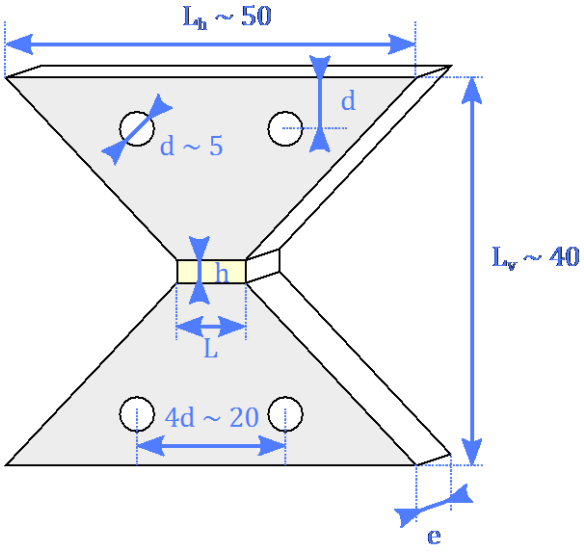


Figure 13: ARCAN geometry

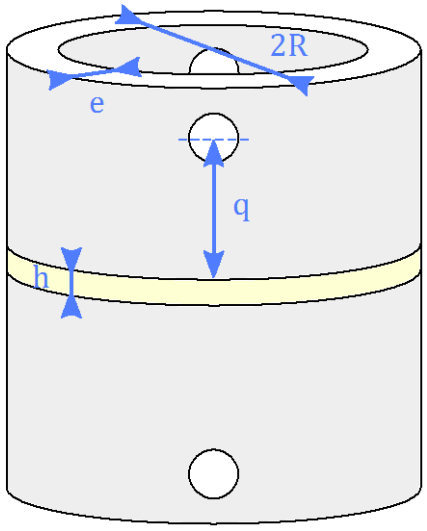


Figure 14: Napkin ring geometry

3. Notations and modeling assumptions

For the SLJ, TAST and ARCAN configurations, the joint under scrutiny is modeled with a rectangular shape (see Figure 15 left): the joint length L is aligned with the $\underline{e}_1$ direction, the joint width w is taken in the $\underline{e}_2$ direction and the joint thickness h corresponds to the last $\underline{e}_3$ direction, where $\underline{e}_1$, $\underline{e}_2$ and $\underline{e}_3$ denote the unit coordinate vectors of a Cartesian coordinate system.

The origin of the space description is taken at the joint bottom left corner, which means the joint occupies the space region $0 \leq x \leq L$; $0 \leq y \leq w$; $0 \leq z \leq h$.

The specimen is loaded under simple shear stress σ_{13}, symbolized by the red arrows on Figure 5 left. However as will be further discussed, this is only the main solicitation in the adhesive joint and further spurious components will be generated by the specific geometry of the specimen.

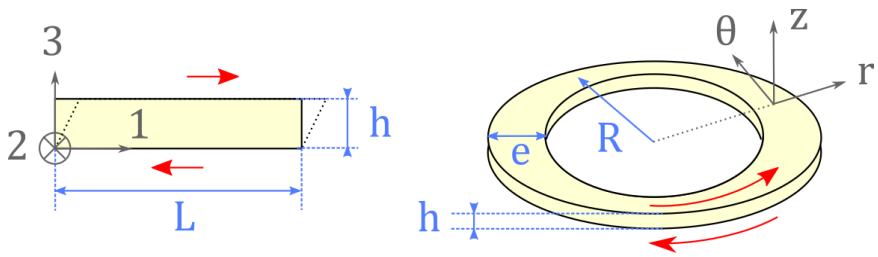


Figure 15: Space conventions for SLJ, TAST and ARCAN (left), and napkin ring (right). The red arrows symbolize the shear loading induced in the joint during solicitation

The joint geometry of the napkin test specimen where axial symmetry is assumed is illustrated on Figure 15 right: the joint thickness h is oriented in the $\underline{e_z}$ direction and joint width e in the $\underline{e_r}$ direction, where $\underline{e_r}$ and $\underline{e_z}$ denote the unit coordinate vectors of a Cylindrical coordinate system. The joint length L has a period of $2\pi R$, R being the radius of the ring. With this convention, the joint occupies the space region $-e/2 \leq r \leq R + e/2$; $0 \leq \theta \leq 2\pi$; $0 \leq z \leq h$. The loading of the napkin ring sample is supposed to induce as the main solicitation a shear stress $\sigma_{\theta z}$ illustrated with the red arrows. The thickness was set to $h = 1$ mm in all the computations presented in this paper, and the length L was varied between 10 mm and 100 mm. The thickness to length ratio h/L varies as a consequence from 10^{-1} to 10^{-2}.

Most of the adhesive joints are constituted out of polymer components and will exhibit a viscoelastic material behavior. However, in order to estimate the spatial distributions of strains and stresses one can consider the material as linear elastic. This is a consequence of a time space separation of variables at the considered time scales. Further justifications based on an example about modeling viscoelastic materials with elastic constitutive laws are given in Appendix B.

The parameters of the substrate and the joint are denoted with subscript 1 and subscript 2 respectively. The main discussion is based on aluminum substrates with a Young modulus $E_1 = 70$ GPa and a Poisson coefficient $\upsilon_1 = 0.33$ and nearly incompressible adhesive joints with shear modulus $G_2 = 100$ MPa and a Poisson coefficient $\upsilon_2 = 0.49$. The adhesive joint to substrate stiffness ratios are of $E_2/E_1 = 4.3 \times 10^{-3}$ if expressed in term of the Young moduli and of $G_2/G_1 = 3.8 \times 10^{-3}$ when expressed in terms of the shear moduli. This configuration corresponds to substrates much stiffer than the adhesive. The Table 4 gives typical adhesive over substrate stiffness ratios for classical materials in adhesive bonding and shows that the ratio can vary over 5 orders of magnitude between 1 and 10^{-5}.

	Polycarbonate $E_1 = 2.3\ GPa$	Aluminum $E_1 = 70\ GPa$	Steel $E_1 = 210\ GPa$
Silicon based adhesive $E_2 = 1\ MPa$	$E_2/E_1 \sim 5 \cdot 10^{-4}$	$E_2/E_1 \sim 1.5 \cdot 10^{-5}$	$E_2/E_1 \sim 5 \cdot 10^{-6}$
Epoxy resin $E_2 = 3.5\ GPa$	$E_2/E_1 \sim 1.5$	$E_2/E_1 \sim 5 \cdot 10^{-2}$	$E_2/E_1 \sim 1.5 \cdot 10^{-2}$

Table 4: Joint over substrate stiffness ratios for typical material combinations

The shear properties of the joint are computed from the measured applied load, which is actually the resultant force F (for SLJ, TAST and ARCAN setups) or moment M (for the napkin ring method), and the estimated relative displacements of the substrates experimentally available at the ends of the setup.

In the following, we will focus on the normalized local shear stress τ_n defined as the local shear stress divided by the average shear stress $\overline{\tau}$ within joint. The normalized local shear stress is a good illustration of the spatial heterogeneity of the stresses in the adhesive joint. Table 5 displays the expression of $\overline{\tau}$ and τ_n using the conventions and dimensions presented in the Figure 15:

SLJ / TAST / ARCAN	Napkin ring
$\bar{\tau} = F/A$ with $A = Lw$	$\bar{\tau} = M/RA$ with $RA \approx 2\pi R^2 e$
$\tau_n(x,z) = \frac{\sigma_{13}(x,z)}{\bar{\tau}} = \frac{\sigma_{13}(x,z)}{F/Lw}$	$\tau_n(\theta,z) = \frac{\sigma_{\theta z}(\theta,z)}{\bar{\tau}} = \frac{\sigma_{\theta z}(\theta,z)}{M/2\pi R^2 e}$

Table 5: Expressions of $\overline{\sigma}$ and τ for all testing methods

Next we shall also refer to the hydrostatic stress σ_h and the equivalent stress σ_{eq} classically defined as

$$\sigma_h = \frac{1}{3}\mathrm{tr}\left(\underline{\underline{\sigma}}\right)$$

$$\sigma_{eq} = \sqrt{\frac{3}{2}\left(\underline{\underline{\sigma}} - \sigma_h \underline{\underline{I}}\right) : \left(\underline{\underline{\sigma}} - \sigma_h \underline{\underline{I}}\right)}$$

The reader is referred to Appendix A for more detailed expressions of σ_h and σ_{eq}.

We introduce the triaxiality ratio as the ratio between the hydrostatic stress and the equivalent stress:

$$T = \frac{\sigma_h}{\sigma_{eq}}$$

The Table 6 gives the theoretical values of the triaxiality ratio for the characteristic mechanical states, including 95%-confidence intervals when adding 10% random noise on all components of the stress tensor:

State	Triaxiality ratio theoretical value	Confidence interval
Pure shear	$T = 0$	$[-0.037\,;0.037]$
Uniaxial tension	$T = 1/3$	$[0.257\,;0.410]$
Uniaxial compression	$T = -1/3$	$[-0.410\,;\,-0.257]$
Isotropic tension	$T = +\infty$	$[3.96\,;+\infty[$
Isotropic compression	$T = -\infty$	$]-\infty\,;-3.96[$

Table 6: Triaxiality ratio values and dispersion for typical mechanical states

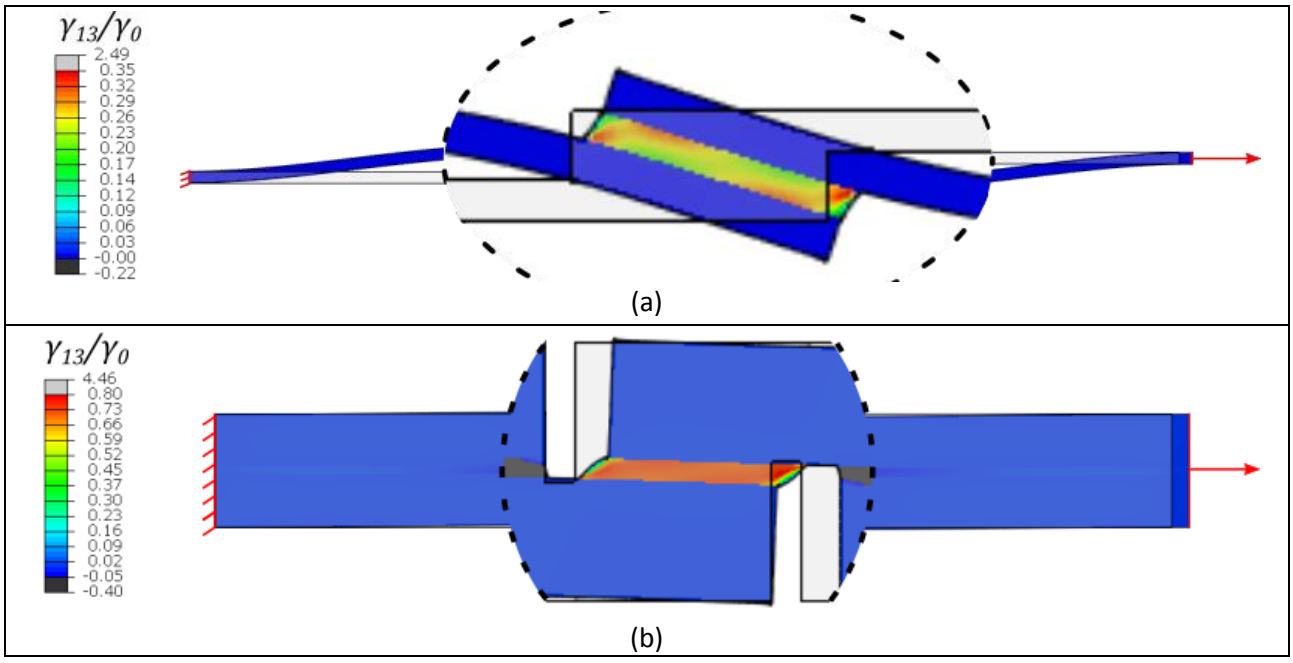
The joint is supposed to be loaded in simple shear during the test. Hence the two criteria retained in this study are:

- The deviation of the normalized shear stress from its theoretical value $\tau_n = 1$. This criterium indicates if the geometry is suitable for a characterization test of the adhesive joint mechanical behavior, where stress homogeneity is of importance.

- The triaxiality ratio deviation from its theoretical value $T = 0$. This criteria determines whether fatigue testing would effectively lead to failure due to shear stress instead of potential tensile stresses.

In order to access the local stress and strain fields, we use a detailed computation with the Finite Element Method. The computations were performed with the ABAQUS software under a plane strain $\varepsilon_{22} = 0$ and small strains assumptions for the first three standards (SLJ, TAST and ARCAN tests), which corresponds to the joint state at mid-width $y = w/2$. This choice implies that $\sigma_{12} = \sigma_{23} = 0$ and $\sigma_{22} = \nu_i(\sigma_{11} + \sigma_{33})$ where the indexes $i = 1{,}2$ denote the substrates and the adhesive joint respectively. The boundary conditions are imposed displacement at the extremities of the substrates. The Figure 16 represents the deformed state of the bonded assembly under loading, with a zoom at the joint location: denoting by $d\underline{e}_1$ the imposed displacement illustrated with the red arrows, the shear strain $\gamma_{13} = 2\varepsilon_{13}$ normalized by the macroscopic imposed strain $\gamma_0 = d/h$ has been plotted. The imposed strain γ_0 actually corresponds to the average strain in the joint if substrates were completely rigid. Boundary conditions are illustrated with red symbols. Qualitative differences can be already noticed:

- The TAST and ARCAN joints are closer to homogeneous state than the lap shear joint.
- The substrates of the lap shear set-up are highly bent, whereas their bending is very limited in the TAST configuration and eliminated for the ARCAN geometry.
- The normalized shear strain is somewhat smaller than 1 especially for the SLJ method, meaning the deformation of the substrates cannot be neglected in spite the very low joint to substrate stiffness ratio.



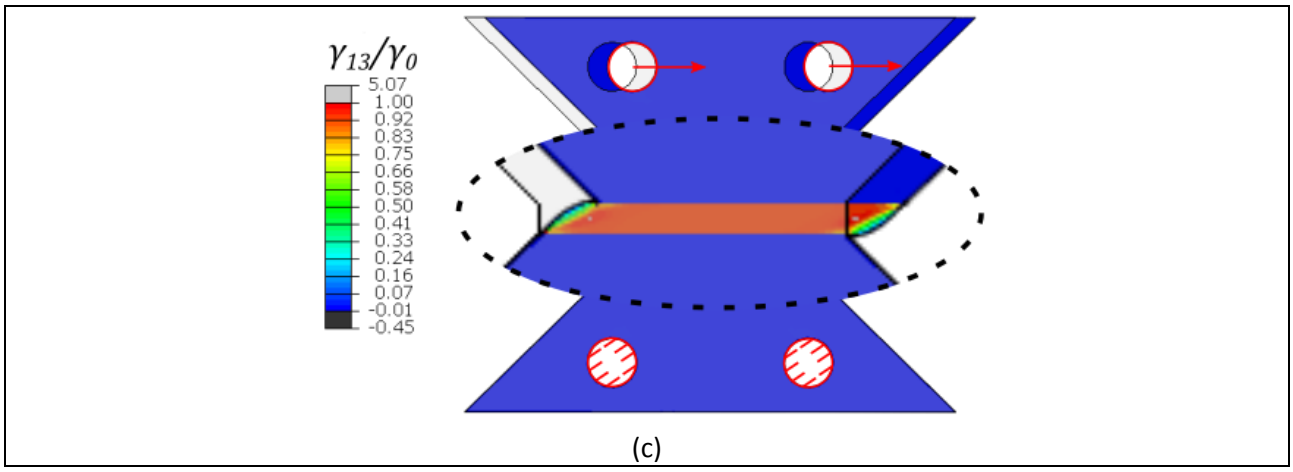


Figure 16: (a) Deformed state of the SLJ ; (b) Deformed state of the TAST ; (c) Deformed state of the ARCAN

Given the absence of symmetry of the loading for the napkin ring test, this last configuration has to be modelled using a complete 3D geometry including the width of the joint. The small strains assumption is also considered here. The second condition $w \geq 5R$ of the napkin ring method was consciously not verified in this study. Its physical significance is that the Saint-Venant approximation generally used for slender objects like rods and plates is not verified in this case. Boundary conditions are here again expressed in terms of imposed displacement. The Figure 17 shows the deformed state of this test configuration, where the colors denote zones of equal normalized shear strain $\gamma_{\theta z}/\gamma_0$. The two following qualitative remarks can be made:

- the shear strain isn't totally homogeneous as well and doesn't seem to be completely θ-independent (14% variation)
- the normalized shear strain is once again smaller than 1 (about 0.28), which induces that the substrates deformation has to be taken into account



Figure 17: Deformed state of the napkin ring test

4. Results

This section presents the quantitative results and the comparison of the different setups. The focus is brought on the spatial distribution of both normalized shear stress τ_n and triaxiality ratio T in two different locations within the joint: its middle plane defined by $z = h/2$ and its two interfaces with the substrates defined by $z = 0$ or h.

4.1. Shear stress homogeneity and triaxiality ratio at joint mid-plane $z = h/2$

We first set the z coordinate to $h/2$ and let the x coordinate describe the entire joint, i.e. $x \in [0\,;L]$. This is equivalent to discuss the results in terms of the reduced coordinate x/L, which runs through $[0\,;1]$. As the height is fixed, all fields therefore only depend on x or equivalently on x/L.

Figure 18 presents the evolution of the normalized shear stress $\tau_n(x/L)$, and the evolution of the triaxiality ratio $T(x)$ within joint half-length (the evolution is actually symmetric for the other half of the joint) for the SLJ method:

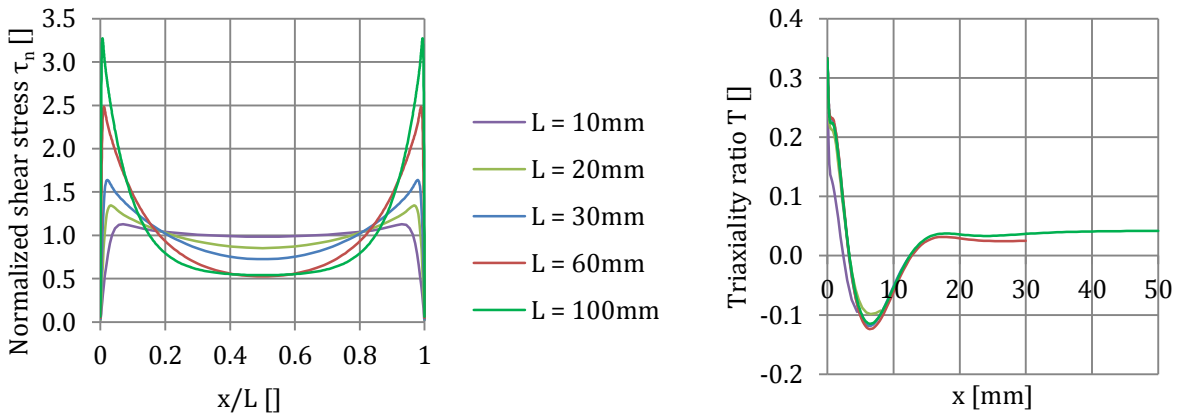


Figure 18: Shear stress repartition (left) and triaxiality ratio (right) at joint mid-plane for the SLJ method

The shear state becomes more heterogeneous as the joint length L is extended: the extremities are increasingly loaded at the expense of the middle of the joint, which is a serious limit for a characterization test. The Table 7 shows the ratio of the maximum shear stress over the shear stress in the middle of the joint $x = L/2$:

L (mm)	10	20	30	60	100
$\dfrac{\tau_n^{max}}{\tau_n(x/L = 0.5)}$	1.147	1.573	2.259	4.207	6.209

Table 7: Maximum over middle shear stress ratio for SLJ

On the other hand, the triaxiality ratio has the same behavior at joint extremity whatever the joint length. The triaxiality value at joint ends $T(x = 0 \text{ or } L)$ is about 0.34 and therefore corresponds to a uniaxial tension instead of a pure shear, meaning that a fatigue failure would appear because of tensile stresses rather than shear stresses. These tensile stresses are actually due to the bending phenomenon of the substrates illustrated on the deformed shape of the specimen (cf Figure 16).

The results for the TAST setup and comparison with the lap shear test are presented in Figure 19 for two different joint lengths: 10 mm and 30 mm.

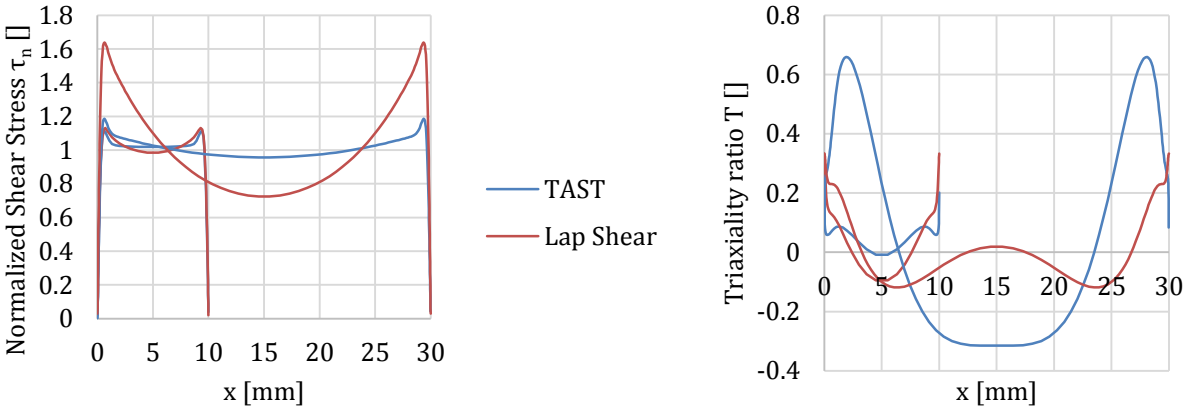


Figure 19: Shear stress repartition (left) and triaxiality ratio (right) at joint mid-plane for the TAST method

Table 8 of $\tau_n^{max}/\tau_n^{L/2}$ ratios is dressed for the TAST method where we also recall the values obtained with the single lap shear test for comparison purposes:

L (mm)	10	30
$\left(\frac{\tau_n^{max}}{\tau_n(x/L=0.5)}\right)_{SLJ}$	1.147	2.259
$\left(\frac{\tau_n^{max}}{\tau_n(x/L=0.5)}\right)_{TAST}$	1.093	1.238

Table 8: Maximum over middle shear stress ratio for SLJ and TAST

Shear stress τ_n homogeneity is improved with the TAST geometry compared to the lap shear test, especially for lengths larger than 30 mm where the single lap shear was already poor: the $\tau_n^{max}/\tau_n^{L/2}$ ratio is reduced by 45 % for the TAST compared to the lap shear at $L = 30$ mm. This improvement is a consequence of increasing the substrate thickness, which strengthens its bending stiffness. Nevertheless this thickness increase also leads to a triaxiality rise enhanced when increasing the joint length: the triaxiality ratio reaches indeed 0.66 for $L = 30$ mm, which is twice as high as for the lap shear setup. This phenomenon appears because vertical movement (in the $\underline{e_3}$ direction) due to slight bending of the substrates is not totally prevented regardless of their thickness. The TAST method is therefore a good candidate for a behavior characterization test, but must be used with care if for a fatigue test because early failures could outcome from this high triaxiality value involving high normal stresses.

The Figure 20 presents the shear stress τ_n and the triaxiality ratio T in a 10 mm-long ARCAN joint with the previous TAST and lap shear plots superimposed for comparison:

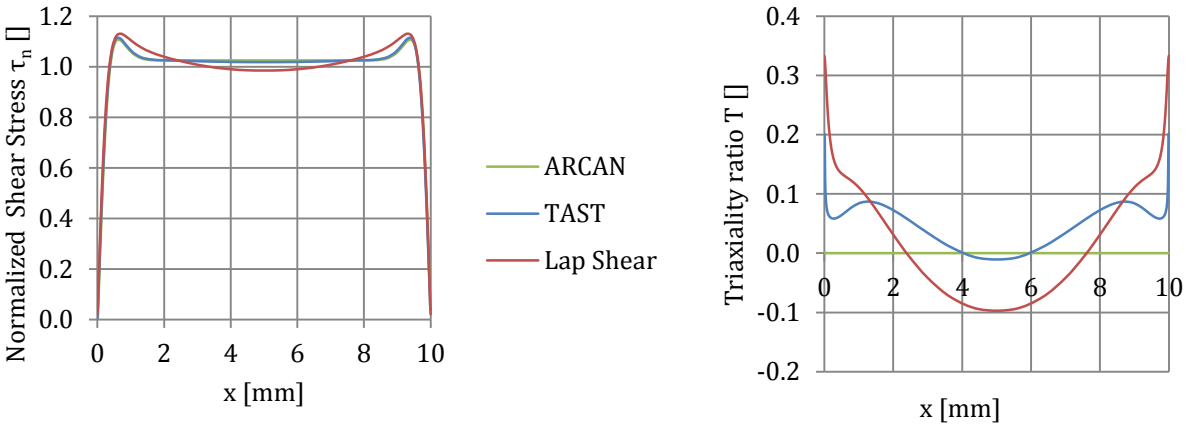


Figure 20: Shear stress repartition (left) and triaxiality ratio (right) at joint mid-plane for the ARCAN method

The stress homogeneity for both ARCAN and TAST setups are nearly identical (less than 1 % deviation between the two curves). We notice however a light peak about $\tau_n = 1.1$ near joint extremities which is present for the ARCAN as well as for the TAST method. This peak compensates the sudden stress drop at the free edges of the joint $x = 0$ or L and seems therefore unavoidable. But this time, the triaxiality ratio reaches 0 ± 10^{-3}, ie the stress state at joint mid-plane for the ARCAN method can be considered as pure shear. This result was moreover obtained for any joint length L in the interval of interest for the study $[10\ \text{mm}\,;100\ \text{mm}]$. This phenomenon could be explained by the fact that the imposed boundary conditions on the ARCAN geometry eliminates any potential bending movement of the substrate, preventing any rise of normal stresses because substrate are structurally much stiffer in tension/compression.

Results for the last napkin ring method are shown in Figure 21. The convention chosen here for the joint length L is $L = 2\pi R$, R being the ring radius.

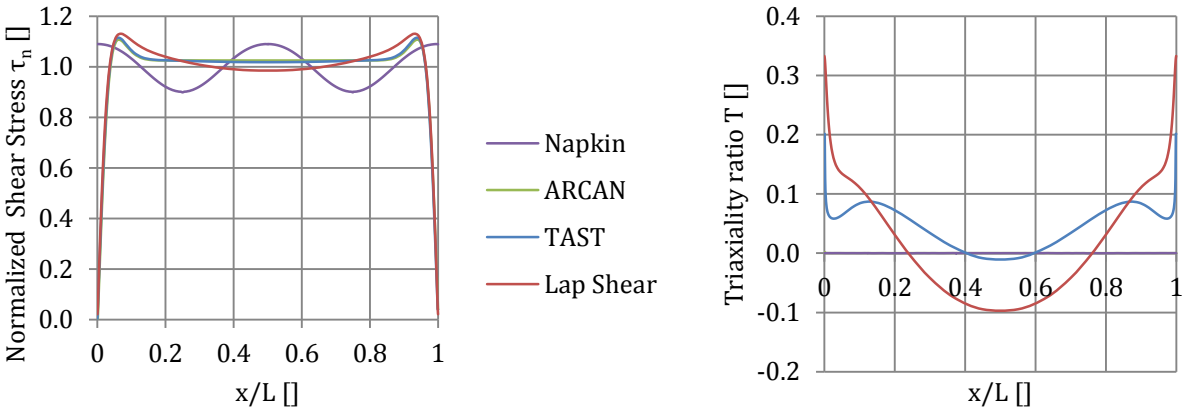


Figure 21: Shear stress repartition (left) and triaxiality ratio (right) at joint mid-plane for the napkin ring method

If the free ends of the lap shear, TAST and ARCAN joints inevitably imply a sudden drop of the shear stress, the napkin ring specimen doesn't present this inconvenience: any stress drop at joint ends and the associated peaks near the extremities have disappeared. Nonetheless, some shear stress oscillation

can appear related to the clamping boundary conditions if the holes in the substrates are not far enough away from the joint. This illustrates the role of the second condition $w \geq 5R$, which makes this parasitic oscillation progressively vanish as the holes are moved away from the joint. The triaxiality ratio remains about 0 ± 10^{-4}, as close to 0 as for the ARCAN geometry and for the same reason (no substrate bending possible).

A series of experimental results illustrating the preceding methods is exposed in [30] and the references therein. One can remark that they lead to non-linear material behavior. Let us now analyze the numerical response of a non-linear adhesive under a monotonic shear test with the four geometries: *(i)* substrate modelling is as above, *(ii)* the joint has a non-linear behavior modeled using an elastoplastic formulation with a classical Von Mises yield criterion and a kinematic hardening in the ABAQUS software. For the computations presented here, we have chosen a stress-strain relation that corresponds to the experimental data of the 1-part epoxy Ciba AV119 as exposed in [30], illustrated with the black dotted curve on Figure 22. Its relatively large shear modulus at small strains $G_{material} = 1075$ MPa when compared to typical adhesive stiffness in Table 4 permits to highlight any difference between the four shear tests. The particular values of stress and strain discussed next are computed as follows:

- the mean shear stress $\overline{\tau}$ is computed according to the expressions in Table 5
- the mean shear strain $\overline{\gamma}$ is defined as d/h with h being the joint thickness and d the relative displacement between the two joint-substrate interfaces. We assume that this latter quantity d can be experimentally measured either by reading on a strain gauge or using DIC.

The Figure 22 shows the response curves for the lap shear, the TAST, the ARCAN and the napkin ring tests, with a zoom in the small strains regions ($\overline{\gamma} \leq 0.1$) on the right side. The computations are stopped once the stress asymptote was considered reached. The extremities of the plots therefore don't reflect any specimen or material failure, but only the end of the computations.

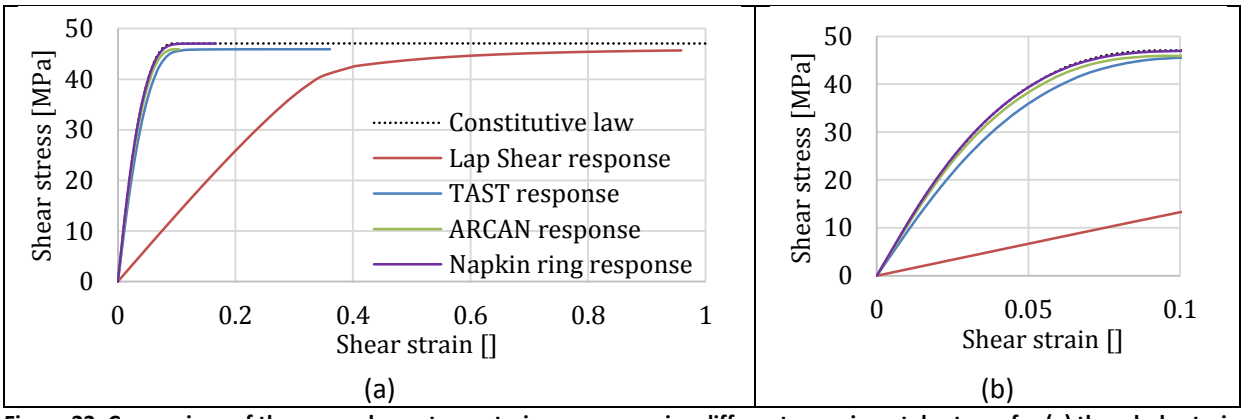


Figure 22: Comparison of the mean shear stress-strain response using different experimental set-ups for (a) the whole strain range explored and (b) a zoom for strains smaller than 0.1

The strong limitations of the SLJ are noticed here, where the shear modulus at small strains $G_{SLJ} = 133$ MPa is actually about 10 times smaller than the material modulus $G_{material}$. The TAST curve is a lot closer to the material one and we get $G_{TAST} = 918$ MPa, i.e. an underestimation of 15 %. The ARCAN test fits reasonably the small strain behavior with $G_{ARCAN} = 1043$ MPa (i.e. 3 % underestimation) and

starts to get away from the material curve only when reaching high stress levels. At last, the napkin ring curve fits perfectly the material behavior with less than $1\ \%$ difference between the two curves on the whole strain range explored.

4.2. Shear stress homogeneity and triaxiality ratio at joint and substrate interface $z = 0$ or h

At the corner of the joint and the substrate (see Figure 23 for the local geometry simplification), one encounters geometrical and material discontinuity which lead to potential stress and strain singularities. The singularity only affects a local neighborhood of the material discontinuity. It reflects at a rather local scale the geometric detail of the test configuration, and does therefore not depend of the complete test geometry.

The three main parameters characterizing the problem are:

- the joint over substrate stiffness ratio E_2/E_1, or similarly expressed as G_2/G_1
- the local substrate angle δ_1
- the local joint angle δ_2

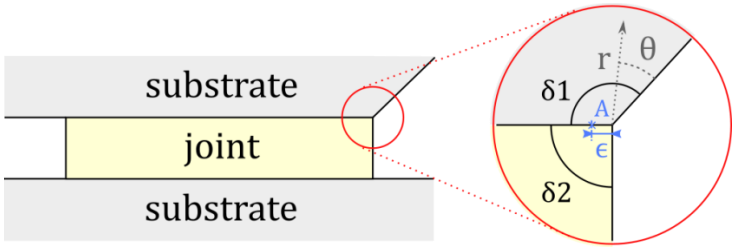


Figure 23: Joint-substrate local interface geometry

The outcome of stress singularities is classically known as the Williams eigenfunction analysis (see [31]). The phenomena can be understood by analyzing the asymptotic behavior of the displacement solution using the polar coordinates (r, θ) with origin at the joint corner. Let us further assume stress and displacement fields with the following form [32]:

$$\begin{cases} \underline{\underline{\sigma}}(r,\theta) = r^{\lambda-1}\underline{\underline{F}}(\theta) \\ \underline{u}(r,\theta) = r^{\lambda}\underline{G}(\theta) \end{cases} \qquad \textbf{Eq 2}$$

Both functions $\underline{\underline{F}}(\theta)$ and $\underline{G}(\theta)$ designate bounded and continuous with respect to θ. The reader has to remind that they also implicitly depend on the local geometry δ_1 and δ_2. This implies in particular that displacement jumps between joint and substrate are prohibited (the joint-substrate interface is considered fully and perfectly glued).

The displacement remains bounded in the vicinity of the wedge as $r \to 0$ if and only if $\lambda > 0$. This condition assures that the strain-energy $1/2\left(\underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\nabla}}(\underline{u})\right) r\mathrm{d}r\mathrm{d}\theta$ has a bounded value.

A stress singularity occurs if $\lambda < 1$: in this case the stress tensor has the form $\underline{\underline{\sigma}} = \frac{1}{r^{1-\lambda}}\underline{\underline{F}}$ with $1-\lambda > 0$ which diverges for $r \to 0$.

An analytical study based on [33] was first conducted considering the substrate as totally rigid compared to the joint, i.e. $E_2/E_1 = 0$. As the substrate doesn't deform, the results become independent of its local shape δ_1. The joint boundary conditions in displacement for this case simply read in the Cartesian reference basis defined in section 3

$$\begin{cases} \underline{u}(0 < x < L, z = 0) = \underline{0} \\ \underline{u}(0 < x < L, z = h) = d\underline{e}_1 \end{cases}$$

We consider that the horizontal edges of the joint (defined by $z = 0$ or $z = h$) are clamped by the substrate whereas the vertical ones ($x = 0$ ou $x = L$) remain stress free. The evolution of the eigenvalue λ with the joint angle δ_2 under these boundary conditions is illustrated in Figure 24 for three different values of joint Poisson's ratio.

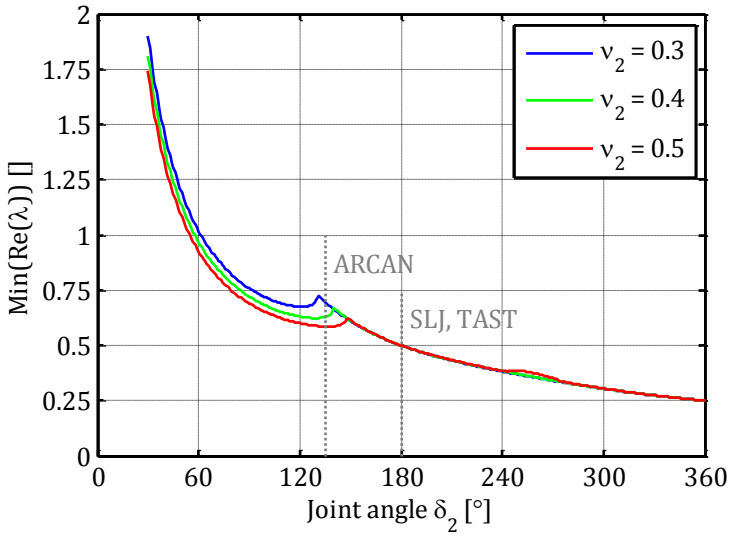


Figure 24: Singularity eigenvalue λ in function of the joint angle δ_2

The singularity appears for incompressible materials like rubbery joints ($\nu_2 = 0.5$) for $\delta_2 > 54°$. Concerning stiffer adhesives like epoxy or polyimide joints that have a smaller Poisson's ratio (about $\nu_2 = 0.35$), stress singularity arises for $\delta_2 > 60°$.

The consequences of the change of λ with δ_2 is detailed below with numerical FEM computations (see Table 9) for $\delta_2 \in [30°; 90°]$.

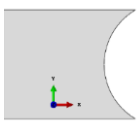
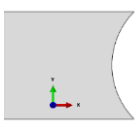
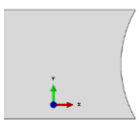
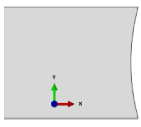
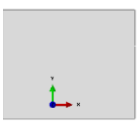
δ_2	30°	45°	60°	75°	90°
FEM shape					
λ ($\nu_2 = 0.5$)	1.74	1.18	0.92	0.78	0.69

Table 9: FEM shape for $\delta_2 \in [30°; 90°]$

The evolution of the simple shear stress σ_{13}, the equivalent stress σ_{eq} and the hydrostatic stress σ_h (all normalized by the average shear stress $\bar{\tau} = F/S$) with respect to the joint angle δ_2 is noted at a point $A(x = L - \varepsilon, z = h)$ lying on the joint-substrate interface closed to the joint corner illustrated on Figure 23. The FEM mesh is then refined until stress convergence at this particular point is reached. ε was set to 10^{-2} mm $= 10$ µm. It was indeed considered that experimentally ensuring the local geometry at this scale was already a great performance for adhesive bonding. It is worth noticing that the stresses computed at point A are related to both λ and $\underline{\underline{F}}$ defined in equation Eq 2 of the analytic analysis.

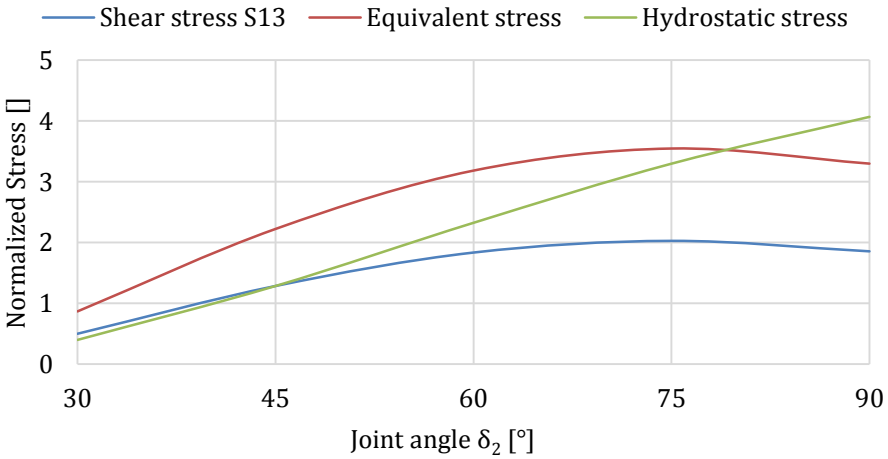


Figure 25: Evolution of the shear stress, the equivalent stress and the hydrostatic stress with the joint angle δ_2

Figure 25 shows that a larger joint angle reinforces significantly the stress level at this point A. In particular, the hydrostatic stress increases linearly with the joint angle whereas the shear and equivalent stress saturate. Therefore, one can expect early failures in the angles due to apparition of tensile stresses, which overcome the effect of the shear stresses during fatigue tests.

The evolution of the triaxiality ratio along the joint-substrate interface was also investigated and is illustrated on Figure 26:

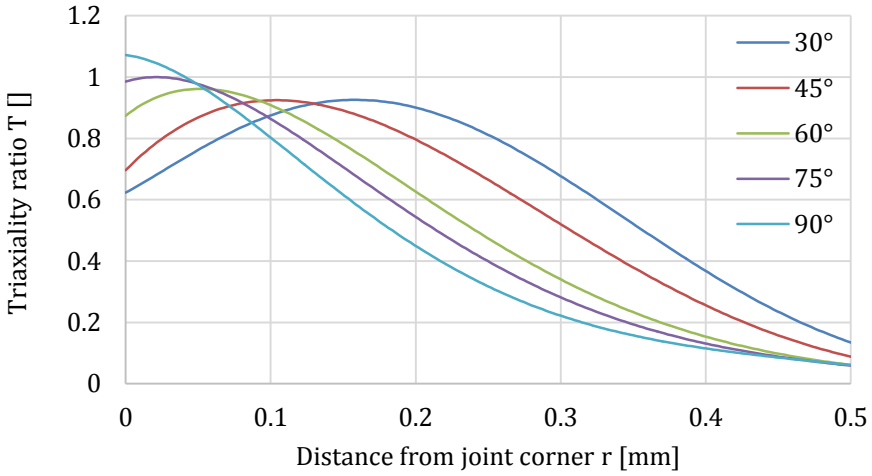


Figure 26: Triaxiality ratio evolution along joint-substrate interface

As expected, the triaxiality ratio at the corner of the joint increases when increasing the joint angle. We remark that when the angle is sharpened, the triaxiality ratio reaches a maximum asymptotic value about $T = 0.92$, but this value is then reached inside the joint, more and more far away from the corner as the angle is reduced. As fatigue cracks are known to be sensitive to the surface defect of the samples, unloading the free surface of the joint at the expense of the inside can be a good point for its behavior in fatigue.

The singularity zone in the plane (δ_1, δ_2) for different values of E_2/E_1 was explored based on [34] (see Appendix D for more details on the mathematical derivations). The results are displayed in Figure 27: the different curves represent the delimiting curve between the regular zone ($\lambda \geq 1$) and the singularity zone ($\lambda < 1$) for the mentioned stiffness ratios.

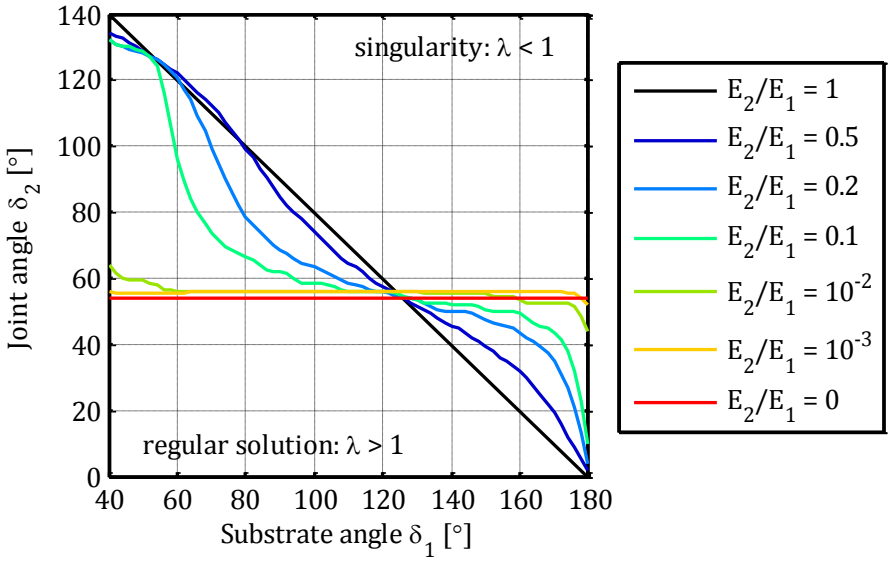


Figure 27: Map of regular and singular areas function of joint and substrate angles δ_1 and δ_2

The curve delimiting the two areas progressively evolves from $\delta_1 + \delta_2 = 180°$ for $E_2 = E_1$ (homogeneous joint-substrate assembly) to $\delta_2 = 54°$ for $E_2/E_1 = 0$ (rigid substrates). Sharpening both angles (including the substrate angle δ_1) is therefore the best way to avoid any stress singularity at joint corner.

4.3. Proposal of an hybrid set-up

For fatigue purposes, it is of interest to have a flexible test set-up with a small and simple substrate geometry. This will also facilitate delays and diminish production costs. That's why we propose a design for a tensile test machine inspired from [35] called the "modified TAST fixture" (see Figure 28). It takes advantage of the simplicity of a lap shear/TAST design and of the boundary conditions of the ARCAN that prevent the triaxiality ratio to become substantial.

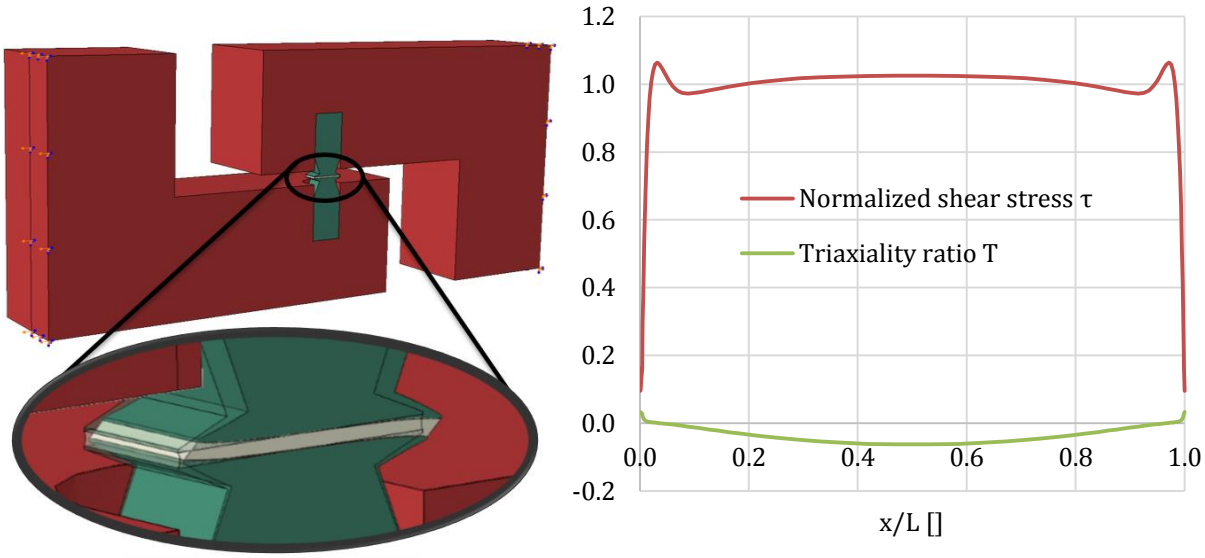


Figure 28: Geometry (left) and results (right) of the home-made "modified TAST fixture" method

The joint shape was set to a small square with side length about $5\ \mathrm{mm}$ to guarantee shear stress homogeneity. The substrates are made in aluminum to lower the material discontinuity between joint and substrate and because it is one of the most common metals but also one of the easiest to machine. A special machining was released to get substrate angles of $\delta_1 = 30°$ on both sides. The L-shaped parts are made of steel to minimize the bending phenomenon and prevent normal stresses.

5. Conclusions

The analysis of the stress states of four standard joint shear testing setups has shown that:

- The homogeneity of the shear stress is highly deteriorated in case of substrate deformation during loading. Verifying that the substrate material is much stiffer than the tested joint is actually not sufficient, one has to take into account the structural stiffness of the whole assembly to ensure substrate rigidity compared to the adhesive joint.
- Normal stress concentrations (characterized by a triaxiality ratio reasonably far away from 0) can arise even for thick and stiff substrates (cf. TAST) as soon as the macroscopic vertical movement of the substrates (due to bending for example) is not structurally prohibited by the setup design.

As a direct consequence of the two preceding remarks, the ARCAN setup is the most suitable method for a tensile testing machine whereas the napkin ring method is well adapted to a twisting machine. The numerical response of each test method compared to the non-linear constitutive law implemented (cf Figure 22) clearly shows the dramatic consequences of neglecting these two points

Independently of the chosen test method, it has been proven that the local interfacial geometry of the joint conducts to a stress singularity at the joint corner, i.e. analytically infinite values and practically higher values than damage limits. Moreover, it was shown that sharp angles for both joint and substrate

will diminish the stress concentration. This can be obtained by a special machining of the substrates. Least but not last, as joint are generally polymer based, one should introduce the effects of curing process on the joint geometry, to insure that the shapes of the joint after polymerization are in agreement with the criteria for the sharp angles.

As a final remark let us recall that this kind of singularity induces unavoidably early fatigue cracks, so therefore controlling the corner angle of the joint in relation with the stiffness ratios is decisive in the design of the joint test method.

All the preceding observations of the effect of different geometric and material parameters upon the shear state of the joint specimen in a specific test setup will lead to better fatigue tests in shear loading. The results will not be biased by early cracks due to normal stresses and/or stress singularities and will finally permit to get a reliable value of the fatigue limit of the material in pure shear.

Appendix:

A. Expressions of hydrostatic and equivalent stresses σ_p and σ_{eq}

The exhaustive expressions for both σ_h and σ_{eq} in the case of a classical 3D-analysis read

$$\sigma_p = \frac{1}{3}\mathrm{tr}\left(\underline{\underline{\sigma}}\right) = \frac{1}{3}(\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33})$$

$$\sigma_{eq} = \sqrt{\frac{3}{2}\left(\underline{\underline{\sigma}} - \sigma_h\underline{\underline{I}}\right) : \left(\underline{\underline{\sigma}} - \sigma_h\underline{\underline{I}}\right)} = \frac{\sqrt{(\sigma_{11}-\sigma_{22})^2 + (\sigma_{22}-\sigma_{33})^2 + (\sigma_{33}-\sigma_{11})^2 + 6({\sigma_{12}}^2 + {\sigma_{23}}^2 + {\sigma_{13}}^2)}}{\sqrt{2}}$$

For a 2D-plane strain analysis, we recall that $\sigma_{12} = \sigma_{23} = 0$ and $\sigma_{22} = \nu_i(\sigma_{11} + \sigma_{33})$ with $i = 1$ for the substrate material and $i = 2$ for the adhesive material. Hence the expressions of σ_h and σ_{eq} simplify as following:

$${\sigma_h}^{2D} = \frac{1}{3}(1 + \nu_i)(\sigma_{11} + \sigma_{33})$$

$${\sigma_{eq}}^{2D} = \frac{\sqrt{(\sigma_{11}-\sigma_{33})^2 + ((1-\nu_i)\sigma_{33} - \sigma_{11})^2 + ((1-\nu_i)\sigma_{11} - \sigma_{33})^2 + 6{\sigma_{13}}^2}}{\sqrt{2}}$$

B. Elastic analysis for viscoelastic materials

To justify the use of purely elastic numerical computations for usually viscoelastic materials, a typical relaxation test with the lap shear method was simulated with a viscoelastic behavior for the adhesive joint. The constitutive law considered was the simplest Prony's series with only one exponential decay and a long-term elastic modulus: $G_2(t) = G_2\left(1 - \alpha\exp(-t/\lambda)\right)$, with $\alpha = 0.5$ and $\lambda = 1s$ (all other

mechanical parameters are set like in part 3). The normalized simple shear stress $\tau_n(x, z = h/2)$ repartition within joint length is plotted on Figure 29 for time points approximately equally distributed on a logarithmic scale. The graph obtained with a purely elastic constitutive law (corresponding in fact with the asymptotic joint response) is then superimposed.

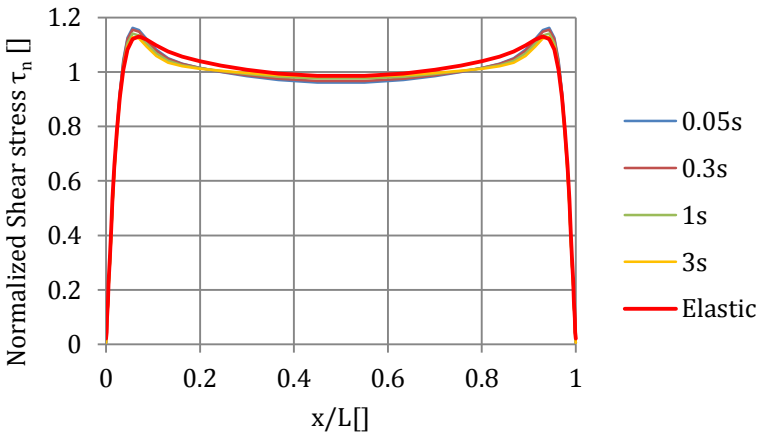


Figure 29: Shear stress repartition at different time points during a relaxation test and for an elastic response

All the plots look clearly similar, hence the hypothesis of separation of space and time variables: $\underline{\sigma}_{visco}(x, z, t) = \underline{\sigma}_{elastic}(x, z) \times f(t)$. The same verification was besides done for a cyclic solicitation by considering the stress repartition at different time points of the asymptotic cyclic response.

C. Influence of thickness

The influence of joint thickness has also been briefly investigated. To this end, we compare the lap shear shear stress repartition as in Appendix A for three different joint lengths L and thicknesses h, all material data being the same as presented in section 3 (in particular linear elastic):

- $L = 10$ mm, $h = 1$ mm $(h/L = 0.1)$
- $L = 30$ mm, $h = 1$ mm $(h/L = 0.033)$
- $L = 30$ mm, $h = 3$ mm $(h/L = 0.1)$

Hence comparing configurations 1 and 3 will give how L/h-dependent the problem is, whereas the comparison of configurations 2 and 3 will give the h dependence of the problem.

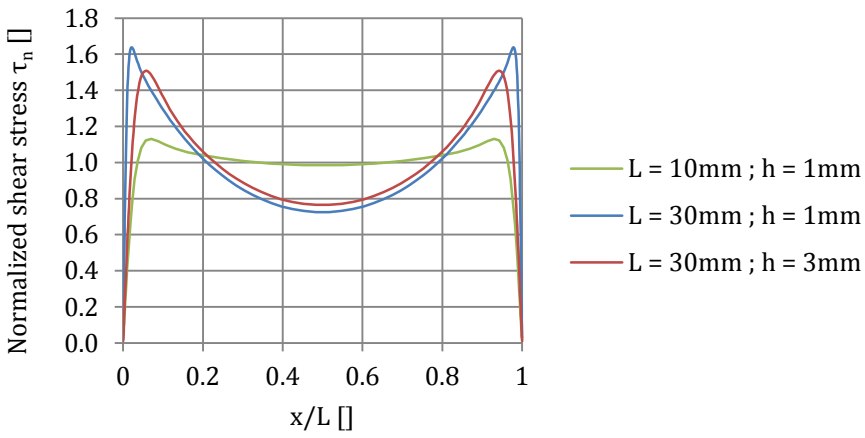


Figure 30: Shear stress repartition in lap shear joint for different h/L ratios

Curve 2 (blue) and 3 (red) on Figure 30 are much closer to each other than curve 1 (green) and 3 (red), indicating that the problem is rather thickness-independent than L/h-dependent.

D. Computation of the eigenvalue α for a bi-material wedge under 2D plane strain assumptions

Let us consider a bi-material wedge defined in terms of Lamé coefficients (λ, μ) or engineering constants (E, ν) by:

$$(\lambda,\mu) = \begin{cases} (\lambda_1,\mu_1) \text{ for } 0 < \theta < \phi_1 \\ (\lambda_2,\mu_2) \text{ for } \phi_1 < \theta < \phi_1 + \phi_2 \end{cases} \quad \Big| \quad (E,\nu) = \begin{cases} (E_1,\nu_1) \text{ for } 0 < \theta < \phi_1 \\ (E_2,\nu_2) \text{ for } \phi_1 < \theta < \phi_1 + \phi_2 \end{cases} \qquad \textbf{Eq 3}$$

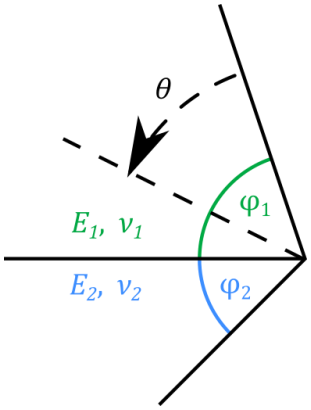


Figure 31: Bi-material wedge geometrical configuration

We look for a displacement vector of the form $\underline{u}(r,\theta) = r^{\alpha} \cdot \underline{U}(\theta) = r^{\alpha} \cdot \begin{pmatrix} U_r(\theta) \\ U_\theta(\theta) \end{pmatrix}$ in polar coordinates.

Considering a test function of the form $\underline{v}(r,\theta) = f(r) \cdot \underline{V}(\theta) = f(r) \cdot \begin{pmatrix} V_r(\theta) \\ V_\theta(\theta) \end{pmatrix}$, the problem is actually the balance of the forces in variational form: find the eigenvalue α such that for all $\underline{v}$,

$$\int_{r=0}^{\infty}\int_{\theta=0}^{\phi_1+\phi_2}\left(\underline{\underline{\varepsilon}}\left(\underline{u}(r,\theta)\right) : \underline{\underline{\underline{\underline{\boldsymbol{C}}}}}(\theta) : \underline{\underline{\varepsilon}}\left(\underline{v}(r,\theta)\right)\right) r\mathrm{d}r\mathrm{d}\theta = 0$$

This burns down to the eigenvalue problem only when the displacement field $\underline{u}$ has the given form, and leads to a generalization of the Williams wedge problem mentioned in subsection 4.2.

Taking into account that $\int_0^{\infty} r^{\alpha} f'(r)\mathrm{d}r = -\alpha\int_0^{\infty} r^{\alpha-1} f(r)\mathrm{d}r$ (the boundary term vanishes at infinity when $f \in \mathcal{D}(0,+\infty)$), we finally get

$$\left(\int_{r=0}^{\infty} r^{\alpha-1} f(r)\mathrm{d}r\right)\left(-\alpha^2 b_2\left(\underline{U},\underline{V}\right) + \alpha b_1\left(\underline{U},\underline{V}\right) + b_0\left(\underline{U},\underline{V}\right)\right) = 0$$

with the following expressions for the b_k:

$$\begin{cases} b_2\left(\underline{U},\underline{V}\right) = \int_{\theta=0}^{\phi_1+\phi_2} \left[(\lambda+2\mu)U_r V_r + \mu U_\theta V_\theta\right]\mathrm{d}\theta \\ b_1\left(\underline{U},\underline{V}\right) = \int_{\theta=0}^{\phi_1+\phi_2} \left[\mu(-U_r{}'V_\theta + U_\theta V_r{}') + \lambda(-U_\theta{}'V_r + U_r V_\theta{}')\right]\mathrm{d}\theta \\ b_0\left(\underline{U},\underline{V}\right) = \int_{\theta=0}^{\phi_1+\phi_2} \left[\mu(U_\theta V_\theta - U_r{}'V_\theta - U_\theta V_\theta{}' + U_r{}'V_r{}') + (\lambda+2\mu)(U_r V_r + U_\theta{}'V_r + U_r V_\theta{}' + U_\theta{}'V_\theta{}')\right]\mathrm{d}\theta \end{cases}$$

We recall that λ and μ as well as $\underline{U}$ and $\underline{V}$ are function of θ (cf.equation Eq 3).

The numerical resolution is based on a discretization of the space $\mathcal{H}^1(0,\phi_1+\phi_2)$: the segment $[0\,;\,\phi_1+\phi_2]$ is divided into $N-1$ sub-segments (providing N nodes). We shape functions $w_i$are piecewise-linear and vanishes at each node except node i where it equals 1. We build then the 2D basis function in polar coordinates $\underline{w}_{2i-1} = \begin{pmatrix} w_i \\ 0 \end{pmatrix}$ and $\underline{w}_{2i} = \begin{pmatrix} 0 \\ w_i \end{pmatrix}$.

The next step is to compute the B_k matrix:

$$\forall i,j \in [0\,;2N]\,, B_k(i,j) = b_k\left(\underline{w}_i,\underline{w}_j\right), \quad (k = 2,1,0)$$

And finally find the smallest eigenvalue a such that $\mathrm{Det}(A(\alpha)) = 0$ with $A(\alpha) = -\alpha^2 B_2 + \alpha B_1 + B_0$.

The Matlab code is available upon request. This method can also be generalized to anisotropic materials and therefore applied to composite material. In this case, one would take care of the computation of the energy integral in the variational form as the expression of the stiffness tensor $\underline{\underline{\underline{\underline{\boldsymbol{C}}}}}$ can be much more

complex and maybe more simple to manipulate in a Cartesian basis. The reader is referred to [34] for further information on the method.

L'étude présentée ici sous sa forme d'article conduit à proposer deux géométries différentes :

- la première est une géométrie hybride reprenant les avantages du TAST et de l'ARCAN, utilisable avec une machine de test en traction. Cette géométrie permet uniquement d'imposer une contrainte de cisaillement dans le joint, mais pas de contrainte hydrostatique. Elle a finalement a été utilisée pour les essais de fatigue des joints adhésifs.
- la deuxième correspond au napkin ring, utilisable avec une machine de test en torsion. Cette géométrie permet, sous réserve que la machine de torsion puisse également appliquer un effort axial, de charger le joint aussi bien en cisaillement qu'en traction/compression hydrostatique. Cette géométrie sera utilisée dans cette étude pour les essais de caractérisation du comportement du joint.

La suite de ce chapitre présente, en deux sous-parties distinctes, les protocoles expérimentaux adoptés pour chacune des géométries (traction puis torsion) pour :

- l'obtention des assemblages collés ;
- les moyens de test utilisés ;
- l'interprétation des données brutes pour extraire les données matériaux.

2.2 Mise en pratique technique des géométries de traction et de torsion

2.2.1 Géométrie de traction

Le joint adhésif a une surface collée carrée de $5\ \mathrm{mm}$ de côté, et une épaisseur typique de l'ordre de $h \sim 250\ \mu\mathrm{m}$: le rapport épaisseur/longueur vaut donc $1/20$. Cette épaisseur a été volontairement prise plus grande que les épaisseurs typiques de l'application industrielle, qui sont d'un ordre de grandeur plus petites. En effet, mesurer une déformation de glissement simple γ revient à mesurer expérimentalement un déplacement $d = \gamma h$. Dans le cas particulier d'une excitation harmonique d'amplitude γh, il est raisonnable de considérer que la précision (ou encore le bruit) de la mesure de la cellule de déplacement doit être au plus de $2\gamma h/20$ pour obtenir des sinusoïdes acceptables et exploitables. Garder une épaisseur h de l'ordre de $25\ \mu\mathrm{m}$ demanderait donc un système de mesure de déplacement précis à $0.3\ \mu\mathrm{m}$ pour une déformation $\gamma = 10\ \%$. Un tel système, opérant de plus dans un four à $200°\mathrm{C}$ avec pas ou peu de luminosité, n'a pas pu être mis en place. En raison de ces contraintes matérielles, il a donc été choisi d'augmenter l'épaisseur du joint de façon à obtenir des déplacements suffisamment grands pour être mesurés proprement par la cellule de déplacement de la machine.

Les paragraphes suivants décrivent les points clés au niveau des choix de la géométrie, des matériaux et du protocole expérimental pour le test de joints adhésifs en cisaillement avec une machine de traction.

Le joint assemble deux substrats parallélépipèdes rectangles entaillés près des joints, de section identique au joint et de longueur $10\ \mathrm{mm}$. L'assemblage collé {substrats + joint} est illustré sur la partie gauche de la Figure 32 avec un zoom au niveau de l'entaille. Ces entailles, alliées aux bords latéraux concaves du joint, permettent de diminuer grandement les singularités de contraintes à l'extrémité de l'interface joint-substrat. Le matériau utilisé pour les substrats est l'aluminium, de nuance A2618 : le module d'Young de l'aluminium $E_{alu} = 72\ \mathrm{GPa}$ est un des plus faibles des métaux classiques (acier, cuivre, bronze, nickel…) et permet de minimiser le contraste de rigidité à l'interface joint-substrat, également responsable des singularités de contraintes (cf étude de la partie 2.1). Néanmoins avec cette valeur l'inégalité $E_{alu}/E_{joint} \gg 1$ est toujours vraie, quel que soit le polymère utilisé. La nuance 2618 a été choisie pour sa bonne tenue en température jusqu'à au moins $250°\mathrm{C}$. Ces substrats sont été usinés avec une découpe au fil par électroérosion, pour pouvoir garantir les dimensions des détails, en particulier au niveau des entailles.

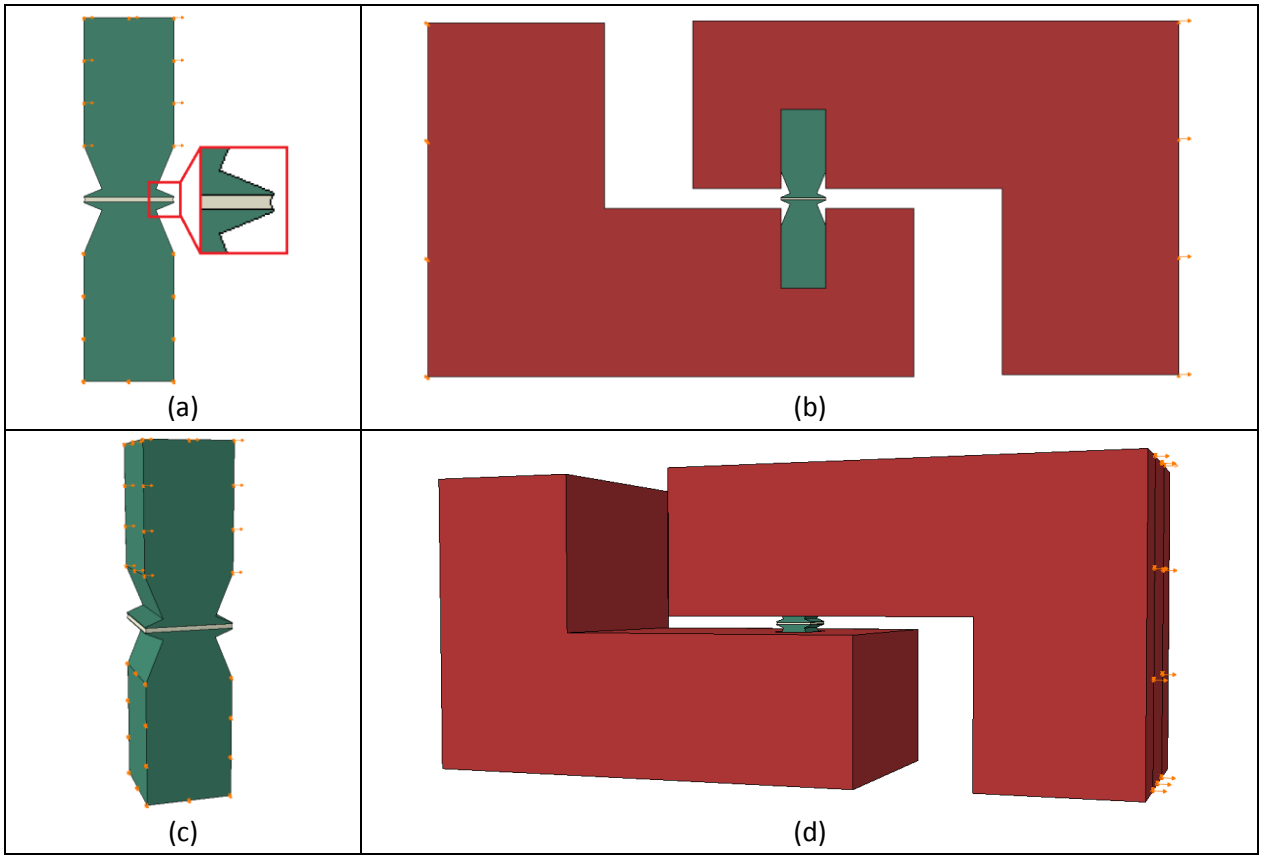


Figure 32 : Vues CAO en 2D (a-b) et 3D (c-d) de l'assemblage collé (a-c) et le set-up de test complet comprenant les mors-adaptateurs en rouge (b-d)

L'état de surface obtenu sur la surface destinée à être collée a une rugosité moyenne assez importante : $R_a \sim 4\ \mu\mathrm{m}$. Cette rugosité est principalement due aux étincelles entre le fil et la pièce à usiner par électroérosion qui forment de petits cratères pendant l'usinage. Or les surfaces de collage des composants électroniques dans le cadre de l'application industrielle (appelées « pads ») sont obtenues

par sérigraphie, procédé aboutissant à des rugosités moyennes souvent en dessous du micron $R_a < 1$ µm., c'est-à-dire bien plus faibles que l'électroérosion. La surface du substrat à coller a donc ensuite été polie avec du papier à grain 2000 pour obtenir une rugosité compatible avec les pads des substrats des applications électroniques de Schlumberger. Le changement de rugosité est illustré Figure 33 :

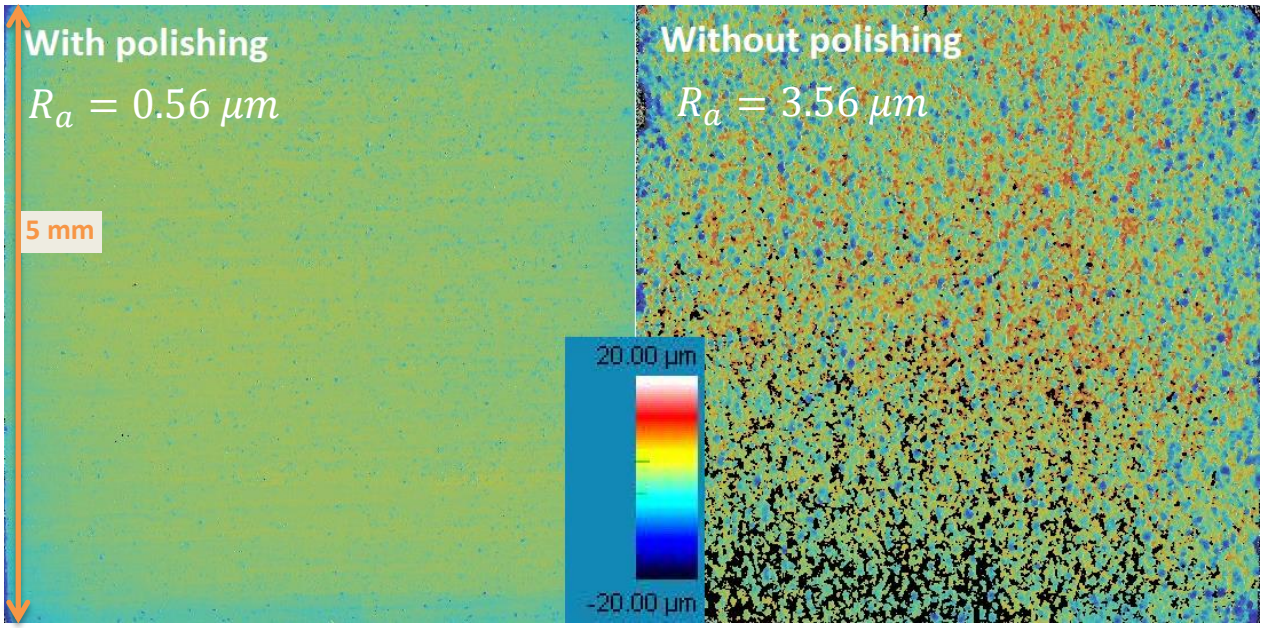


Figure 33 : Vu au profilomètre des surfaces brute (droite) et polie (gauche) des substrats à coller. L'échelle de couleur représentant l'altitude mesurée par l'instrument est identique pour les deux images.

D'autre part, toujours dans l'objectif de se rapprocher de l'application industrielle, les substrats ont été plaqués avec une couche de nickel-phosphore Ni(P) de 7 à 10 µm déposée chimiquement, puis avec une couche d'or fin (0,1 µm) déposée électrolytiquement. Ces finitions sont traditionnellement utilisées par l'industrie électronique dans le cadre des brasures pour les raisons suivantes :

- La couche d'or permet d'éviter l'oxydation de la finition avant l'étape de brasage, et permet un bon mouillage de la brasure lors du dépôt de la pâte à braser encore liquide et/ou du brasage proprement dit.
- La couche de nickel-phosphore, nettement plus épaisse que celle d'or, joue le rôle de barrière de diffusion dans le substrat des composants intermétalliques créés à l'interface entre le substrat et la brasure lors de l'opération de brasage.

Ces dépôts ont été réalisés par une entreprise extérieure, et sont illustrés sur la Figure 34 :

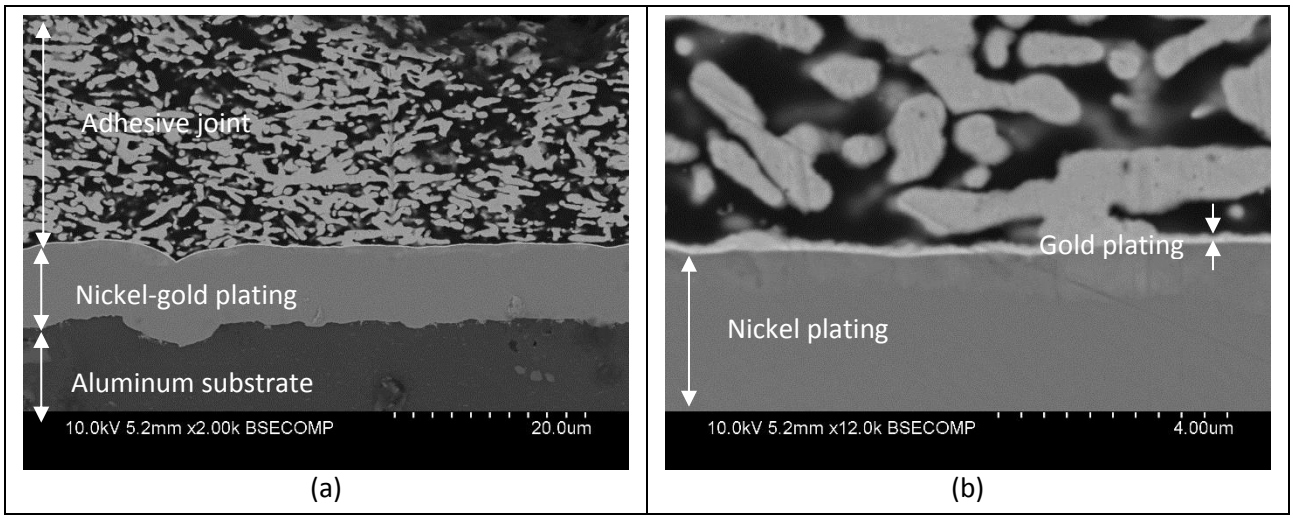


Figure 34 : Illustration du plaquage nickel-or sur les subtrats des assemblage collés (l'image (b) est un zoom de l'image (a) montrant la finesse du dépôt d'or)

Chaque surface à coller est préalablement nettoyée à l'isopropanol. Les deux surfaces en regard sont encollées puis mises dans une cloche à vide pendant 1 heure afin d'évaporer un maximum de solvant. La perte de masse de la pâte polyimide non-polymérisée a été mesurée pendant cette mise sous vide et atteint une valeur asymptotique de 17 % après vingt minutes sous vide, ce qui correspond déjà à 65 % de la perte de masse après polymérisation annoncée par le fournisseur (cf Tableau 2). Cette pré-évaporation avant même l'étape de polymérisation agit sur la forme et la répartition des cavités résiduelles dans le joint polyimide. En effet, des cavités sont créées pendant la polymérisation à cause de l'évaporation du solvant. La mise sous vide permet de maintenir une taille des cavités beaucoup plus petite et une répartition dans le joint plus régulière, comme le montre la comparaison des parties (a) et (b) de la Figure 35. La dispersion dans les résultats devrait être moins élevée grâce à l'étape de mise sous vide du fait de la structure du joint plus reproductible et comparable d'un échantillon à l'autre.

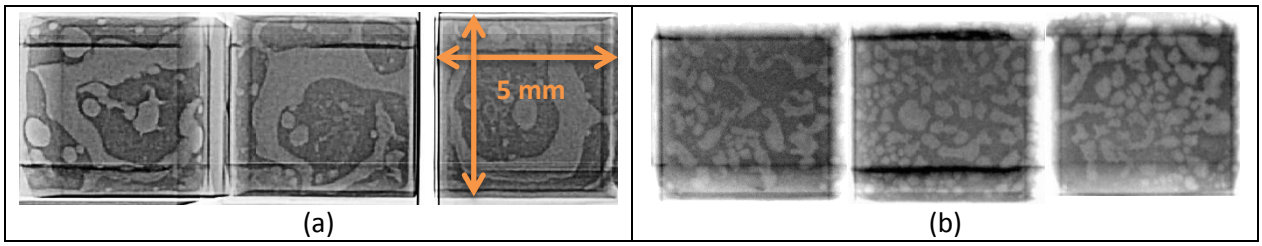


Figure 35 : Inspection aux rayons X de la forme des cavités pour 3 joints polyimide : sans (a) et avec (b) étape préalable de mise sous vide des surfaces encollées

Il faut cependant noter que, avec ou sans étape de mise sous vide, la surface totale des cavités a été évaluée aux alentours de 50 %. Seules la forme et la répartition des cavités changent, et non la surface effective de colle pouvant transmettre la contrainte. A titre d'illustration, la Figure 36 montre l'identification du rayon moyen des cavités d'un joint pavé polyimide effectuée à l'aide du logiciel de traitement d'image Fiji : la partie (a) montre la régression des meilleures ellipses effectuée par le logiciel sur un cliché aux rayons X d'un échantillon représentatif, tandis que la partie (b) présente l'histogramme du rayon moyen des cavités identifiées. Le rayon moyen ayant été défini comme la moyenne géométrique du petit et du grand demi-axe d'une ellipse, l'aire du disque équivalent est ainsi identique à

celle de l'ellipse considérée. Ce rayon moyen des cavités se situe entre $0{,}2$ et $0{,}4$ mm d'après la Figure 36 (b).

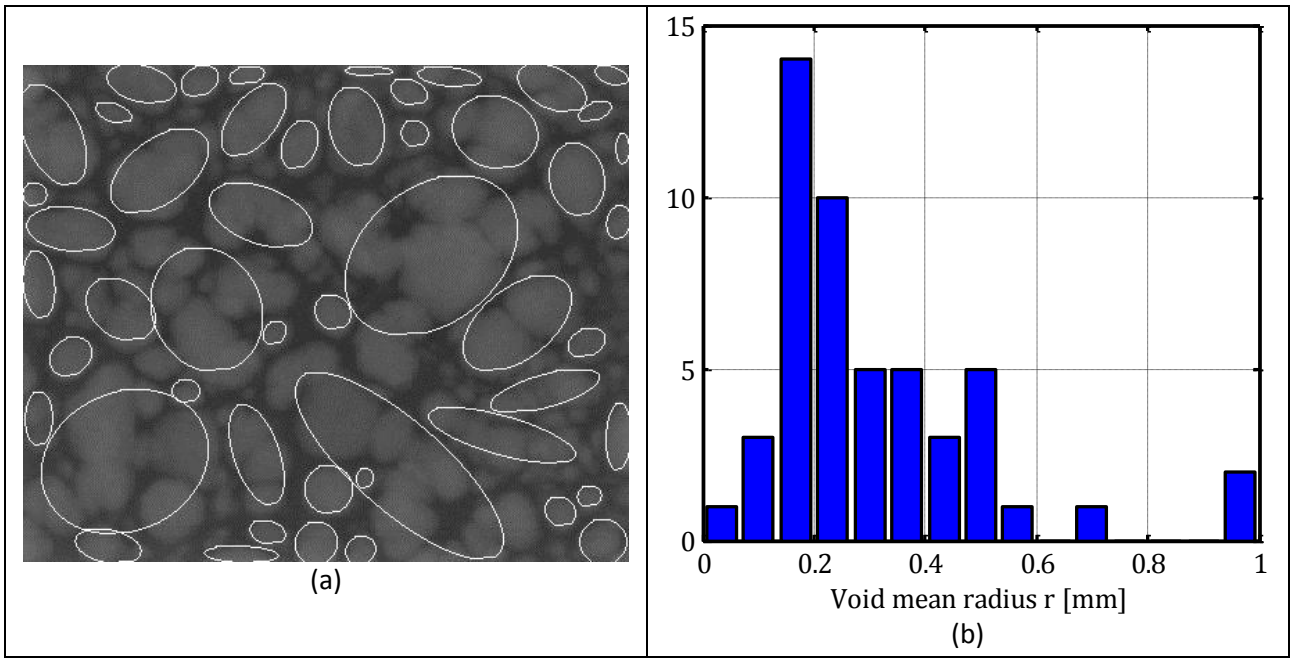


Figure 36 : (a) identification des cavités du joint polyimide par le logiciel Fiji ; (b) histogramme du rayon moyen des cavités

La pâte silicone n'a pas montré de perte de masse particulière après la mise sous vide, en revanche certaines bulles d'air qui restaient lors de la dépose de la pâte sur le substrat disparaissent souvent après cette mise sous vide, ce qui illustre l'utilité de cette étape du processus expérimental y compris pour la colle silicone qui ne contient pourtant pas de solvant.

Un outillage spécifique a été utilisé afin de guider les deux substrats en regard au moment de l'approche, et de les tenir alignés avec un espacement contrôlé durant la polymérisation qui a lieu dans une étuve ventilée suivant un profil de cuisson confidentiel. Les bourrelets de colle s'échappant par les surfaces latérales du joint sont enlevés avec un coton tige à embout mousse. Cette étape permet également d'assurer la forme concave des surfaces latérales du joint nécessaire pour s'affranchir des singularités de contraintes. L'outillage a été conçu de manière à assembler puis cuire ensemble 10 assemblages en même temps. La Figure 37 montre cet outillage avec quatre assemblages à l'intérieur.

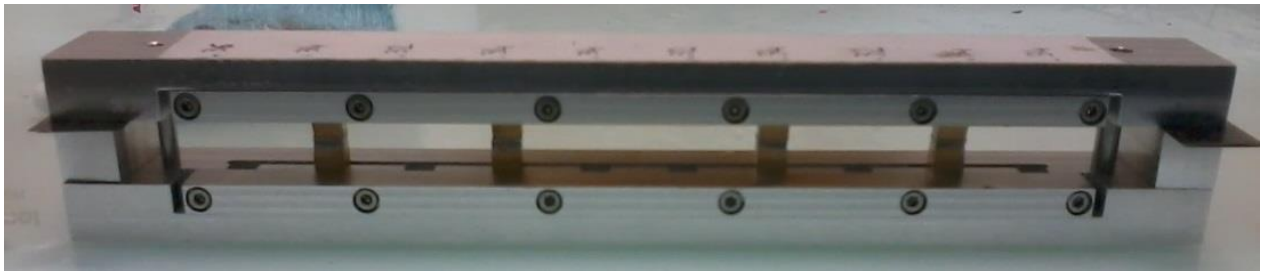


Figure 37 : Outillage utilisé pour la production en série de joints adhésifs

Les pièces en forme de « L » illustrées en rouge Figure 32, appelées « mors adaptateurs » dans la suite, sont fabriquées en acier avec une épaisseur volontairement surdimensionnée pour une rigidité maximale. Les phénomènes de flexion des substrats habituellement constatés avec les géométries de tests de joints adhésifs en cisaillement avec machine de traction sont ainsi minimisés. Un trou dans la longue jambe du « L » permet de venir insérer un des substrats. Une vis-pointeau vient ensuite verrouiller sa position et supprimer le jeu nécessaire à l'enfoncement du substrat dans le trou. Ce jeu, s'il n'est pas supprimé par cette vis, provoque des phénomènes de vibrations parasites d'amplitude non contrôlable lors d'essais cycliques alternés. L'extrémité de ces mors adaptateurs est conçue pour s'ajuster aux mors standards plan-plan fournis avec la machine de traction.

La machine de traction utilisée avec cette géométrie est une BOSE 3330 series II pilotable en force ou déplacement illustrée en Figure 38, équipée :

- d'une cellule de mesure de déplacement avec une plage de $\pm 12{,}5\ \mathrm{mm}$ et une précision estimée à $\pm 0{,}2\ \mu\mathrm{m}$;
- d'une cellule de force avec une plage de $\pm 750\ \mathrm{N}$ et une précision estimée à $\pm 0{,}5\ \mathrm{N}$;
- d'un four chauffant jusqu'à $350°\mathrm{C}$ asservi à un thermocouple pouvant être placé au choix de l'expérimentateur, le contrôle de la température varie dans une plage de $\pm 5°\mathrm{C}$.

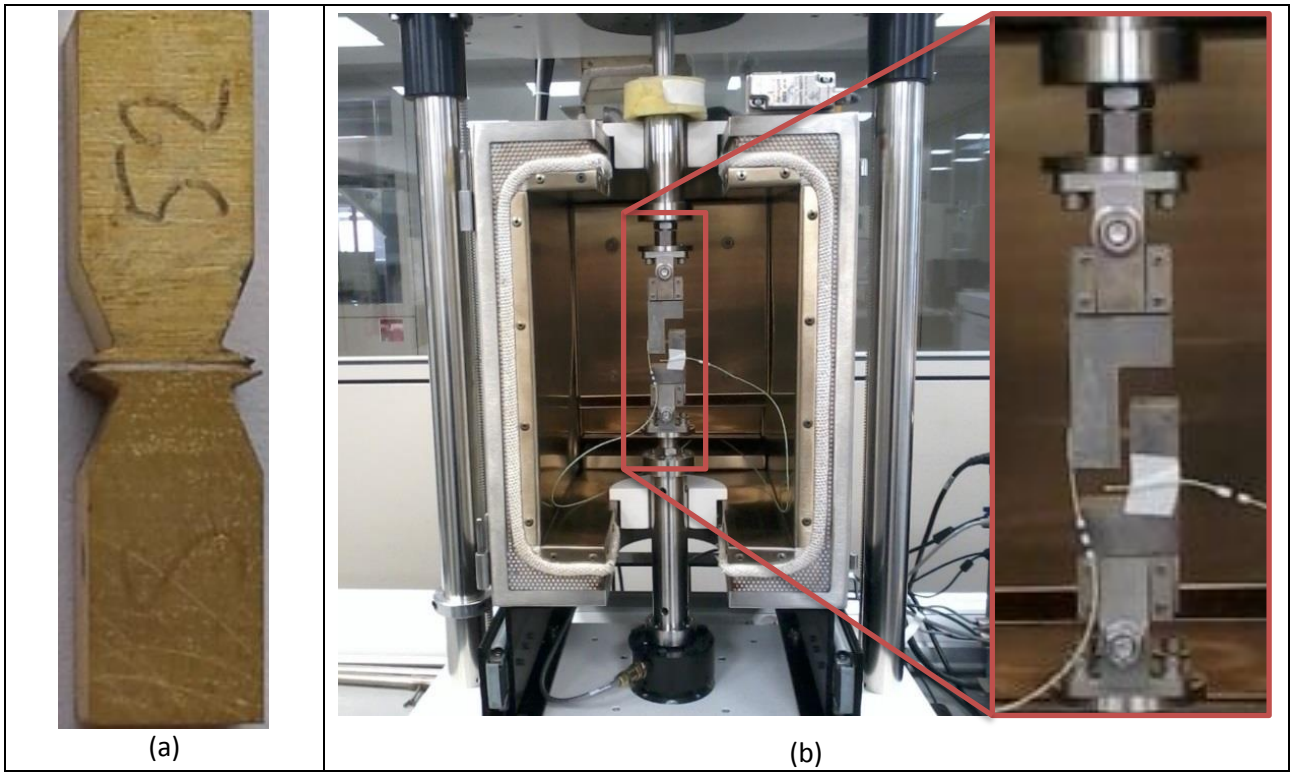


Figure 38 : Vues d'un assemblage collé (a), et du set-up complet dans la machine de traction et son enceinte thermique ouverte avec zoom sur la partie entre les mors machine (b)

Etant donné l'épaisseur des joints choisie, les déplacements à mesurer lors des tests cycliques seront de l'ordre du micron à quelques dizaines de microns. Le système retenu pour la mesure des déplacement est donc uniquement le déplacement traverse donné par la machine, précis à $\pm 0{,}2\ \mu\mathrm{m}$. En effet, un

système d'extensomètre ou des jauges ne sont pas aussi précis. Un dispositif de corrélation d'image n'a pu être mis en place pour des raisons purement matérielles. Ce déplacement doit être corrigé par la souplesse de la machine $S_{machine}$ pour obtenir le déplacement au niveau des mors adaptateurs. Pour cette correction, il est considéré un assemblage série de deux éléments linéaires représentant l'ensemble assemblage collé + mors adaptateurs et la machine. Le ressort de la machine est considéré linéaire vis-à-vis de la force appliquée F (la souplesse est constante), la formule suivante est donc obtenue pour la correction du déplacement traverse en vue d'obtenir le déplacement des mors :

$$d_{mors} = d_{traverse} - S_{machine} \times F$$

La souplesse de la machine est déterminée expérimentalement en traction-compression avec comme échantillon une plaque d'acier de longueur minimum et de section la plus grande possible. La souplesse mesurée est donc la somme de la souplesse de la machine et de celle de la plaque d'acier, calculée inférieure à 10^{-5} µm/N, d'où

$$S_{machine} = S_{mesurée} - S_{plaque\ acier} = 0{,}60 - 10^{-5}$$

$$S_{machine} = 0{,}60\ \mu\text{m/N}$$

Le déplacement relatif des deux interfaces du joint ainsi que la rigidité du joint sont déduits du déplacement des mors par résolution du problème inverse. Des abaques pour différentes épaisseurs de joint sont obtenus par calculs numériques élastiques linéaires avec le logiciel Abaqus pour remonter aux grandeurs d'intérêt du joint (déplacement des interfaces, déformation et contrainte à cœur du joint, et module de cisaillement) à partir de la mesure du déplacement des mors d_{mors} et de la force mesurée F. La Figure 39 montre par exemple quatre abaques différents (pour quatre épaisseurs de joint différentes) permettant de déduire le module de cisaillement du joint à partir de la mesure de raideur structurelle mesurée F/d_{mors} par les capteurs machine.

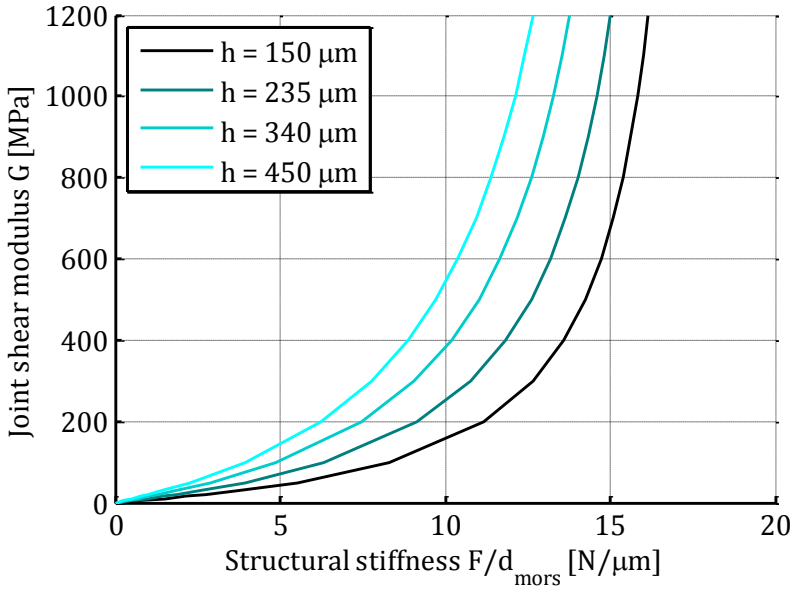


Figure 39 : Abaques du module de cisaillement du joint G en fonction de la raideur F/d_{mors}, calculées numériquement avec Abaqus® pour quatre épaisseurs de joint différentes

Dans le cas d'un comportement du joint non linéaire, cette méthode peut être utilisée pour récupérer les modules sécants du joint à chaque instant et ainsi obtenir la courbe finale contrainte-déformation du matériau. Dans le cas d'un comportement viscoélastique, cette méthode permet d'obtenir les amplitudes du module complexe. Le déphasage entre contrainte et déformation dans le joint est déduit du déphasage entre les signaux bruts de la force F et du déplacement $d_{machine}$ ou d_{mors}.

2.2.2 Géométrie de torsion

Le joint adhésif a une surface collée de forme annulaire de diamètres intérieur $D_{int} = 10\ \text{mm}$ et extérieur $D_{ext} = 12\ \text{mm}$, donc de rayon moyen $R = (D_{ext} + D_{int})/2 = 5.5\ \text{mm}$ et de largeur $e = (D_{ext} - D_{int})/2 = 1\ \text{mm}$ correspondant à une surface collée de $S = 2\pi Re = 35\ \text{mm}^2$. L'épaisseur typique est de l'ordre de $h \sim 250\ \mu\text{m}$, pour les mêmes raisons de mesure de déplacement (déflection angulaire dans le cas de la torsion) devant avoir un rapport signal sur bruit raisonnable.

Les substrats annulaires sont réalisés en aluminium A2618 et obtenus par usinage sur tour étant donné leur forme de révolution. Leur longueur axiale est de $20\ \text{mm}$. Quatre trous sont ensuite percés radialement tous les $90°$ dans les substrats, permettant de les visser à des tiges adaptatrices en acier qui possèdent quatre trous taraudés aux positions correspondantes. La terminaison de ces tiges est usinée de manière à s'adapter aux mors rectangulaires du rhéomètre. Ces tiges adaptatrices jouent en fait le même rôle que les mors adaptateurs dessinés pour la machine de traction. L'ensemble est illustré Figure 40 :

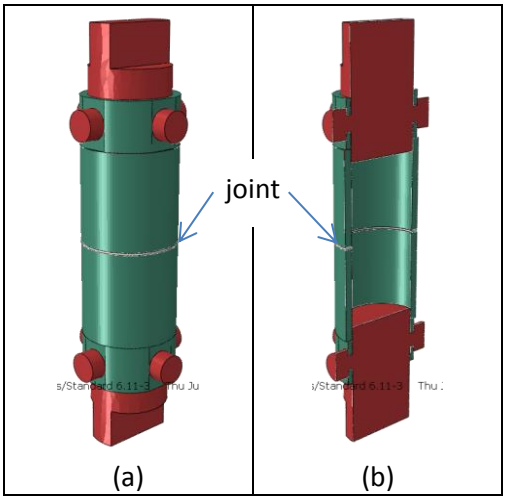


Figure 40 : Vues CAO pleine (a) et en coupe (b) du set-up de test avec l'assemblage collé et les tiges adaptatrices en acier illustrées en rouge

Les problématiques de rugosité et de plaquage des substrats avec un revêtement nickel-or sont identiques à celles de la géométrie de traction :

- Le procédé de tournage mécanique permet d'obtenir des pièces avec une rugosité assez faible qui n'ont pas besoin d'être reprises par la suite.

- Le plaquage nickel-or s'est fait dans des conditions identiques aux substrats rectangulaires de la géométrie de traction.

Les étapes du processus de collage sont également les mêmes que celles de la géométrie de traction :

- nettoyage des surfaces à l'isopropanol ;
- dépose de la colle sur les deux surfaces à coller ;
- mise sous vide des substrats encollés ;
- guidage des substrats pendant l'approche des substrats puis la polymérisation avec des tiges en téflon usinées pour obtenir un diamètre convenable (c'est-à-dire identique au diamètre intérieur des substrats après expansion thermique correspondant au palier de température le plus haut du cycle de polymérisation) ;
- retrait avec des cotons tige à embouts mousse des éventuels bourrelets de colle s'échappant des surfaces latérales lors de l'approche des deux substrats ;
- mise à l'étuve ventilée avec le profil de polymérisation correspondant.

La Figure 41 montre les cavités obtenues avec la colle polyimide après polymérisation : les cavités sont regroupées au niveau du diamètre interne du joint, là où la tige téflon retient le solvant et l'empêche de sortir lors de son évaporation. Ces images montrent l'influence décisive du confinement du joint lors de sa polymérisation sur les éventuelles cavités présentes. En particulier, le diamètre extérieur qui reste libre pendant tout le processus de polymérisation fait office de bonne surface d'échange et ne présente par conséquent aucune cavité.

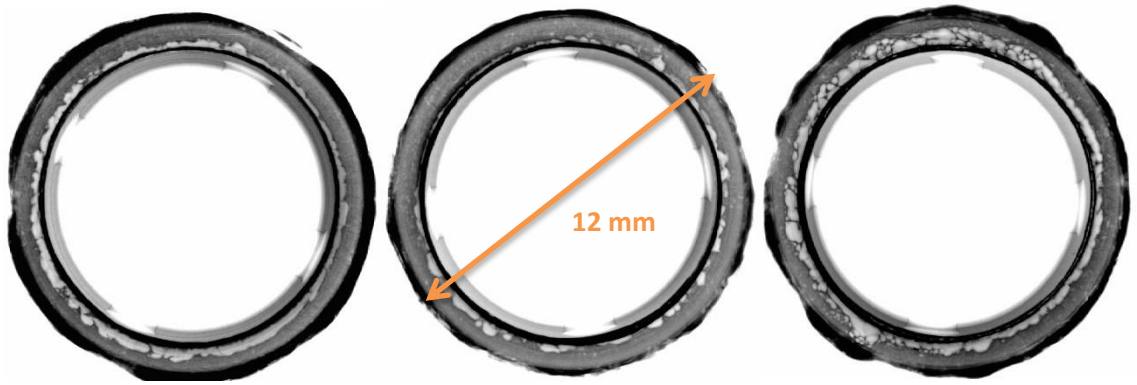
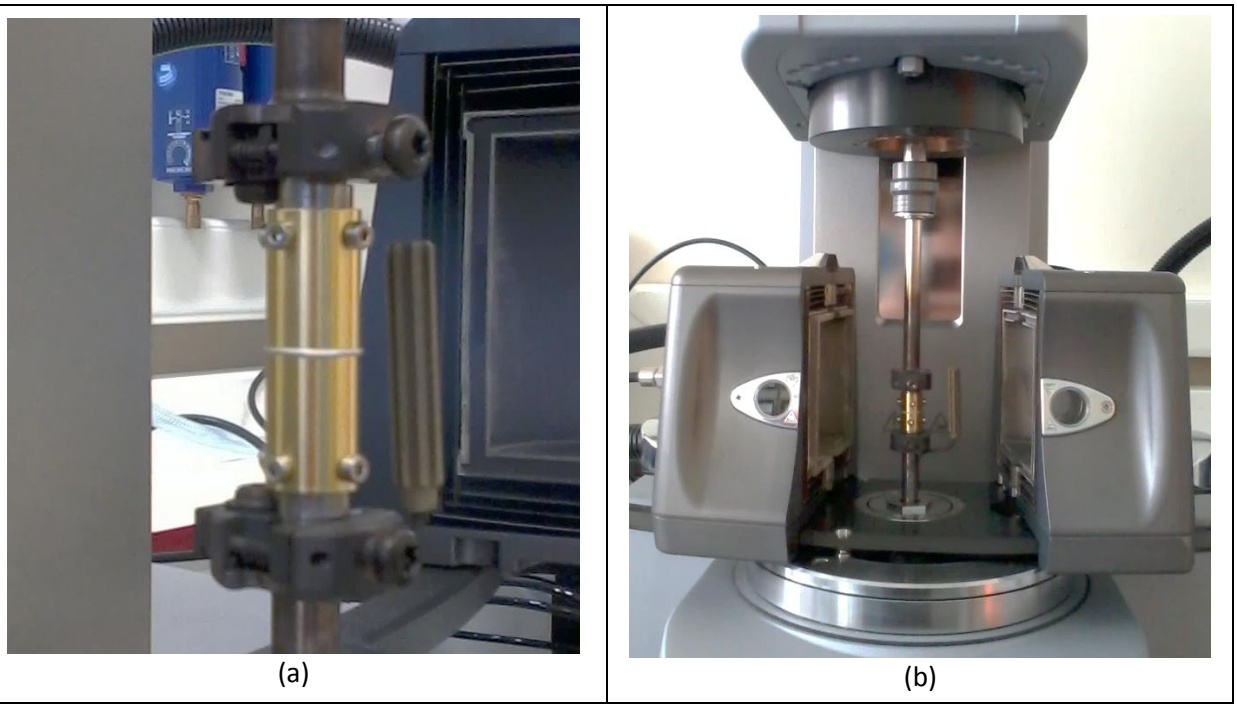


Figure 41 : Vues aux rayons X de 3 joints polyimide annulaires : les cavités sont regroupées au niveau du diamètre interne

La machine de torsion utilisée avec cette géométrie est le rhéomètre AntoPaar MCR502 pilotable en couple ou angle de rotation illustré Figure 42, équipé :

- d'une cellule de mesure de déflection angulaire (angle de rotation du moteur) sans limite de plage et une précision estimée à $\pm 0{,}5\ \mu\mathrm{rad}$;
- d'une cellule de couple avec une plage de $230\ \mathrm{mN.m}$ et une précision estimée à $\pm 0{,}1\ \mu\mathrm{N.m}$;
- d'une enceinte thermique avec une plage annoncée entre $[-150°\mathrm{C}\,;600°\mathrm{C}]$ asservi à un thermocouple placé derrière l'échantillon vis-à-vis de l'entrée du flux d'air chaud ou froid, le contrôle de la température variant dans une plage de $\pm 0{,}1°\mathrm{C}$.



(a) (b)

Figure 42 : zoom sur l'assemblage collé (a) et set-up expérimental de torsion complet avec rhéomètre et enceinte thermique ouverte (b)

Les problématiques de mesure de la variable cinématique (la rotation ou la déformation de cisaillement) sont similaires à celles de la géométrie de traction : les déformations mises en jeu lors d'essais de caractérisation viscoélastique linéaire sont très petites pour ces joints (de l'ordre de $\gamma \sim 10^{-4}$), correspondant à des déflections angulaires de l'ordre de la dizaine de microradians. Ces mesures doivent pouvoir se faire avec une visibilité très réduite quand l'enceinte thermique est fermée (la Figure 42 montre les deux uniques trous d'observation, qui ne sont pas alignés avec l'échantillon), rendant une éventuelle acquisition par corrélation d'image impossible. Les hautes températures jusqu'à $200°C$ et plus rendent les jauges de mesures de déformation inopérables. Pour ces raisons, l'unique mesure cinématique retenue est la mesure de déflection angulaire au niveau du moteur par le rhéomètre. Le raisonnement pour obtenir la déflection angulaire au niveau des tiges adaptatrices α_{tiges} en fonction de celle mesurée au niveau du moteur α_{moteur} et du couple mesuré par le moteur M fait intervenir la souplesse de la machine :

$$\alpha_{tiges} = \alpha_{moteur} - S_{machine} \times M$$

Comme pour la machine de traction, la souplesse de la machine est déterminée en utilisant comme échantillon une plaque d'acier de longueur minimum et de section la plus grande possible. La souplesse de la plaque d'acier, analytiquement estimée à $0{,}25\ \mu\mathrm{rad}/(\mathrm{mN.m})$, est retranchée à la souplesse mesurée pour obtenir la souplesse machine :

$$S_{machine} = S_{mesurée} - S_{plaque\ acier} = 6{,}4 - 0{,}25$$

$$S_{machine} = 6{,}15\ \mu\mathrm{rad}/(\mathrm{mN.m})$$

Enfin, le déplacement orthoradial du joint ainsi que sa rigidité sont déduits par résolution du problème inverse. Des abaques pour différentes épaisseurs de joint sont obtenus par calculs numériques linéaires élastiques avec le logiciel Abaqus® pour remonter aux grandeurs du joint (déplacement, déformation et contrainte à cœur, module de cisaillement) à partir de la mesure de la déflection angulaire des tiges α_{tiges} obtenue et du couple mesuré M, comme illustré Figure 43 pour le module de cisaillement G.

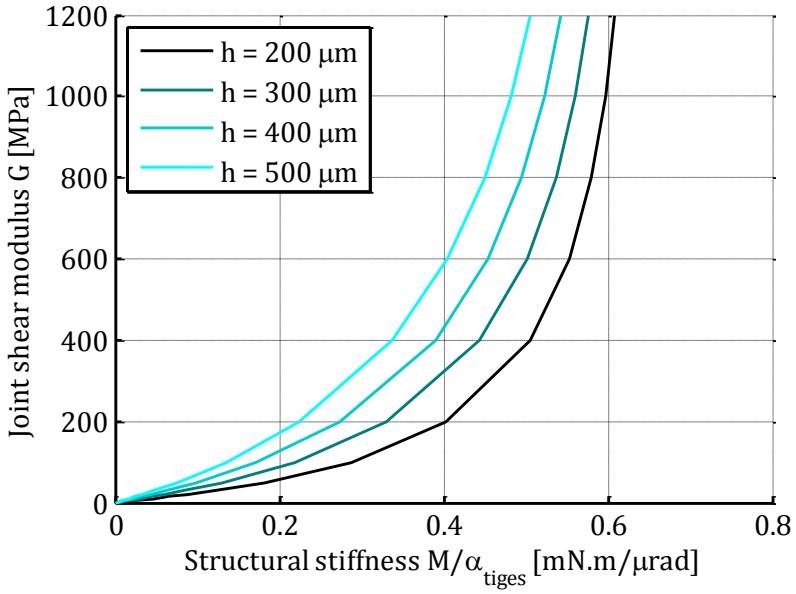


Figure 43 : Abaques du module de cisaillement du joint G en fonction de la raideur M/α_{tiges}

Le principe de récupération des données matériau en cas de comportement non-linéaire ou viscoélastique est appliqué comme pour la géométrie de torsion.

2.3 Conclusion

Ce chapitre a abordé les différentes subtilités des tests expérimentaux de joints adhésifs. En particulier, les points suivants ont été soulignés et expliqués :

- L'état de contrainte dans un joint adhésif macroscopiquement sollicité en cisaillement est loin d'un état de cisaillement pur et homogène pour les set-ups les plus simples, malgré la rigidité des substrats bien plus élevée que celle du joint lui-même. La contrainte de cisaillement présente souvent une hétérogénéité plus ou moins marquée, et des contraintes normales (en particulier la contrainte de pelage) parasites parfois supérieures à la contrainte de cisaillement peuvent apparaître, aboutissant à un état de triaxialité complexe du joint.
- Le caractère structurel d'un assemblage collé implique des points singuliers du point de vue géométrique (des coins) ou matériau (des interfaces) générant des singularités de contraintes en particulier aux coins extrémaux du joint adhésif si le design n'est pas adapté pour les éviter. Ces contraintes entraîneront un endommagement local beaucoup plus rapide que dans le reste du joint, menant à des ruptures (pour un chargement monotone comme cyclique) anticipées par

rapport aux ruptures qui auraient été obtenues avec un échantillon massique avec une répartition homogène de contrainte dans son volume.

- Les géométries spécifiques des joints adhésifs nécessitent les plus souvent des pièces adaptatives pour le montage de l'assemblage collé joint+substrats dans la machine de test. Cette remarque est d'autant plus importante dans une optique d'étude de tenue en fatigue, où les substrats sont de forme la plus simple possible pour diminuer leur coût, que le nombre d'assemblages à tester est important. L'ensemble du système constitué de l'assemblage collé et des pièces adaptatrices doit être pris en compte pour une identification quantitative fiable et robuste du comportement.

Dans le cadre de cette thèse, deux méthodes expérimentales ont été retenues :

- une géométrie de torsion qui sera utilisée avec un rhéomètre AntonPaar en torsion pour l'identification du comportement viscoélastique ;
- une géométrie de traction utilisée avec une machine de traction BOSE pour l'étude de la tenue en fatigue des joints adhésifs.

Pour chaque géométrie, une optimisation a été effectuée sur la base de calculs numériques pour minimiser les défauts associés aux tests en cisaillement de joints adhésifs : hétérogénéité et triaxialité des contraintes dans le plan moyen du joint, effets de bord menant à des singularités de contrainte aux interfaces du joint.

Un système de mesure de la déformation locale du joint tel que des jauges ou la corrélation d'image n'a pas pu être mis en place à cause de contraintes matérielles. Des calculs numériques des set-ups de tests complets ont donc été effectués pour différentes rigidités et épaisseurs de joint afin d'obtenir des abaques des grandeurs mécaniques d'intérêt en fonction de la réponse macroscopique mesurée par les machines force/déplacement ou couple/angle. A cet effet, les souplesses des machines de test elles-mêmes ont été mesurées pour des identifications de comportement les plus justes possibles.

Chapitre 3 Caractérisation macroscopique expérimentale du comportement viscoélastique

Ce chapitre présente les résultats obtenus lors des expériences de caractérisation du comportement viscoélastique des joints silicone et polyimide. Ces expériences ont été réalisées avec la géométrie de torsion et le rhéomètre AntonPaar MCR502 présentés dans le paragraphe 2.2.2 précédent. Une première partie bibliographique regroupe les principaux modèles existants dans la littérature, en détaillant l'approche temporelle puis l'approche fréquentielle. Une deuxième partie présente les résultats obtenus en lien avec les lesdits modèles : des courbes maîtresses suivant les modèles de viscoélasticité linéaire unidimensionnelle standard sont d'abord identifiées, avant d'aborder des effets non-linéaires à la limite des petites déformations et l'influence de la pression hydrostatique.

3.1 Bibliographie et présentations des modèles

3.1.1 Modélisation viscoélastique linéaire temporelle

Un matériau viscoélastique est caractérisé par un comportement mécanique qui dépend du temps. Dans ce cadre, un essai de traction ou cisaillement monotone n'est pas le plus adapté car la viscosité rend la réponse du matériau à un tel test est dépendante de la vitesse de sollicitation. La manière la plus simple et directe dans l'approche temporelle pour mettre en évidence le caractère viscoélastique d'un matériau est d'effectuer [36] :

- ***un test de relaxation*** : mesure de la réponse en contrainte $\tau(t)$ lors d'une sollicitation de déformation constante γ_0 ;
- ***un test de fluage*** : mesure de la réponse en déformation $\gamma(t)$ lors d'une sollicitation de contrainte constante τ_0.

Ces deux tests permettent, dans le cadre de la viscoélasticité linéaire, de définir respectivement les modules de relaxation $G(t) = \tau(t)/\gamma_0$ et de fluage $J(t) = \gamma(t)/\tau_0$.

L'expression de la réponse du matériau à une sollicitation de forme quelconque peut être déduite en superposant toutes les réponses élémentaires, ce qui revient dans le cas d'un matériau non vieillissant à un produit de convolution tel que [37] :

$$\tau(t) = \int_0^t G(t-\lambda)\dot{\gamma}(\lambda)\mathrm{d}\lambda \quad \Big| \quad \gamma(t) = \int_0^t J(t-\lambda)\dot{\tau}(\lambda)\mathrm{d}\lambda \qquad \textbf{Eq 4}$$

Les modules de relaxation et fluage $G(t)$ et $J(t)$ ne sont pas indépendants puisque

$$\forall t, \int_0^t G(t-\lambda)J(\lambda)\mathrm{d}\lambda = \int_0^t J(t-\lambda)G(\lambda)\mathrm{d}\lambda = t \qquad \textbf{Eq 5}$$

Dans la suite, nous nous focaliserons sur le module de relaxation $G(t)$, ce dernier permettant de remonter au module de fluage $J(t)$ grâce à la relation de l'équation Eq 5.

Le modèle le plus classique utilisé en viscoélasticité linéaire pour exprimer le module de relaxation est le modèle de Maxwell généralisé [38], qui modélise phénoménologiquement le matériau par une association en parallèle d'éléments séries ressorts + amortisseurs comme illustré Figure 44 :

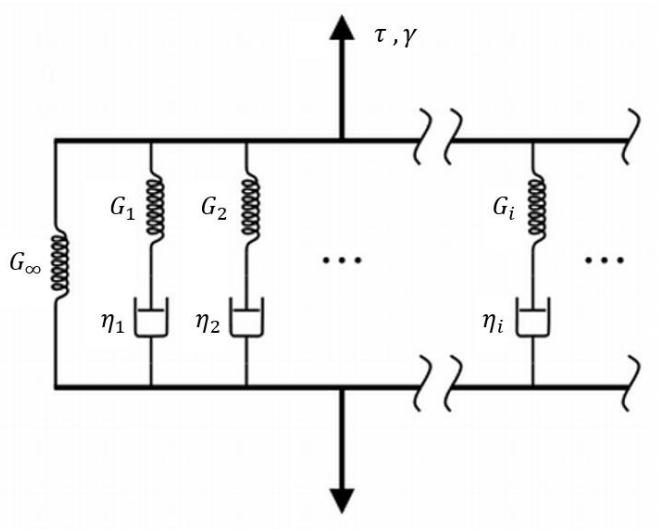


Figure 44 : Modèle phénoménologique de Maxwell généralisé

Les constantes de temps de relaxation de chaque branche sont définies comme $\lambda_i = \eta_i/G_i$. La contrainte $\tau_i(t)$ dans la branche i du modèle de Maxwell est gouvernée par l'équation

$$\frac{d\tau_i(t)}{dt} + \frac{\tau_i(t)}{\lambda_i} = G_i \frac{d\gamma(t)}{dt} \qquad \textbf{Eq 6}$$

La contribution de chaque branche à la relaxation lors de l'imposition d'une déformation constante γ_0 est donc une décroissante exponentielle, d'où l'expression finale du module :

$$G(t) = G_\infty + \sum_i G_i \mathrm{e}^{-\mathrm{t}/\lambda_i} \qquad \textbf{Eq 7}$$

G_∞ représente la réponse à long terme du matériau (il est nul pour un fluide visqueux et strictement positif pour un solide viscoélastique). Ce modèle connait un grand succès dû à sa facilité d'identification ainsi que d'implémentation dans des codes numériques en raison de son caractère discret [39]. D'autres modèles présentant des décroissances exponentielles étirées (Kohlrausch [40]) ou des lois puissances tronquées (BSW [41]) ont été proposés mais ne seront pas utilisés dans cette thèse. La Figure 45 présente la réponse du matériau à un essai de cisaillement monotone $\gamma(t) = \dot{\gamma}_0 t$ pour trois vitesses de sollicitation $\dot{\gamma}_0$ différentes dans le cadre d'un modèle de Maxwell simple :

$$G(t) = G_\infty + \Delta G e^{-t/\lambda} = G_e\left(\chi + (1-\chi)e^{-t/\lambda}\right), \text{où l'on a pris } \chi = 0{,}1 \text{ et } \lambda = 1 \text{ s} \qquad \textbf{Eq 8}$$

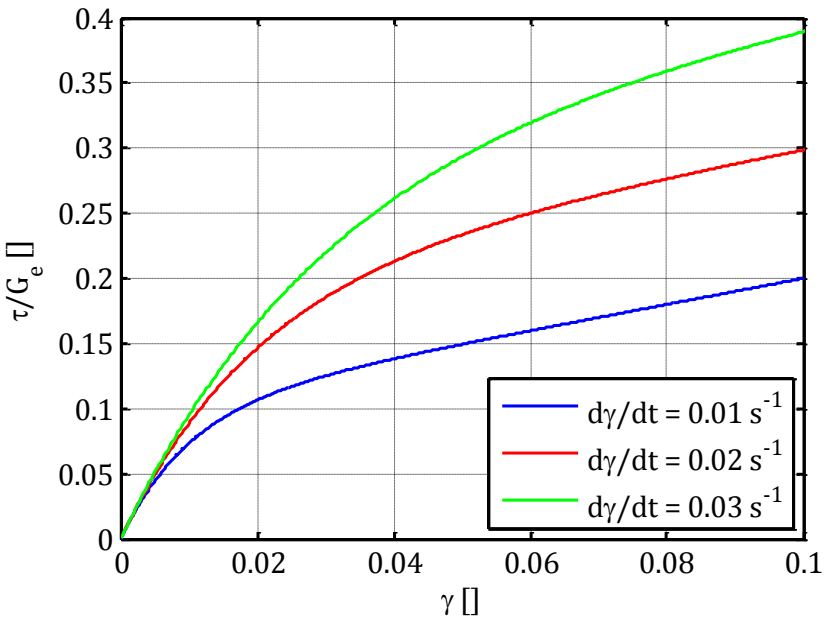


Figure 45 : Réponse du matériau viscoélastique modélisé par l'équation Eq 8 pour trois vitesses de sollicitation différentes

Une autre manière élégante d'exprimer le module de relaxation est l'utilisation du spectre des temps de relaxation $\mathcal{H}(\lambda)$ [42], par la relation :

$$G(t) = G_\infty + \int_0^\infty \mathcal{H}(\lambda) e^{-t/\lambda}\, \mathrm{d}(\ln \lambda) = G_\infty + \int_0^\infty \mathcal{H}(\lambda) e^{-t/\lambda} \frac{\mathrm{d}\lambda}{\lambda} \qquad \textbf{Eq 9}$$

Le spectre des temps de relaxation peut être continu ou bien discret. Une écriture sous forme de somme discrète de fonctions Dirac (notées δ) permet par exemple de retrouver le modèle de Maxwell précédemment présenté :

$$\mathcal{H}(\lambda) = \sum_i G_i \delta\left(1 - \frac{\lambda}{\lambda_i}\right) \Rightarrow G(t) = G_\infty + \sum_i G_i \mathrm{e}^{-\mathrm{t}/\lambda_i}$$

Il peut être utile de savoir comparer les poids G_i des spectres discrets avec les valeurs $\mathcal{H}(\lambda_i)$ des spectres continus. Comme illustré sur la Figure 46, il est considéré que la contribution de la branche i du spectre discret correspond à la contribution $\mathcal{H}(\lambda)$ du spectre continu pour $\lambda \in \left[\sqrt{\lambda_i \lambda_{i+1}}\,;\, \sqrt{\lambda_i \lambda_{i-1}}\right]$, c'est-à-dire [43] :

$$G_i \mathrm{e}^{-\mathrm{t}/\lambda_i} = \int_{\sqrt{\lambda_i \lambda_{i-1}}}^{\sqrt{\lambda_i \lambda_{i+1}}} \mathcal{H}(\lambda) e^{-t/\lambda} \frac{\mathrm{d}\lambda}{\lambda}$$

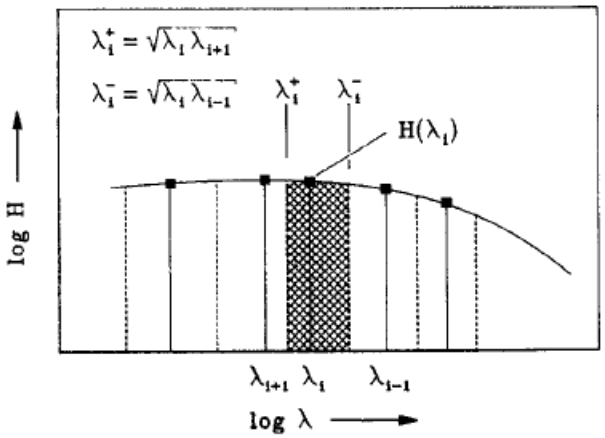


Figure 46 : Illustration de la discrétisation d'un spectre continu [43]

Pour des temps de relaxation λ_i assez proche, $\mathcal{H}(\lambda) \sim \mathcal{H}(\lambda_i)$ pour $\lambda \in \left[\sqrt{\lambda_i \lambda_{i+1}}\,;\, \sqrt{\lambda_i \lambda_{i-1}}\right]$, d'où

$$G_i = \left(\ln \sqrt{\frac{\lambda_{i-1}}{\lambda_{i+1}}}\right) \mathcal{H}(\lambda_i)$$

Dans le cas particulier de temps de relaxation régulièrement espacés $\lambda_{i+1}/\lambda_i = a$, la formule se simplifie en $G_i = (\ln a)\mathcal{H}(\lambda_i)$

3.1.2 Viscoélasticité linéaire fréquentielle

Le comportement viscoélastique d'un matériau est très souvent étudié dans la pratique du point de vue fréquentiel, par l'intermédiaire d'essais cycliques nommés DMA (Dynamic Mechanical Analysis). Lors de ces essais, une sollicitation harmonique en déformation ou contrainte est imposée et la réponse en régime stabilisé de l'autre variable est mesurée [37]. L'extraction du rapport des amplitudes des deux signaux ainsi que leur déphasage relatif donne accès :

- au module dynamique $G^*(\omega)$ (complexe) dans le cas d'une déformation harmonique imposée $\gamma(t) = \Delta\gamma_0 \sin \omega t$;
- à la souplesse dynamique $J^*(\omega)$ (complexe) dans le cas d'une contrainte harmonique imposée $\tau(t) = \Delta\tau_0 \sin \omega t$.

L'amplitude du module dynamique noté $|G^*(\omega)|$ représente le rapport de l'amplitude de contrainte sur l'amplitude de déformation $\Delta\tau/\Delta\gamma_0$, tandis que son argument noté $\delta(\omega)$ représente le déphasage entre la contrainte et la déformation. Les affirmations correspondantes pour $J^*(\omega)$ sont valables. En effet, les relations de comportement dans le domaine de Fourier deviennent simplement :

$\tau^*(\omega) = G^*(\omega)\gamma^*(\omega)$	$\gamma^*(\omega) = J^*(\omega)\tau^*(\omega)$

Les deux dernières relations, ou encore la transformée de Fourier de l'équation Eq 5, donnent que

$$G^*(\omega) \times J^*(\omega) = 1$$

Si le module de relaxation est décrit par le modèle de Maxwell, insérer la relation Eq 7 dans la loi de comportement Eq 4 dans le cas d'une déformation harmonique imposée $\gamma(t) = \gamma_0 \sin \omega t$ mène à l'expression suivante pour le module dynamique en régime stabilisé :

$$G^*(\omega) = G_\infty + \sum_i G_i \frac{j\omega\lambda_i}{1 + j\omega\lambda_i} \qquad \textbf{Eq 10}$$

Cette dernière équation prouve que l'argument du module dynamique est toujours positif ($\delta(\omega) > 0$), ce qui signifie que la contrainte est en avance sur la déformation.

Dans le cadre plus général d'un module de Maxwell décrit par le spectre des temps de relaxation $\mathcal{H}(u)$, insérer la relation Eq 9 dans Eq 4 conduit à l'équation :

$$G^*(\omega) = G_\infty + \int_0^\infty \mathcal{H}(\lambda) \frac{i\omega\lambda}{1 + i\omega\lambda} \frac{d\lambda}{\lambda} \qquad \textbf{Eq 11}$$

Les parties réelle $G'(\omega)$ et imaginaire $G''(\omega)$ du module dynamique (d'où $G^*(\omega) = G'(\omega) + iG''(\omega)$) sont traditionnellement séparées et appelées respectivement modules de stockage et de perte. Ces modules sont directement reliés respectivement à la partie de la contrainte en phase avec la déformation (donc à l'énergie stockée récupérable) et en quadrature de la déformation (donc à l'énergie dissipée). A ce titre, le rapport $(G''/G')(\omega)$ correspondant à la tangente du déphasage $\tan \delta(\omega)$ entre contrainte et déformation est appelé facteur de perte, puisqu'il est une mesure de la fraction d'énergie fournie au matériau qui est dissipée lors du cycle. Les expressions des modules de stockage et perte dans le cadre du model de Maxwell et celui du spectre des temps de relaxations sont

$$\begin{cases} G'(\omega) = G_\infty + \int_0^\infty \mathcal{H}(\lambda) \frac{(\omega\lambda)^2}{1 + (\omega\lambda)^2} \frac{d\lambda}{\lambda} = G_\infty + \sum_i G_i \frac{(\omega\lambda_i)^2}{1 + (\omega\lambda_i)^2} \\ G''(\omega) = \int_0^\infty \mathcal{H}(\lambda) \frac{\omega\lambda}{1 + (\omega\lambda)^2} \frac{d\lambda}{\lambda} = \sum_i G_i \frac{\omega\lambda_i}{1 + (\omega\lambda_i)^2} \end{cases} \qquad \textbf{Eq 12}$$

L'énergie dissipée par unité de volume W_d lors d'un cycle de sollicitation peut s'écrire :

$$W_d = \frac{1}{2} \int_0^{2\pi/\omega} \tau(t) \times \dot{\gamma}(t) \mathrm{d}t = \pi (\Delta\gamma_0)^2 G'' = \frac{\pi}{2} (\Delta\gamma_0)^2 |G^*| \sin \delta \qquad \textbf{Eq 13}$$

Il ne faut pas oublier l'existence d'un terme de nature transitoire dans la réponse en contrainte. Ce terme est de la forme $[\omega\lambda_i/(1 + (\omega\lambda_i)^2)]e^{-t/\lambda_i}$ pour chaque branche du modèle de Maxwell, et peut être considéré négligeable par rapport au terme permanent après 10 cycles effectués.

3.1.3 Equivalence temps-température et courbes maîtresses

La température reste la variable environnementale qui a le plus d'influence sur le comportement du polymère. Il a été vu dans le paragraphe introductif de la partie 1.2.1 que le comportement d'un polymère change radicalement suivant que l'on est en-dessous ou au-dessus de la température de transition vitreuse T_g. Dans le cadre plus spécifique de la viscoélasticité linéaire, la température possède un effet « accélérateur » ou « ralentisseur » sur la courbe de relaxation d'un matériau viscoélastique. Ainsi, la relaxation est d'autant plus rapide que le matériau est plus chaud, de même elle sera d'autant plus lente que le matériau est plus froid. Le principe d'équivalence temps-température [44] permet de rendre compte de ce phénomène en déduisant la réponse du matériau à une température quelconque T de celle à une température de référence T_0 en appliquant au temps physique un coefficient multiplicatif $a_T = a_{T_0 \to T} = 1/a_{T \to T_0}$ appelé facteur de translation. Ce facteur est illustré en Figure 47 pour le module de relaxation déjà utilisé pour tracer les courbes de réponse à une rampe en Figure 45. La Figure 47 montre graphiquement que $T_2 > T_1 \Longrightarrow a_{T_1 \to T_2} < 1$ et vice-versa.

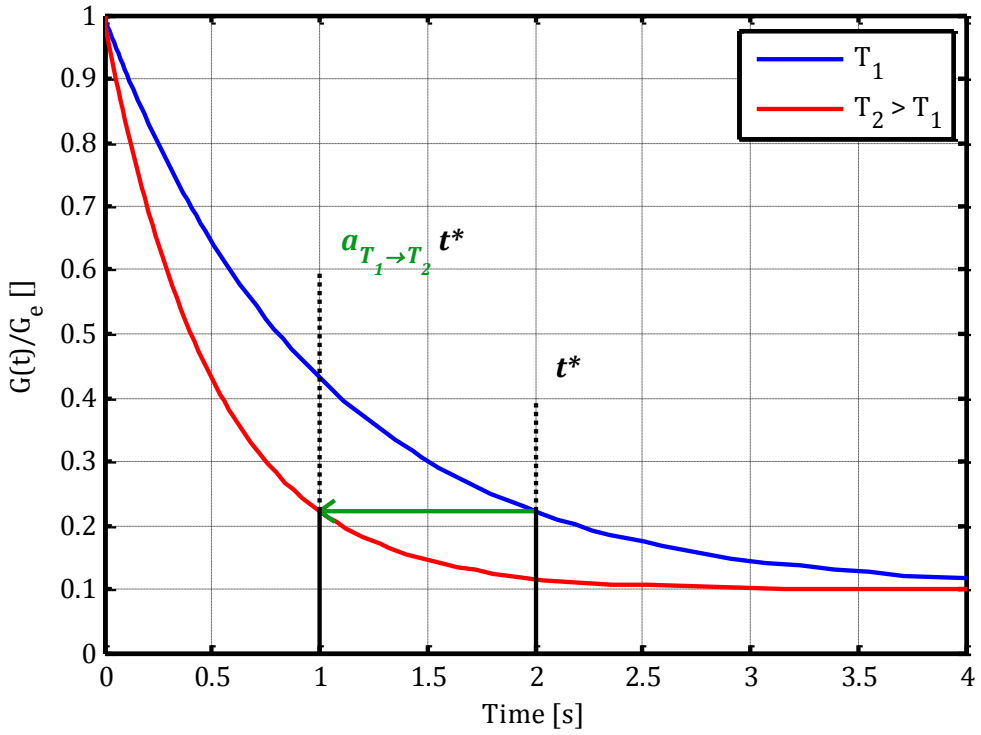


Figure 47 : Illustration du principe d'équivalence temps-température pour un essai de relaxation à deux températures différentes T_1 et $T_2 > T_1$

L'équivalence temps-température pour une quantité A se formalise de la manière suivante, selon l'approche temporelle ou fréquentielle :

$$\begin{cases} A(T,t) = A\left(T_0, a_{T \to T_0} \cdot t\right) = A\left(T_0, \dfrac{t}{a_T}\right) \\ A(T,\omega) = A\left(T_0, \dfrac{\omega}{a_{T \to T_0}}\right) = A(T_0, a_T \omega) \end{cases}$$

Différentes lois existent pour le facteur de translation. Les deux suivantes sont valables et couramment utilisées pour des polymères solides :

- la loi d'Arrhenius pour des polymères en dessous de T_g (pas de mouvements de chaînes, seulement des mouvements locaux activés thermiquement) :

$$\log a_T = \frac{E_a}{2.3k_B}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right) \text{ avec } E_a \text{ en eV et } k_B = 8{,}6173324 \cdot 10^{-5}\text{eV/K}$$

- la loi WLF [45] pour des polymères au-dessus de la transition vitreuse :

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

Ce principe d'équivalence est utilisé pour obtenir des courbes maîtresses du matériau à une température donnée en fonction du temps réduit t/a_T ou de la fréquence réduite $a_T\omega$. La Figure 48 illustre le fonctionnement de cette méthode pour récupérer le module de relaxation à la température de référence (prise égale à T_3) à partir d'essais effectués à plusieurs températures différentes : en utilisant une échelle logarithmique pour les abscisses, les données de chaque essai sont translatées horizontalement à l'aide du facteur de translation pour obtenir une unique courbe appelée courbe maîtresse à la température considérée. Cette méthode est d'autant plus puissante que la courbe maîtresse obtenue pour la température devient également valable pour les autres températures, à une translation de l'axe des abscisses près.

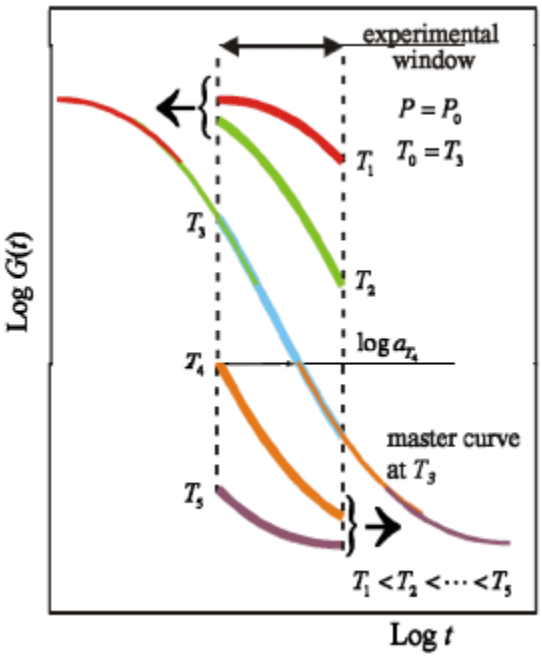


Figure 48 : Courbe maîtresse du module de relaxation à la température T_3 obtenue à partir d'essais à cinq températures différentes [37]

L'équivalence temps-température est en particulier très utilisée lors d'essais de DMA pour obtenir le module dynamique $G^*(a_T\omega)$ en fonction de la fréquence ou pulsation réduite.

3.1.4 Viscoélasticité non linéaire

Les polymères viscoélastiques présentent, tout comme les matériaux métalliques, des non-linéarités dès que la déformation devient « assez grande ». Ce paragraphe recense quelques-unes des non-linéarités les plus connues qui peuvent avoir lieu lors d'essais cycliques.

L'Effet Mullins : Cet effet a été mis en évidence par Mullins [46] lors d'essais de traction cycliques sur des élastomères chargés. Il consiste en un adoucissement irréversible après le premier cycle de charge du matériau (ou les quelques premiers cycles, typiquement une dizaine de cycles maximum). Si, lors d'une charge ultérieure, le seuil maximum des cycles précédents vient à être dépassé, le matériau retrouve la rigidité du matériau vierge avant de s'adoucir à nouveau dès la décharge qui suit. Le phénomène est schématisé sur la Figure 49. Cet adoucissement peut être vu comme un endommagement du matériau, cependant partiellement recouvrable après un traitement thermique adéquat (recuit). L'effet Mullins n'a donc pas spécialement d'origine visqueuse. Il conduit cependant, comme la viscoélasticité, à une énergie dissipée lors de ces premiers cycles de charge, correspondant à l'aire entre la courbe de charge et de décharge. Plusieurs modèles (par exemple [47] [48] [49]) ont été proposés pour rendre compte de cet effet présent lors du ou des premiers cycles : l'étude [50] en fait par ailleurs une revue très complète. Néanmoins, cette thèse s'intéresse principalement à la tenue des joints en fatigue à grand nombre de cycles, où le nombre de cycles est supposé être stabilisé et indépendant du régime transitoire initial. L'effet Mullins ne sera donc pas plus détaillé dans ce manuscrit. Néanmoins, il est recommandé (voire nécessaire) de faire initialement subir au matériau quelques cycles d'amplitude plus grande que celle utilisée pour le test de caractérisation du comportement, afin d'être sûr d'avoir exclu l'effet Mullins et de caractériser le matériau « stabilisé ».

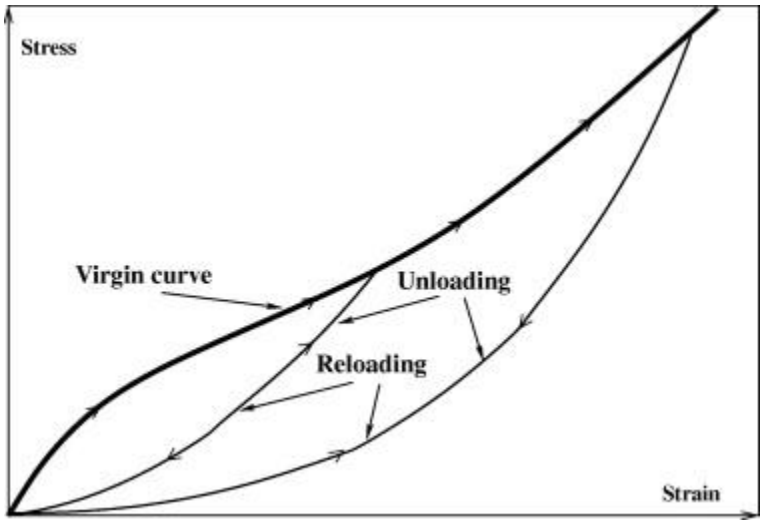


Figure 49 : Illustration de l'effet Mullins sur une courbe contrainte-déformation

L'effet Payne : cet effet a été constaté initialement par Payne [51] lors d'essais cycliques sur des polymères chargés qui ont montré l'influence de l'amplitude de déformation $\Delta\gamma_0$ sur le module dynamique G^* quand $\Delta\gamma_0$ dépasse un certain seuil comme illustré Figure 50 :

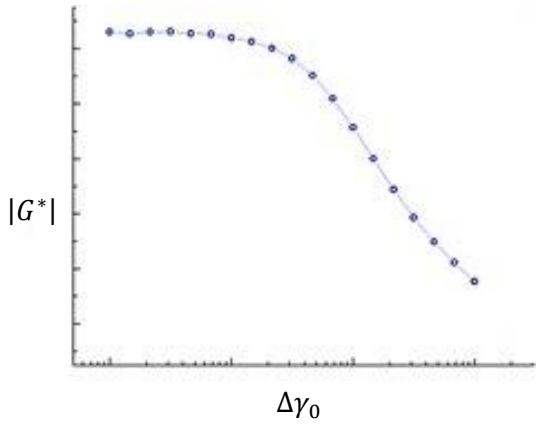


Figure 50 : Illustration de l'Influence de l'amplitude de déformation sur l'amplitude du module dynamique à fréquence et température fixées

Le module dynamique dépend donc en apparence de trois variables : la fréquence f ou ω, la température T ainsi que l'amplitude de déformation $\Delta\gamma_0$. Kraus [52] explique l'origine de cette dépendance à l'amplitude de déformation par la rupture et le recouvrement périodique de liaisons faibles dans le matériau lors d'un cycle. Sa théorie conduit aux résultats suivants pour les modules de stockage et de perte :

$$\begin{cases} G'(\Delta\gamma_0) = G'_\infty + \dfrac{G'_0 - G'_\infty}{1 + \left(\dfrac{\Delta\gamma_0}{\Delta\gamma_c}\right)^{2m}} \\ G''(\Delta\gamma_0) = G''_\infty + \dfrac{2(G''_m - G''_\infty)\left(\dfrac{\Delta\gamma_0}{\Delta\gamma_c}\right)^{m}}{1 + \left(\dfrac{\Delta\gamma_0}{\Delta\gamma_c}\right)^{2m}} \end{cases}$$

avec G'_0, G'_∞ et G''_∞ les modules de stockage et de perte aux très petites (indice 0) et très grandes (indice ∞) amplitudes de déformation, et $\Delta\gamma_c$ l'amplitude de déformation critique pour laquelle le module de perte atteint son maximum G''_m. Le paramètre m est réputé indépendant de la fréquence et de la température de l'essai pour du caoutchouc renforcé au noir de carbone. Néanmoins ce modèle présente le gros défaut de n'être utilisable que pour des sollicitations harmoniques. Il ne permet donc pas de déduire le comportement du matériau dans le domaine temporel. D'autre part, il rend en quelque sorte les modules G' et G'' indépendants alors que ceux-ci sont intimement liés puisqu'ils découlent directement de l'unique module de relaxation $G(t)$, ou encore du spectre des temps de relaxation $\mathcal{H}(u)$. Ce modèle n'est donc pas thermodynamiquement cohérent.

Afin de trouver une formulation temporelle de la loi de comportement de la forme de l'équation Eq 4 qui respecte le second principe de la thermodynamique, Höfer et Lion [53] ont eu l'idée d'introduire un temps intrinsèque au matériau $z(t)$ qui dépend de l'historique de déformation $\gamma(t)$ du matériau. Cette approche est en fait similaire à l'équivalence temps-température où le temps réduit t/a_T est l'équivalent du temps intrinsèque $z(t)$. Un temps intrinsèque $z_i(t)$ propre à chaque branche i du modèle de Maxwell peut être introduit. L'équation Eq 6 gouvernant la contrainte dans la branche i devient donc après calculs :

$$\dot{\tau}_i(t) + \dot{z}_i(t)\frac{\tau_i(t)}{\lambda_i} = G_i\dot{\gamma}(t)$$

Cette dernière équation montre que l'introduction de ce temps intrinsèque permet de définir une constante de temps de relaxation effective $\lambda_{ieff} = \lambda_i/\dot{z}_i$, ce qui peut être obtenu par exemple avec une viscosité non constante $\eta_{ieff} = \eta_i/\dot{z}_i$.

Un choix simple pour l'équation d'évolution de $z_i(t)$ permettant de rendre compte de l'effet Payne est le suivant : $\dot{z}_i(t) = 1 + \alpha_i\lambda_i|\dot{\gamma}(t)|$ avec $\alpha_i > 0$. Intuitivement, si le matériau est rapidement déformé ($|\dot{\gamma}(t)|$ élevé), alors il relaxe plus vite ($\dot{z}_i(t)$ élevé donc λ_{ieff} faible) et donc devient plus souple, donc $|G^*(\omega)|$ diminue. Du point de vue moléculaire, cette équation peut être interprétée comme suit : une vitesse de déformation du polymère plus élevée accélère la relaxation de ses chaînes.

Dans le cas particulier d'une sollicitation harmonique, les modules de stockage et de perte ont pour expression [53] :

$$\begin{cases} G'(\omega) = G_\infty + \sum_i G_i \dfrac{(\omega\lambda_i)^2}{(\omega\lambda_i)^2 + \left(1 + \left(\frac{8\alpha_i}{3\pi}\omega\lambda_i\right)\Delta\gamma_0\right)\left(1 + \left(\frac{4\alpha_i}{3\pi}\omega\lambda_i\right)\Delta\gamma_0\right)} \\ G''(\omega) = \sum_i G_i \dfrac{\omega\lambda_i\left(1 + \left(\frac{4\alpha_i}{3\pi}\omega\lambda_i\right)\Delta\gamma_0\right)}{(\omega\lambda_i)^2 + \left(1 + \left(\frac{8\alpha_i}{3\pi}\omega\lambda_i\right)\Delta\gamma_0\right)\left(1 + \left(\frac{4\alpha_i}{3\pi}\omega\lambda_i\right)\Delta\gamma_0\right)} \end{cases} \quad \textbf{Eq 14}$$

Pour $\Delta\gamma_0 \to 0$, les expressions de l'équation Eq 12 sont bien retrouvées. Ce modèle rajoute au total un paramètre supplémentaire α_i à identifier par branche du modèle de Maxwell.

Lion et Kardelky [54] ont, du reste, proposé un modèle quelques années plus tôt reprenant les mêmes bases mais utilisant des dérivées fractionnaires pour l'équation Eq 6 d'évolution de la contrainte τ_i. Cette forme particulière aboutit à un temps intrinsèque $z(t)$ dont la dérivée reste constante lors d'une sollicitation harmonique. Cette dérivée constante $\dot{z}$ joue donc directement le rôle de facteur de translation dépendant de l'amplitude de déformation $a_{\Delta\gamma_0}$. Les expressions analytiques sont en revanche rendues bien plus complexes du fait des dérivées fractionnaires.

L'influence de la pression hydrostatique : il a été constaté que la pression hydrostatique a une forte influence sur la rigidité des polymères viscoélastiques, que ce soit sur la partie volumique (si le polymère est compressible) ou sur la partie isochore. Certains auteurs prennent le parti d'ajouter la pression hydrostatique dans l'expression du facteur de translation, et ainsi créer un principe de superposition temps-température-pression. Fillers et Tschoegl [55] puis Moonan et Tschoegl [56] [57] [58] partent, par exemple, de la forme de l'équation WLF et l'enrichissent pour obtenir ce qu'ils appellent l'équation FMT suivante :

$$\log a_{T,p} = -\frac{C_1^{00}\big(T - T_0 - \theta(p)\big)}{C_2^{00}(p) + T - T_0 - \theta(p)} \quad \text{avec} \quad \theta(p) = C_3^0(p)\ln\left(\frac{1 + C_4^0 p}{1 + C_4^0 p_0}\right) - C_5^0(p)\ln\left(\frac{1 + C_6^0 p}{1 + C_6^0 p_0}\right)$$

Les coefficients C_i^{00} sont déterminés aux température et pression de référence T_0 et p_0, et les C_i^0(p) à la température de référence T_0. Leurs expressions sont basées sur la théorie du volume libre. L'équation se réduit à l'équation WLF pour $p = p_0$. Les essais ont été menés dans une chambre avec un fluide sous pression régulée, donc à une pression hydrostatique strictement positive. D'après les résultats obtenus dans les articles [55] à [58], l'influence de la pression devient non-négligeable pour des pressions dépassant plusieurs dizaines de MPa (plusieurs centaines de bars). La valeur numériques des coefficients est donc pratiquement la même, que les essais pour les déterminer sont effectués sous vide ou à pression atmosphérique. Cet effet a été mis en évidence par ces auteurs pour des polymères non-chargés et chargés, à des températures voisines de la température de transition vitreuse.

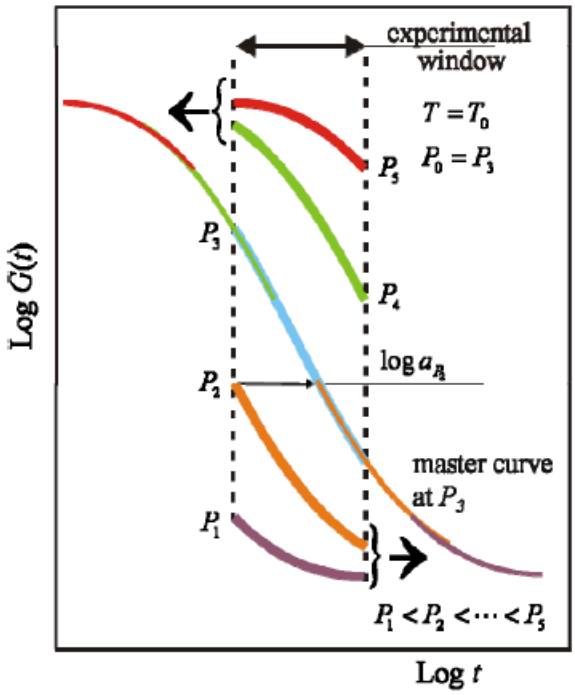


Figure 51 : Effet de la pression hydrostatique sur la réponse viscoélastique d'un polymère [37]

La Figure 51 montre que la pression a un effet opposé à celui de la température : augmenter la pression fait « ralentir le temps », ou encore rigidifie le matériau (qui relaxe moins vite). Au contraire, diminuer la pression augmente la vitesse de relaxation. En revanche, aucune indication sur l'influence d'une pression hydrostatique négative (correspondant à une traction isotrope) n'est donnée.

Néanmoins, il est montré dans le Chapitre 4 que pour un matériau hyperélastique incompressible chargé, la pression hydrostatique a la même influence sur le module de cisaillement. Et ce dans des proportions bien plus élevées puisque quelques bars de pression suffisent à changer la rigidité de plusieurs pourcents, y compris pour des petites déformations de cisaillement γ_0. Ainsi, la viscosité n'est pas le seul élément expliquant l'influence de la pression hydrostatique sur le comportement d'un joint adhésif.

L'influence d'une prédéformation statique : certains auteurs ont étudié l'influence d'une prédéformation statique γ_s ajoutée à la déformation cyclique, c'est-à-dire une sollicitation de la forme

$$\gamma(t) = \gamma_s + \Delta\gamma_0 \sin \omega t$$

Certains matériaux présenteront une diminution du module dynamique G^* avec γ_s quand d'autres présenteront une rigidification. Une piste d'explication proposée par certains auteurs [59] [60] est de rendre certains paramètres viscoélastiques (décrivant $G(t)$ ou $\mathcal{H}(\lambda)$) dépendant de la déformation statique, en se basant sur le caractère non-linéaire adoucissant ou rigidifiant de l'hyperélasticité selon le modèle de comportement hyperélastique choisi. Il faut cependant bien garder à l'esprit que, dans le cas de sollicitations en traction-compression uniaxiales (qui sont celles le plus souvent étudiées dans la littérature), ajouter une déformation statique revient également à rajouter une pression hydrostatique, ce qui couple donc les deux effets.

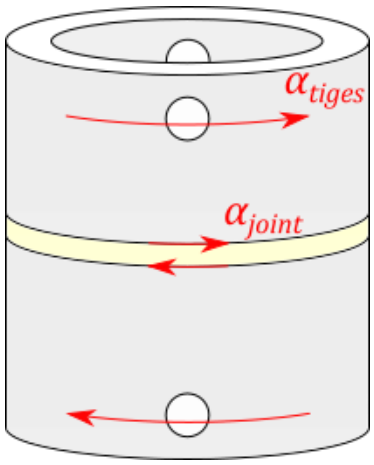
3.2 Résultats expérimentaux et identification des modèles

Les expériences de caractérisation du comportement viscoélastique des joints silicone et polyimide ont été menées en utilisant la géométrie de torsion décrite dans le paragraphe 2.2.2. Les notations géométriques sont les mêmes : rayon moyen du joint R, largeur e, épaisseur h, surface collée $A = 2\pi Re$, angles de rotation imposés au niveau des tiges α_{tiges} et du joint α_{joint}, couple appliqué à l'assemblage collé M.

Les essais de DMA utilisés pour obtenir les courbes maîtresses de viscoélasticité linéaire consistent en des balayages de fréquences pour différents paliers de températures. L'amplitude de déformation du joint est maintenue aussi constante que possible durant ces essais. Néanmoins une petite variation a lieu à cause de l'hétérogénéité de l'assemblage collé. L'origine de cette variation est expliquée en détail dans le paragraphe ci-dessous. Ensuite des essais supplémentaires à fréquence et température constantes pour caractériser l'effet Payne (l'influence de l'amplitude de déformation $\Delta\gamma$) et l'effet de la pression hydrostatique p par l'intermédiaire d'une contrainte verticale hors-plan σ_{33} appliquée sur le joint seront présentés.

3.2.1 Courbes maîtresses

La variation d'amplitude de déformation au cours d'essais de DMA à fréquence et température variables pour un assemblage hétérogène peut s'expliquer simplement avec un modèle 1D linéaire : la raideur en torsion des substrats en aluminium et des tiges adaptatrices notée K peut raisonnablement être considérée constante sur la gamme de température et contrainte explorée, d'où



$$\alpha_{tiges} = \alpha_{joint} + \frac{M}{K} \quad \text{soit} \quad \gamma = \frac{R}{h}\alpha_{joint} = \frac{R}{h}\left(\alpha_{tiges} - \frac{M}{K}\right)$$

Or, le couple est relié à la déformation du joint grâce à son module de cisaillement G par la relation

$$M = \tau \times RA = G\gamma \times RA$$

D'où, après calculs :

$$\gamma = \frac{R}{h}\alpha_{tiges}\left(1 + \frac{GR^2A}{hK}\right)^{-1}$$

Le pilotage de la machine, s'il s'effectue en angle α_{tiges}, se fait a priori à amplitude angulaire $\Delta\alpha_{tiges}$ constante sur tout l'essai de DMA. Or, comme la rigidité du joint G change pendant l'essai, dans le cas général d'après la formule précédente $\Delta\gamma$ n'est pas constant, à moins que le rapport GR^2A/hK reste négligeable (K très grand). Dans la pratique, ce rapport n'est pas négligeable. Il faut donc compenser en appliquant une consigne α_{tiges} dont l'amplitude dépend de la réponse du matériau. Cette correction a pu être implémentée dans le rhéomètre afin de donner des courbes maîtresses obtenues pour des variations d'amplitude de déformation négligeable vis-à-vis de l'effet Payne.

Les échantillons ont d'abord subi vingt cycles d'assez grande amplitude (cinq fois l'amplitude du test) afin d'évacuer l'effet Mullins. La procédure de test de DMA consiste en balayages en fréquence de $0{,}1$ Hz à 10 Hz avec 3 points par décade demandés par palier de température constant. Une fois la température stabilisée dans la chambre au début de chaque palier, 3 minutes supplémentaires sont attendues afin que l'assemblage collé soit bien à température avant de lancer le balayage en fréquence. Les paliers de températures sont effectués en commençant par la plus basse température puis en montant. Cette procédure de test a été répétée trois fois pour chaque échantillon : en effet, le comportement en basse température lors de la première procédure est différent de celui obtenu pour les deux autres. La différence entre la deuxième et la troisième procédure étant négligeable, les résultats de la deuxième procédure seront à chaque fois retenus pour l'identification. Les plages de température explorées pour les deux joints ont été choisies en fonction de l'application industrielle et des températures de transition vitreuse T_g annoncées par le fournisseur pour chaque colle. En effet, le principe d'équivalence temps-température est valable « au voisinage » de la T_g d'après la littérature [45].

- $[-105℃\,;250℃]$ pour le joint silicone. Les températures négatives en-dessous de la T_g annoncée à $-45℃$ ont été atteintes pour pouvoir caractériser précisément la transition du matériau, tandis que la limite haute a été choisie en fonction de l'utilisation industrielle. Les limites physiques du rhéomètre n'ont pas permis d'aller explorer à des températures encore plus faibles pour vérifier la présence éventuelle d'une transition vers $-125℃$ souvent citée dans la littérature.
- $[30℃\,;270℃]$ pour le joint polyimide. La T_g étant annoncée à $250℃$, il a été choisi de monter légèrement au-dessus pour bien caractériser la transition mais sans trop dépasser pour éviter le fluage éventuel des substrats en aluminium qui perdent substantiellement leur raideur entre $250℃$ et $300℃$.

Résultats des expériences : La Figure 52 ci-dessous présente les courbes maîtresses obtenues pour l'amplitude du module complexe $|G^*(\omega)|$ et le facteur de perte $\tan\delta(\omega)$ pour le joint silicone à une

température de référence de 20°C. Le module du joint silicone varie de manière assez importante entre -60°C et -40°C puisqu'il perd $43\,\%$ de sa valeur sur cette plage de 20°C de large. Il y a donc effectivement un changement au niveau moléculaire du matériau à cette plage de température. Néanmoins cette baisse du module n'est pas accompagnée d'une augmentation du facteur de perte puisqu'il augmente sur cette plage pour atteindre sa valeur maximale de $0{,}06$ justement à partir de -40°C jusqu'à 150°C avant de diminuer au-delà de 150°C. Par ailleurs, la perte de rigidité aux alentours de -45°C n'est ni aussi brutale ni aussi importante que les deux à trois ordres de grandeurs attendus autour de la T_g d'un élastomère réticulé. Ces remarques font penser que cette température de -45°C affichée par le fournisseur correspondrait plus à une température de fusion de cristallites T_{fc}. Sur toute la plage de température explorée, le facteur de perte reste très bas (entre $0{,}02$ et $0{,}07$) par rapport à des valeurs typiques d'élastomère pouvant facilement atteindre $0{,}5$ en particulier à proximité de la T_g. Ces valeurs faibles expliquent la dispersion apparente assez forte sur les points expérimentaux de la courbe maîtresse du facteur de perte, puisque l'incertitude de la mesure du rhéomètre sur $\delta(\omega)$ est de l'ordre de $0{,}01$.

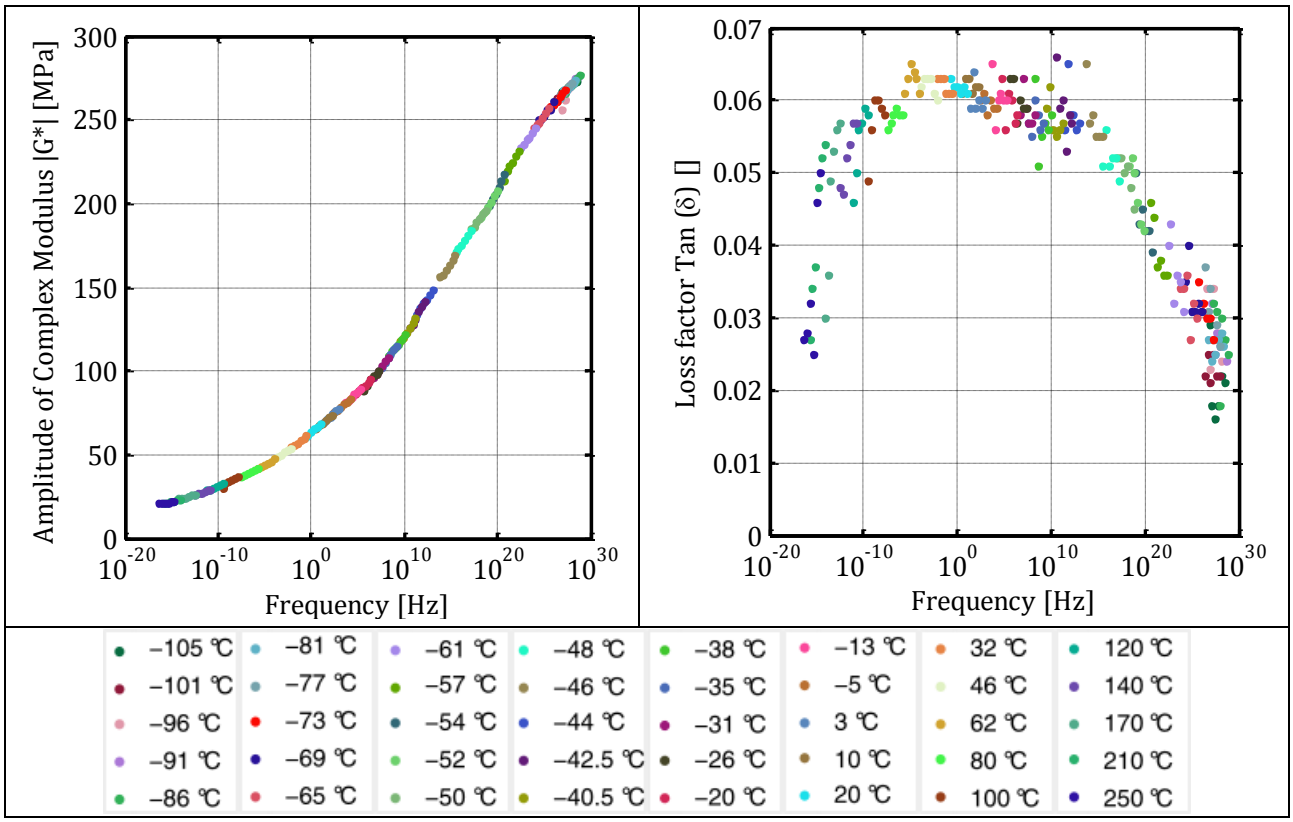


Figure 52 : Courbes maîtresses en $|G^*|$ et $\tan\delta$ pour le joint silicone

La Figure 53 suivante présente les mêmes courbes maîtresses pour un joint polyimide à une température de référence de 60°C. Cette fois-ci, conformément aux données fournisseurs, une chute plus raide du module à partir de 240°C est présente, accompagnée d'une hausse sensible du facteur de perte de $0{,}02$ à $0{,}05$ à partir de cette même température. Ces deux remarques confirment la présence de la transition vitreuse vers 250°C. Comme pour le joint silicone, le facteur de perte reste très faible (en-dessous de $0{,}06$ à 250°C), d'où le bruit expérimental constaté sur la courbe maîtresse de $\tan\delta(\omega)$. Enfin, l'ordre de

grandeur du module reste inhabituellement bas (autour de 150 MPa) pour une résine polyimide. Ceci peut être en partie expliqué par la présence des cavités dans les joints (cf Figure 35 et Figure 41), qui baisse le module macroscopique du joint.

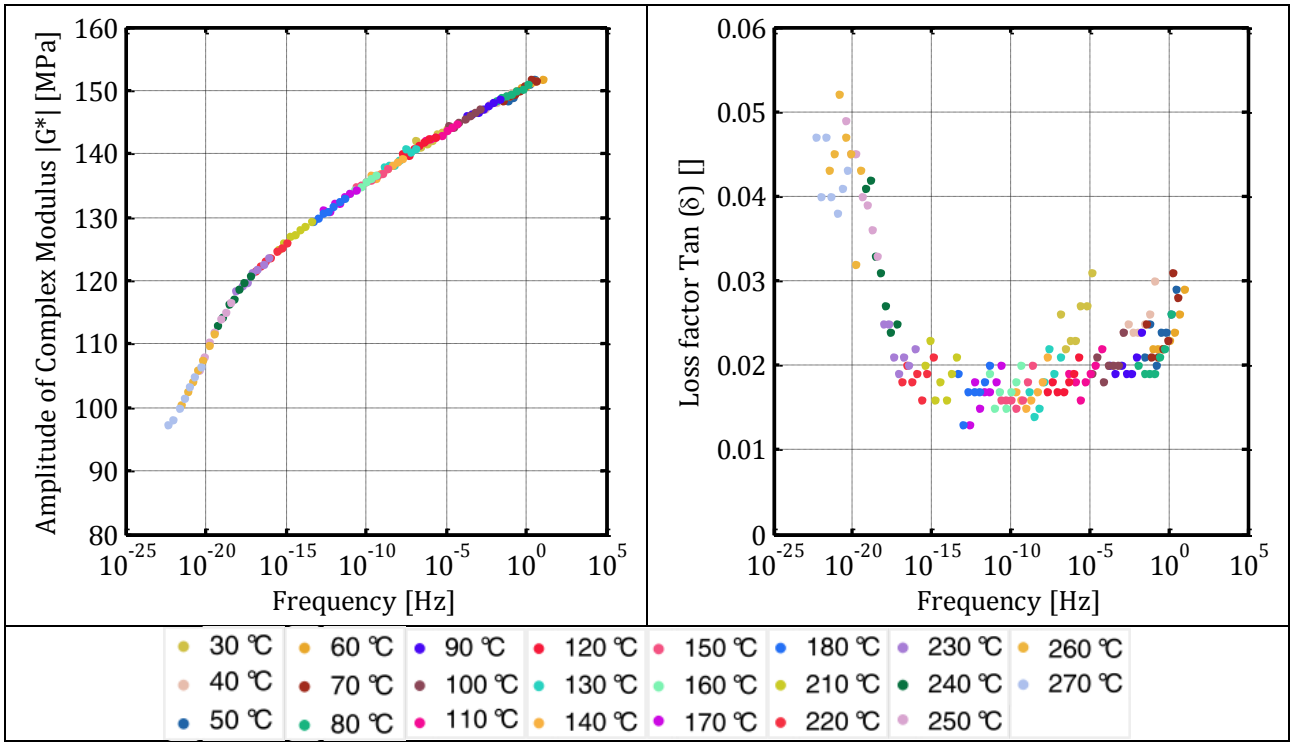


Figure 53 : Courbes maîtresses en $|G^*|$ et $\tan\delta$ pour le joint polyimide

La Figure 54 montre les facteurs de translation a_T déterminés graphiquement pour la réalisation des courbes maîtresses des deux figures précédentes. Les facteurs de translation ont été identifiés sur la courbe maîtresse du module $|G^*|$ étant donné le bruit expérimental beaucoup plus faible que celui du facteur de perte. Pour les deux joints silicone et polyimide, le facteur de translation ne décroît pas de manière monotone puisqu'il commence par augmenter à basse température avant de diminuer ensuite jusqu'à la température maximale explorée. Une augmentation du facteur de translation sur cette plage de température correspond à une rigidification du matériau avec la température : le joint devient plus rigide quand il est chauffé. La modélisation viscoélastique utilisée jusqu'à présent pourrait ne pas être applicable sur cette plage de température. Néanmoins à ces températures le matériau présente toujours une rigidification avec la fréquence, ce qui est une preuve de sa viscosité. Cette caractéristique inhabituelle n'est pas présente lors d'un premier essai DMA de balayage en température et fréquence, mais se reproduit systématiquement pendant les tests suivants. Ce comportement fait penser à l'effet Mullins : en effet, il induit un changement de comportement irréversible après un premier balayage en fréquence-température, de même qu'un polymère chargé s'adoucit après un premier cycle de sollicitation. Mais les causes et les effets soient sans doute totalement différents, ce qui limite grandement l'analogie. Cet effet explique aussi le module étonnamment bas du joint polyimide : lors du premier test de DMA, le module était en fait bien plus haut à basse température (aux alentours de 500 MPa) et baissait de manière monotone quand la température augmentait, pour ensuite coller aux résultats des tests de DMA ultérieurs à partir de 80°C.

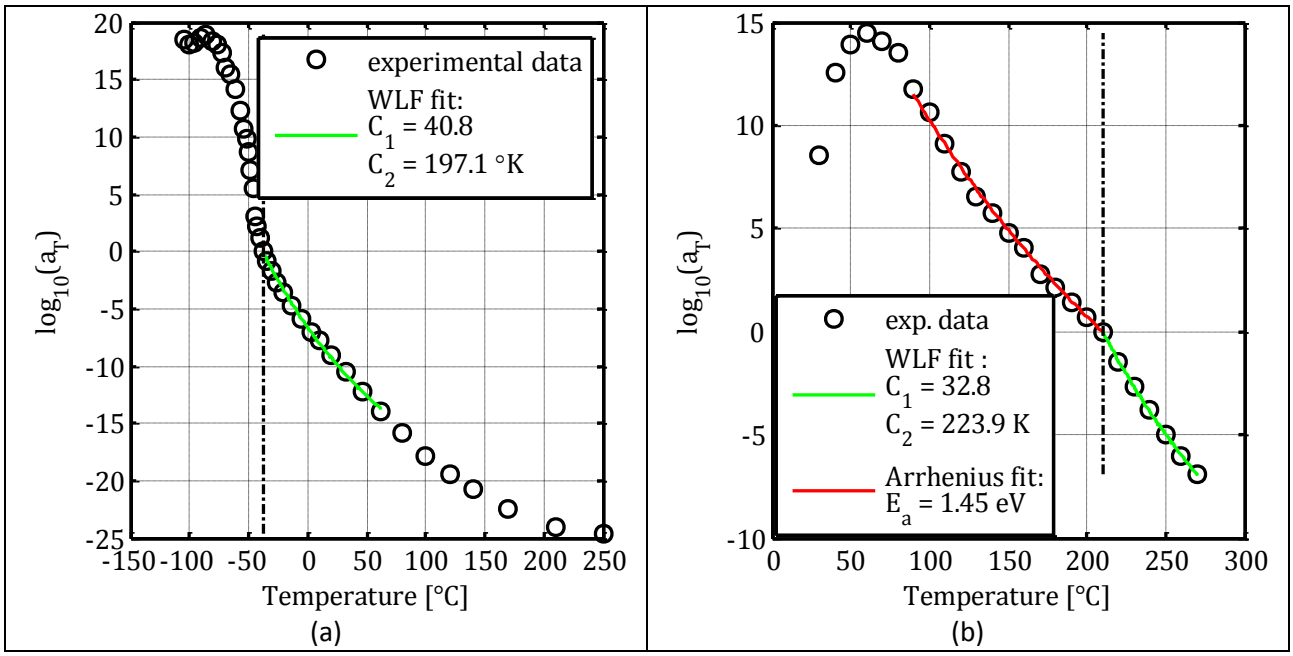


Figure 54 : Facteurs de translation a_T utilisés pour l'obtention des courbes maîtresses des joints silicone (a) et polyimide (b)

Comme expliqué en introduction de cette partie, l'amplitude de déformation du joint change pendant un essai de DMA où sa rigidité $|G^*|$ évolue si l'amplitude de la variable cinématique de la machine (ici l'angle au niveau des tiges α_{tiges}) reste constant. Ce défaut inhérent à la méthode a été compensé directement dans le software du rhéomètre en introduisant une souplesse machine qui prend en compte la souplesse des substrats alu et des tiges acier de l'assemblage collé. Il en résulte une amplitude de déformation $\Delta\gamma$ à peu près constante sur tous les paliers de températures effectués. L'évolution de $\Delta\gamma$ pendant le test complet est tracée en Figure 55 sous forme de courbe maîtresse pour plus de lisibilité :

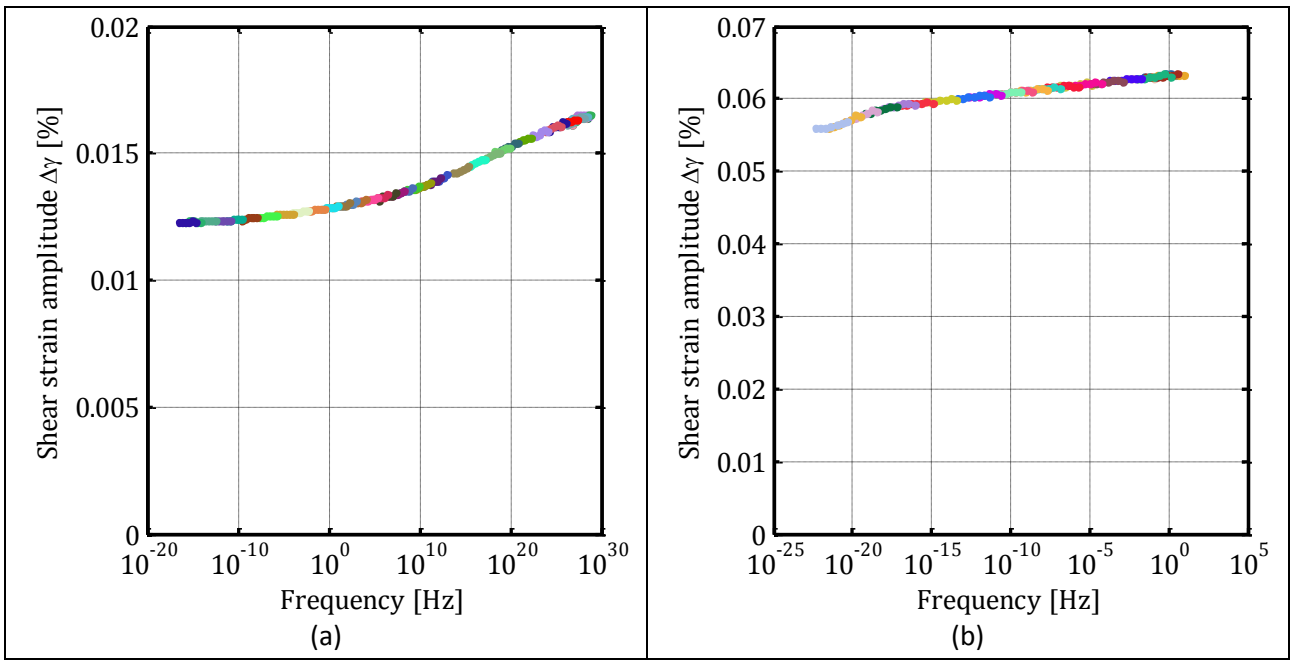


Figure 55 : Evolution de l'amplitude de déformation pendant le test de DMA pour le joint silicone (a) et le joint polyimide (b) (voir code couleurs des Figure 52 et Figure 53)

Durant les tests de DMA, $\Delta\gamma$ varie au maximum de $15\ \%$ par rapport à sa valeur moyenne pour le joint silicone et de $7\ \%$ par rapport à sa valeur moyenne dans le cas du joint polyimide. Ces variations, si elles sont non négligeables, restent relativement faibles pour pouvoir négliger l'effet Payne, ou du moins le minimiser.

Dans la suite de ce chapitre, toutes les données de rigidité sont adimensionnées par un module G_0 :

- $G_0 = |G^*|(1\ \text{Hz}, 20°\text{C}) = 63{,}7\ \text{MPa}$ pour le joint silicone
- $G_0 = |G^*|(1\ \text{Hz}, 60°\text{C}) = 150{,}8\ \text{MPa}$ pour le joint silicone

Identification des modèles : deux modèles ont été identifiés pour les joints silicone et polyimide. Le premier est un modèle de Maxwell généralisé discret, qui reste le plus simple à appréhender et à mettre en œuvre dans un code Eléments Finis pour une application industrielle. La manière la plus classique d'identifier un modèle de Maxwell généralisé reste la méthode de collocation consistant à postuler les constantes de temps de relaxation λ_i et à déterminer les rigidités G_i associées [41]. Les temps de relaxation sont pris régulièrement espacés sur une échelle logarithmique, c'est-à-dire $\lambda_{i+1}/\lambda_i = a$. Les coefficients G_i (dont la positivité est imposée) et G_∞ sont ensuite identifiés avec un algorithme de minimisation classique par la méthode des moindre carrés qui minimise le résidu r sur l'amplitude du module dynamique $|G^*|$, en contraignant l'algorithme à chercher la solution dans l'espace $(G_i, G_\infty) \geq 0$:

$$r = \min_{G_i, G_\infty} \sum_j \left(\left|G^*(\omega_j)\right|_{exp} - \sqrt{\left(G_j'\right)^2 + \left(G_j''\right)^2} \right)^2 \quad \text{avec} \quad \begin{cases} G_j' = G_\infty + \sum_i G_i \dfrac{\left(\omega_j \lambda_i\right)^2}{1 + \left(\omega_j \lambda_i\right)^2} \\ G_j'' = \sum_i G_i \dfrac{\omega_j \lambda_i}{1 + \left(\omega_j \lambda_i\right)^2} \end{cases}$$

Ce modèle a tendance à donner un facteur de perte $\tan\delta(\omega)$ qui présente des oscillations régulières si les temps de relaxation sont trop espacés, typiquement moins d'une constante de temps par décade. Pour éviter ces oscillations, l'espacement a est gardé inférieur à 10 (dans la pratique a est de l'ordre de 7 à 8). Les temps de relaxation sont distribués sur une plage correspondant aux fréquences de la courbe maîtresse pour une identification des G_i cohérente avec les résultats des essais :

$$\lambda_{min} = \frac{\chi_{min,a}}{f_{max}} \quad , \quad \lambda_{max} = \frac{\chi_{max,a}}{f_{min}}$$

avec $\chi_{min,a}$ et $\chi_{max,a}$ deux paramètres numériques dépendant de a ajustés pour obtenir les meilleurs résultats graphiques.

Le deuxième modèle s'appuie sur une distribution continue des temps de relaxation dont la forme est postulée puis les paramètres déterminés. La forme la plus simple, utilisée dans cette étude, est un spectre Gaussien vis-à-vis du logarithme des temps de relaxation :

$$\mathcal{H}(\lambda) = G_\infty + G_a \exp\left(-\frac{(\log\lambda - \log\lambda_m)^2}{2(\log\lambda_a)^2} \right)$$

Le but est donc d'identifier le jeu de paramètres $(G_\infty, G_a, \lambda_m, \lambda_a) \geq 0$ qui minimise le résidu r sur l'amplitude du module dynamique $|G^*|$:

$$r = \min_{G_\infty, G_a, \lambda_m, \lambda_a} \sum_j \left(|G^*(\omega_j)|_{exp} - \sqrt{(G_j')^2 + (G_j'')^2} \right)^2$$

$$\text{avec} \begin{cases} G'(\omega) = G_\infty + \int_0^\infty G_a \exp\left(-\frac{(\log\lambda - \log\lambda_m)^2}{2(\log\lambda_a)^2} \right) \frac{(\omega_j\lambda)^2}{1+(\omega_j\lambda)^2} \frac{d\lambda}{\lambda} \\ G''(\omega) = \int_0^\infty G_a \exp\left(-\frac{(\log\lambda - \log\lambda_m)^2}{2(\log\lambda_a)^2} \right) \frac{\omega_j\lambda}{1+(\omega_j\lambda)^2} \frac{d\lambda}{\lambda} \end{cases}$$

Le calcul des intégrales de l'expression ci-dessus est effectué uniquement entre les bornes λ_{min} et λ_{max} similaires à celles du modèle discret (les coefficients $\chi_{min,a}$ et $\chi_{max,a}$ ont pu être ajustés différemment) puisque les données expérimentales ne sont pas connues au-delà de ces bornes. D'autre part le calcul des deux intégrales pose des difficultés de convergence en 0 et $+\infty$, ce qui oblige de toute façon à poser des bornes numériques finies pour approximer ces intégrales. Au final, le gros avantage de ce modèle par rapport au modèle discret réside dans sa régularité et son faible nombre de paramètres, quelle que soit la plage de fréquence des données expérimentales.

La Figure 56 montre l'identification des modèles de Maxwell et de Gauss pour le joint silicone. Soixante branches de Maxwell ont été utilisées afin de minimiser le caractère oscillant du facteur de perte. Les deux modèles donnent des résultats tout à fait acceptables concernant l'amplitude du module dynamique mais présentent des comportements relativement différents pour le facteur de perte.

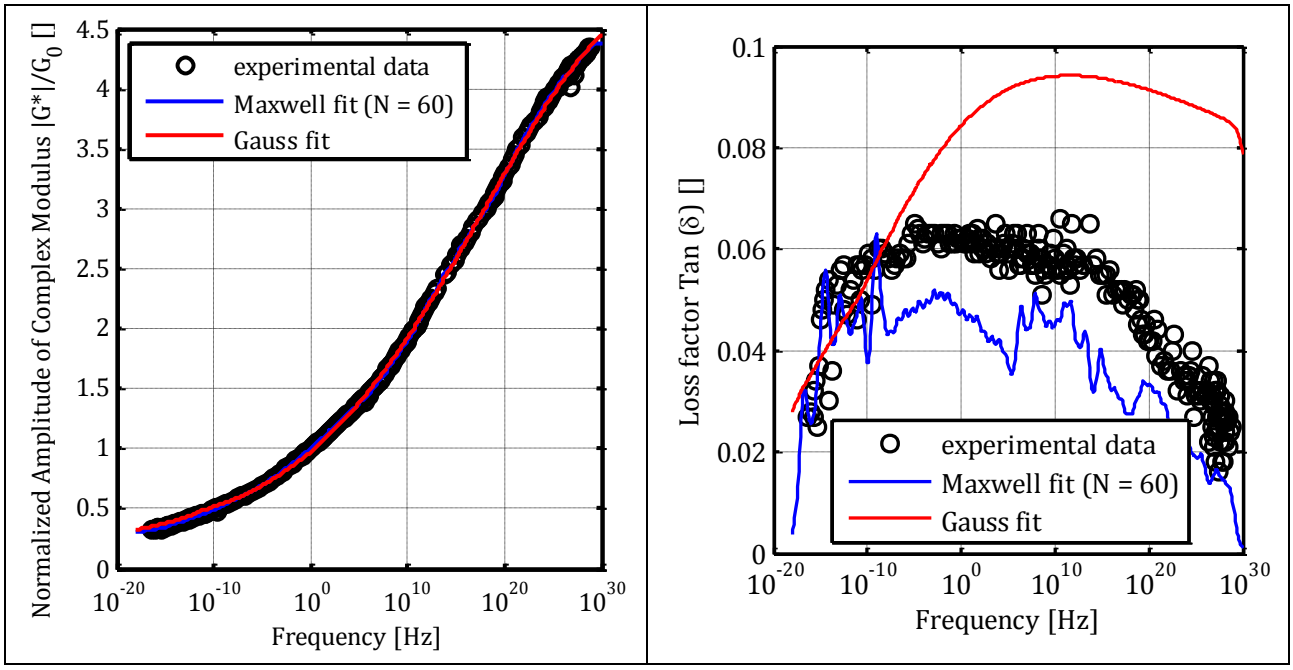


Figure 56 : Identification des modèles de Maxwell et de Gauss pour le joint silicone

En effet, le modèle de Maxwell discret reste globalement plus proche des résultats expérimentaux. Le modèle continu gaussien présente de son côté l'avantage de la régularité bien que le facteur de perte soit surestimé en particulier aux hautes fréquences (jusqu'à $+0{,}05$). L'erreur relative (supérieure à $100\ \%$) est importante mais habituelle vis-à-vis de la faible valeur absolue sur toute la plage du test de DMA.

La Figure 57 présente l'identification du modèle de Maxwell généralisé pour le joint polyimide avec trentre-cinq éléments de Maxwell. La régression est toujours aussi bonne sur l'amplitude du module et reste très convenable pour le facteur de perte avec une légère sous-estimation de l'ordre de $-0{,}01$ sur l'ensemble des mesures expérimentales. Le modèle gaussien n'est pas affiché pour cette colle en raison de résultats très fortement non-cohérents.

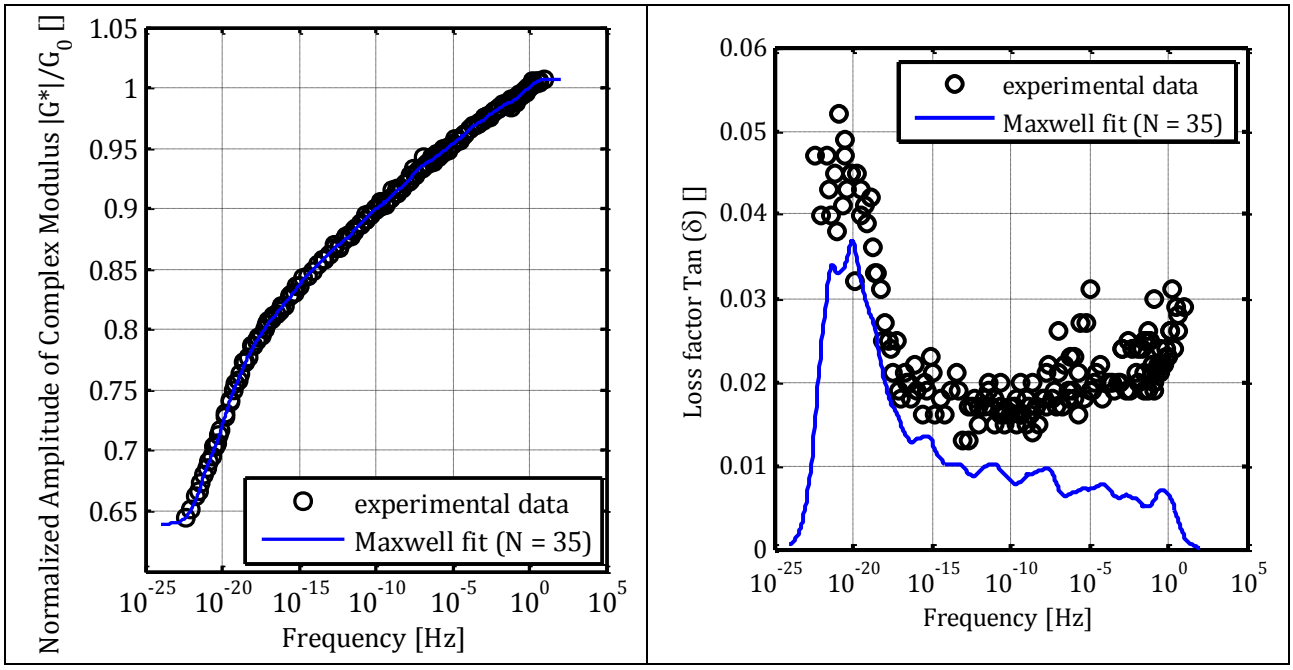


Figure 57 : Identification du modèle de Maxwell pour le joint polyimide

Enfin, les spectres des temps de relaxations (normalisés par G_0) correspondant aux différentes régressions effectuées dans les figures ci-dessus sont illustrés sur la Figure 58 ci-dessous. Dans le cas du modèle de Maxwell discret, la quantité tracée sur le graphe est définie par

$$\mathcal{H}(\lambda_i)/G_0 = \left(\frac{G_i}{\ln a}\right)/G_0$$

Concernant le joint silicone (Figure 58 (a)), le spectre discret suit la même tendance que le spectre gaussien. L'amplitude plus élevée pour les faibles temps de relaxation explique la surestimation du facteur de perte aux hautes fréquences. Du côté du joint polyimide (Figure 58 (b)), l'allure du spectre discret n'est pas conforme à une évolution gaussienne, ce qui explique la non-cohérence de la modélisation gaussienne.

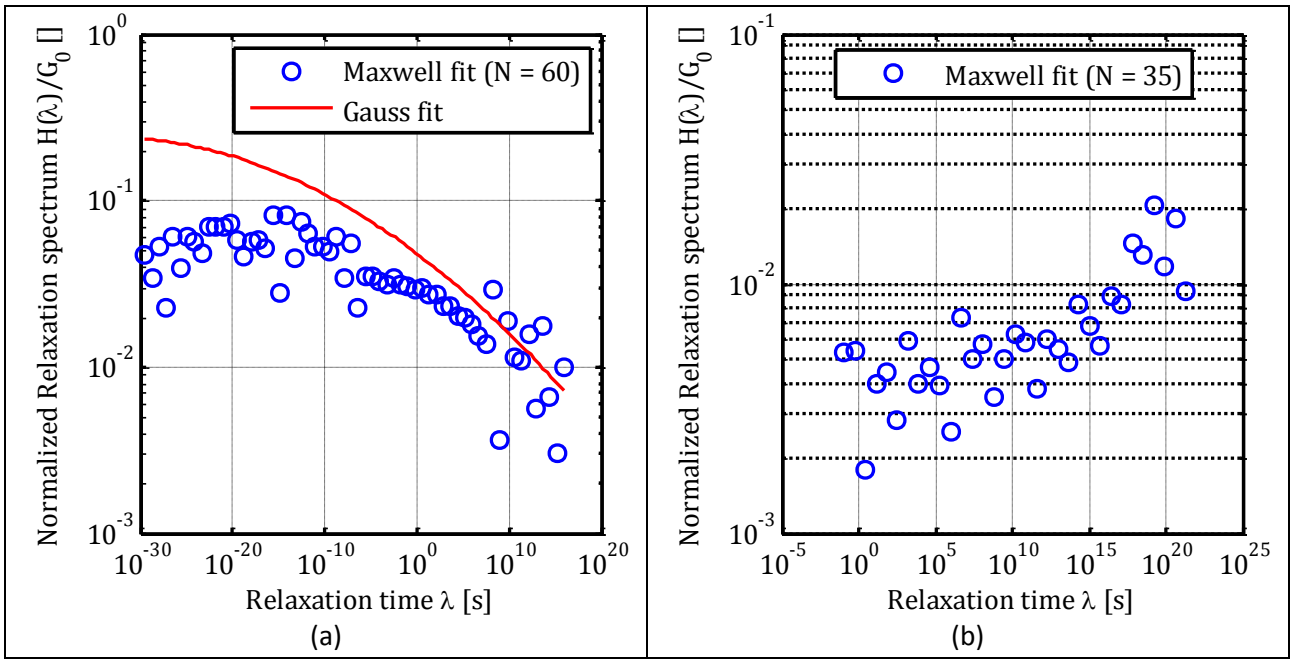


Figure 58 : Spectres des temps de relaxation pour le joint silicone (a) et polyimide (b)

3.2.2 Effet Payne

L'influence de l'amplitude de déformation $\Delta\gamma$ sur la réponse viscoélastique des joints adhésifs a été étudiée en appliquant des balayages en amplitude à température et fréquence constante. Comme pour l'établissement des courbes maîtresses, les échantillons sont initialement cyclés à des amplitudes plus élevées que celle appliquées pendant les balayages en amplitude pour évacuer l'effet Mullins. Plusieurs balayages successifs ont été effectués pour juger de la reproductibilité de la réponse : contrairement aux courbes maîtresses, la réponse est ici reproductible dès le premier balayage en amplitude. Le modèle utilisé pour cette identification est le modèle de Maxwell modifié par Höfer et Lion par l'ajout d'un temps intrinsèque à chaque élément de Maxwell $z(t)$ (cf paragraphe 3.1.4). Ce temps intrinsèque s'exprime à l'aide d'un paramètre α_i tel que $\dot{z}_i(t) = 1 + \alpha_i \lambda_i |\dot{\gamma}(t)|$, ce qui ajoute un paramètre à déterminer numériquement par branche de Maxwell. Pour effectuer une identification fiable, il faudrait donc effectuer des balayages en amplitude à autant de fréquences (ou fréquences réduites, grâce au principe d'équivalence temps-température) différentes qu'il y a d'éléments dans le modèle de Maxwell généralisé à identifier. Un moyen simple de diminuer fortement le nombre de coefficients à identifier et donc le nombre d'essais à effectuer est de faire une hypothèse du type $\forall i, \alpha_i = \alpha_0$. L'équation Eq 14 exprimant les modules de stockage et de perte devient

$$\begin{cases} G'(\omega) = G_\infty + \sum_i G_i \dfrac{(\omega\lambda_i)^2}{(\omega\lambda_i)^2 + \left(1 + \left(\frac{8\alpha_0}{3\pi}\omega\lambda_i\right)\Delta\gamma\right)\left(1 + \left(\frac{4\alpha_0}{3\pi}\omega\lambda_i\right)\Delta\gamma\right)} \\ G''(\omega) = \sum_i G_i \dfrac{\omega\lambda_i\left(1 + \left(\frac{4\alpha_0}{3\pi}\omega\lambda_i\right)\Delta\gamma\right)}{(\omega\lambda_i)^2 + \left(1 + \left(\frac{8\alpha_0}{3\pi}\omega\lambda_i\right)\Delta\gamma\right)\left(1 + \left(\frac{4\alpha_0}{3\pi}\omega\lambda_i\right)\Delta\gamma\right)} \end{cases}$$

Une fois que les constantes de relaxation λ_i ont été distribuées de manière cohérente avec les données expérimentales, le jeu de paramètre à identifier devient $(G_\infty, G_i, \alpha_0) \geq 0$.

Cette identification a été menée avec la procédure de minimisation expliquée au paragraphe 3.2.1 précédent, en tenant compte des résultats expérimentaux utilisés pour la courbe maîtresse et en y ajoutant les résultats obtenus avec un ou deux balayages en amplitude $\Delta\gamma$ à fréquence et température fixée. Pour comparaison, l'identification du modèle où les paramètres α_i sont indépendants est ajoutée.

La Figure 59 illustre la réponse des modèles à α_0 unique et α_i indépendants dans le cadre d'un balayage en amplitude à 20°C et 3 Hz.

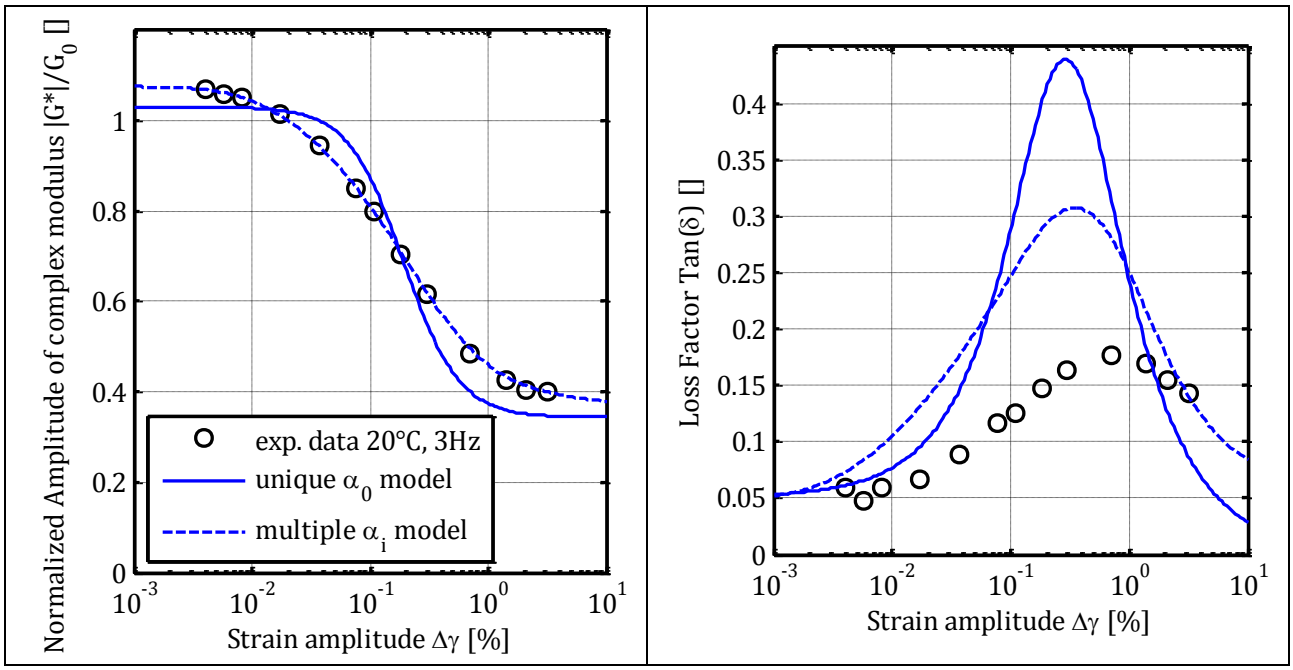


Figure 59 : Identification des modèles α_0 et (α_i) sur un balayage d'amplitude à 20°C, 3 Hz pour le joint silicone

L'évolution du module dynamique est particulièrement bien rendue dans le cas des α_i indépendants grâce au grand nombre de paramètres ajustables. Le rendu du modèle à α_0 reste toute de même assez honorable étant donné l'introduction d'un seul paramètre supplémentaire par rapport au modèle de Maxwell généralisé classique. La différence est plus flagrante pour le facteur de perte ou le modèle à α_0 unique présente une surestimation plus marquée que dans le cas des α_i indépendants.

L'écart entre les deux modèles se creuse encore si un balayage à 125°C, 3 Hz (équivalent à un balayage à 20°C, $1.4 \cdot 10^{-11}$ Hz) est ajouté dans les données à considérer pour la régression. La Figure 60 montre que le modèle α_0 unique ne permet qu'une seule valeur de l'amplitude du module dynamique aux grandes amplitudes de déformation, tandis que rendre les α_i indépendants permet de palier ce défaut. En revanche, l'apport de l'indépendance des α_i sur le facteur de perte n'est pas plus élevé que dans le cas d'un seul balayage. Les deux modèles prévoient le pic de $\tan\delta$ relativement en accord avec les données expérimentales (l'amplitude de déformation au pic est légèrement sous-estimée).

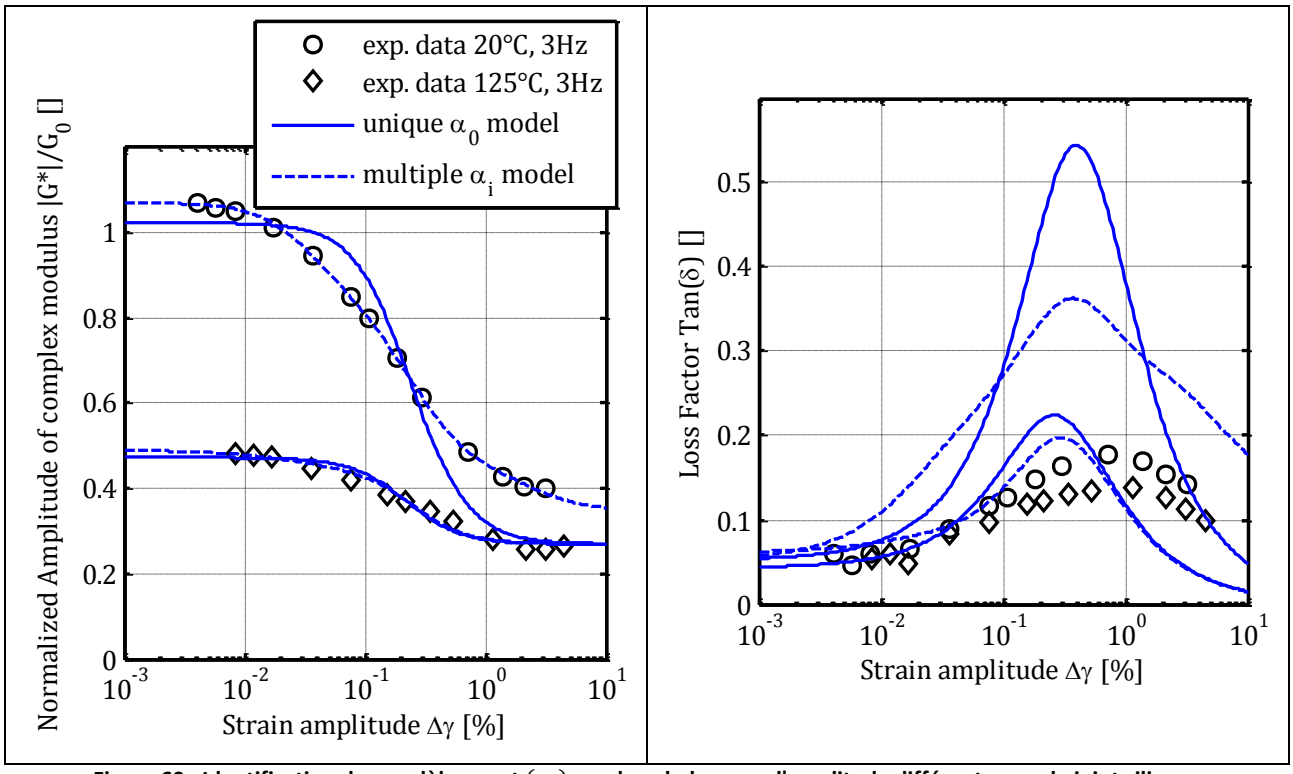


Figure 60 : Identification des modèlesα_0 et (α_i) sur deux balayages d'amplitude différents pour le joint silicone

Dans le cas du modèle aux α_i indépendants, la répartition des paramètres α_i de chaque branche de Maxwell est illustrée Figure 61 pour la régression d'un seul ou de deux balayages d'amplitude de déformation. Il est clair que les α_i restent assez faibles sauf pour quelques branches pour lesquels ils explosent. L'effet Payne n'est porté que par un nombre relativement réduit de branches dans le modèle utilisé.

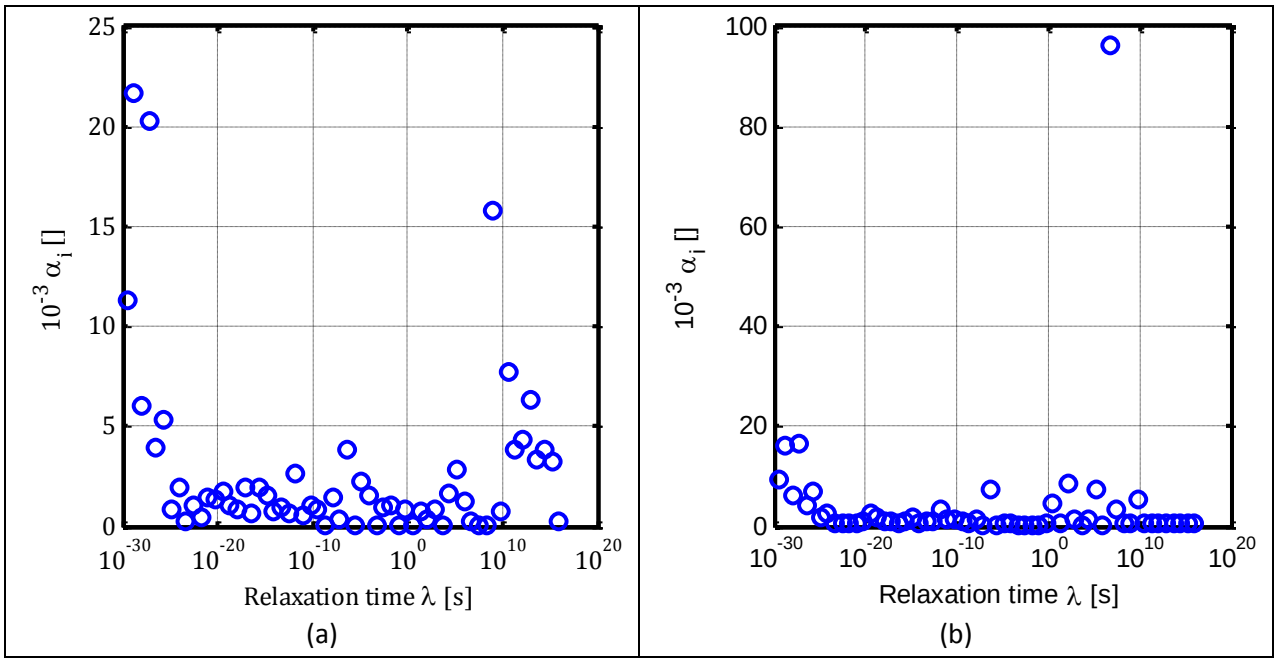


Figure 61 : Répartition des (α_i) pour la régression avec un (a) ou deux (b) balayage(s) d'amplitude pour le joint silicone

D'autre part, la présence d'un pic était intuitivement attendue pour

$$\lambda = 1/\omega = 1/(2\pi f) = \begin{cases} 5.3 \cdot 10^{-2} \text{ s pour } f = 3 \text{ Hz} \\ 1.1 \cdot 10^{10} \text{ s pour } f = 1.4 \cdot 10^{-11} \text{ Hz} \end{cases}$$

Or, pour un seul balayage d'amplitude, le pic est plutôt aux alentours de 10^{10} s au lieu de 10^{-2} s. Dans le cas des deux balayages, il y a non pas deux pics distincts à 10^{-2} s et 10^{10} s mais un seul pic autour de la valeur intermédiaire de 10^{7} s (l'amplitude de ce pic est d'ailleurs bien plus importante que pour un seul balayage). Enfin, il apparaît délicat de postuler une quelconque densité de répartition des α_i dans un objectif de régularisation du modèle à la seule vue des graphes de cette Figure 61. Ces remarques confirment la nécessité de balayages supplémentaires à différentes fréquences réduites pour obtenir une identification fiable des paramètres α_i, les valeurs obtenues avec seulement un ou deux balayages étant à considérer avec beaucoup de prudence. L'idéal serait sans doute un balayage supplémentaire par élément du modèle de Maxwell, ce qui implique un protocole expérimental beaucoup plus long et complet que celui mis en œuvre dans ce travail de thèse. Néanmoins, ce modèle présente une réelle efficacité pour correspondre aux essais expérimentaux, et deux autres avantages non-négligeables :

- une cohérence avec le second principe de la thermodynamique ;
- une formulation dans le domaine temporel.

De même, l'effet Payne a été investigué pour le joint polyimide. Etant donné sa plus grande rigidité, le couple maximum du rhéomètre n'a pas permis d'atteindre l'asymptote du module $|G^*|$ aux grandes amplitudes $\Delta\gamma$. L'identification a été menée sur les résultats obtenus mais ne rend pas bien compte du comportement aux hautes amplitudes. En particulier, le pic du facteur de perte sur la Figure 62 est prédit par le modèle à une amplitude plus faible que celle que l'on peut extrapoler des résultats expérimentaux.

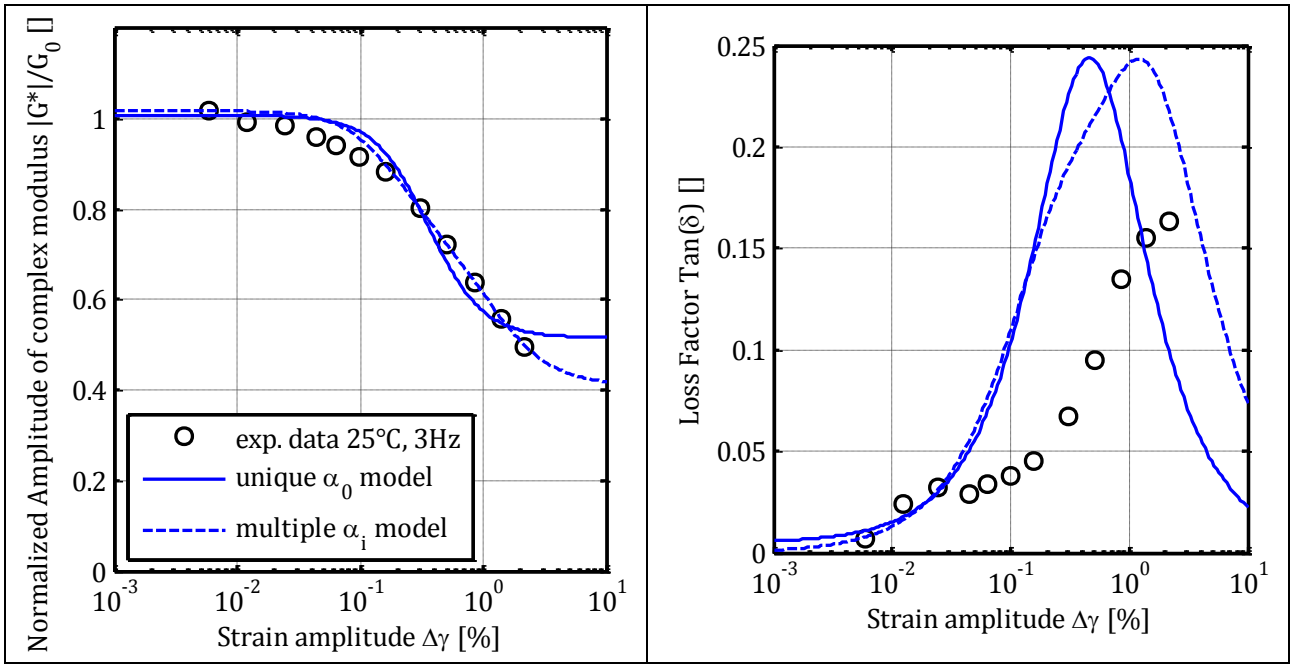


Figure 62 : Identification des modèles α_0 et (α_i) sur un balayage d'amplitude à 25°C,3 Hz pour le joint polyimide

Enfin, les commentaires sur la répartition des (α_i) identifiés indépendamment et affichés Figure 63 sont similaires à ceux sur le joint silicone : l'effet Payne est porté majoritairement par un seul élément de Maxwell, dont le temps de relaxation ($\sim 10^{15}$ s) ne correspond clairement pas à la fréquence réduite du balayage ($\sim 10^{-5}$ Hz).

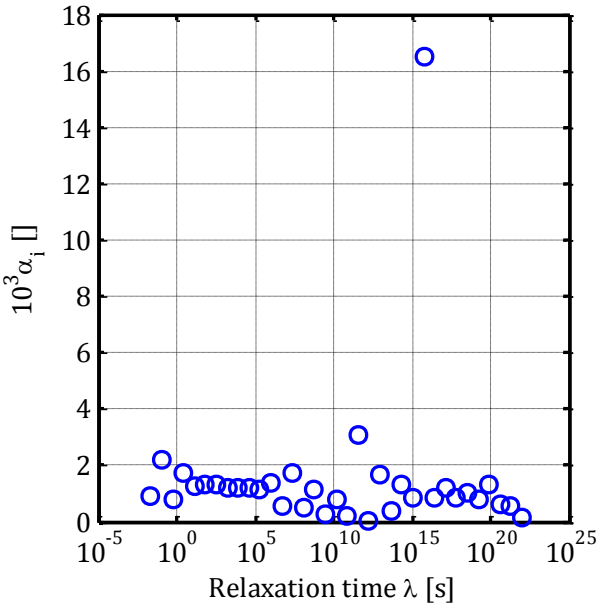


Figure 63 : Répartition des (α_i) pour la régression avec un balayage d'amplitude pour le joint polyimide

3.2.3 Influence de la pression hydrostatique

L'influence de pression hydrostatique p a été étudiée sur la réponse en cisaillement des joints adhésifs. A cette fin, les tests classiques de DMA en torsion sont effectués en y superposant une force statique de direction normale au plan du joint. Le contrôle de la force normale par le rhéomètre MCR 502 n'est malheureusement pas optimal pour des échantillons très rigides en traction axiale tels que les assemblages collés de cette étude. En effet, la souplesse d'une poutre de longueur L de section A et de matériau de caractéristiques mécaniques (E, ν) vaut $S = L/EA$, donc la souplesse de l'échantillon entier vaut

$$S_{échantillon} = S_{tiges} + S_{substrats} + S_{joint}$$

$$= \frac{L_{tiges}}{E_{acier} \times A_{tiges}} + \frac{L_{substrats}}{E_{aluminiun} \times A} + \frac{h}{E_{joint} A}$$

Les deux premiers termes sont petits en raison de E_{acier} et $E_{aluminium}$ élevés. Le troisième reste également très limité en raison de la finesse de l'épaisseur du joint h. Or, le rhéomètre est optimisé pour des barreaux de plusieurs centimètres de longueur composés de matériau solide souple. La plage de force normale balayée a donc été réduite à maximum 10 N (correspondant à une contrainte normale de $0{,}3$ MPa) en raison de vibrations aléatoires de type bruit blanc générées au-delà par le rhéomètre. Comme pour les autres essais, l'effet Mullins a été préalablement évacué et la réponse en balayage en

force normale s'est avérée reproductible dès le premier essai tant que la stabilité du rhéomètre reste satisfaisante.

Pour un matériau incompressible comme une matrice silicone dont la dilatation dans un plan est interdite $\varepsilon_{11} = \varepsilon_{22} = 0$, alors un chargement en contrainte normale σ_{33} résulte directement en un état de sollicitation hydrostatique $\sigma_h = \sigma_{33}$ et le joint ne s'aplatit pas car $\mathrm{tr}\,\varepsilon = 0$ d'où $\varepsilon_{33} = 0$ (cf. paragraphe 1.3). La Figure 64 montre la variation relative de l'amplitude du module et du facteur de perte en fonction de la contrainte normale σ_{33} à 20°C et 20 Hz pour le joint silicone : comme prévu par l'équation FMT présentée dans l'état de l'art en 3.1.4, le joint se rigidifie en cisaillement quand la pression hydrostatique $p = -\sigma_h$ augmente, au contraire il s'assouplit quand la pression diminue. Une régression linéaire donne

$$|G^*|(p) = |G^*|(0)\left(1 + \frac{p}{p_0}\right) \text{ avec } p_0 = 3.2\ MPa$$

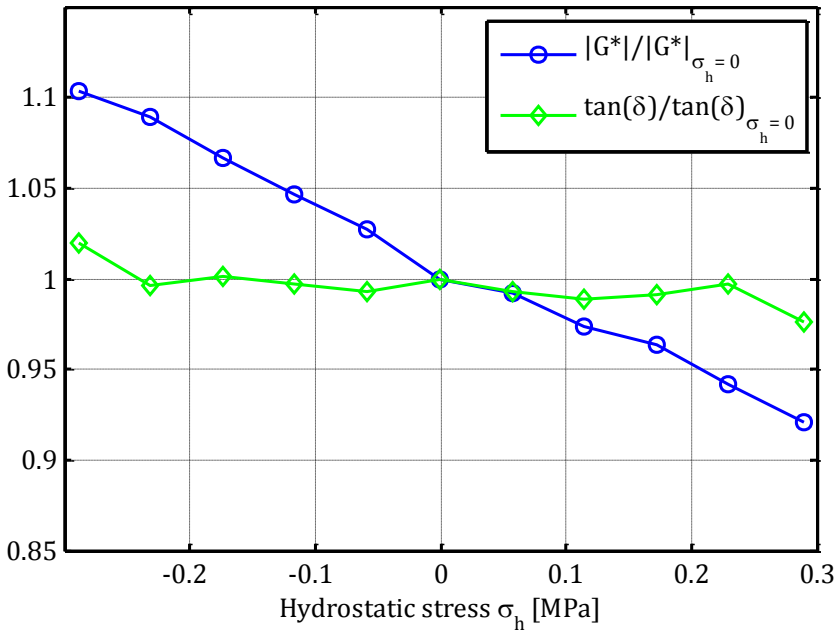


Figure 64 : Influence de la contrainte hydrostatique σ_h sur le module et le facteur de perte du joint silicone pour $T = 25$°C, $f = 1$ Hz

Le facteur de perte n'évolue pas significativement sur le domaine de contrainte explorée, sauf aux extrémités de ce domaine. Cette variation aux alentours de $p = \pm 0{,}3$ MPa n'est pas franchement reproductible et reste largement dans le domaine d'incertitude de mesure du $\tan\delta$ (cf courbe maîtresse de la Figure 52 où le facteur de perte vaut $0{,}06 \pm 0{,}005$ à cette fréquence et température, c'est-à-dire 8 % d'incertitude). Il sera donc considéré que le facteur de perte ne varie pas sur la plage de pression.

Pour rendre compte de ces observations avec un modèle de Maxwell dans le cadre particulier des joints adhésifs, la rigidité G_i de chaque élément pourrait être rendue dépendante de la pression hydostatique :

$$G_i(p) = G_i(0)\left(1 + \frac{p}{p_i}\right)$$

avec les coefficients p_i à identifier de manière analogue aux paramètres α_i utilisés dans la partie 3.2.2 précédente. Un modèle simplifié ne nécessitant qu'un seul balayage en pression serait $\forall i, p_i = p_0$. Dans tous les cas, le respect du second principe de cette modification du modèle de Maxwell reste à démontrer.

Quoi qu'il en soit, cet effet de la pression ne se retrouve pas sur le joint polyimide. En effet la Figure 65 montre que l'amplitude du module reste constante sur la plage de contrainte visitée à température ambiante. A 200°C, le module esquisse un début de dépendance à la contrainte normale puisqu'une régression linéaire donne:

$$|G^*|(\sigma_{33}) = |G^*|(0)\left(1 + \frac{\sigma_{33}}{\sigma_0}\right) \text{ avec } \sigma_0 = 27 \text{ MPa}$$

Cette valeur de σ_0 reste trop élevée par rapport à une plage de contrainte explorée pour pouvoir raisonnablement conclure. L'évolution du facteur de perte se trouve être assez erratique mais toujours dans la plage d'incertitude, sachant que le facteur de perte vaut $0{,}02 \pm 0{,}005$ à température ambiante (soit $25\ \%$ d'incertitude) comme à 200°C (comme illustré Figure 53).

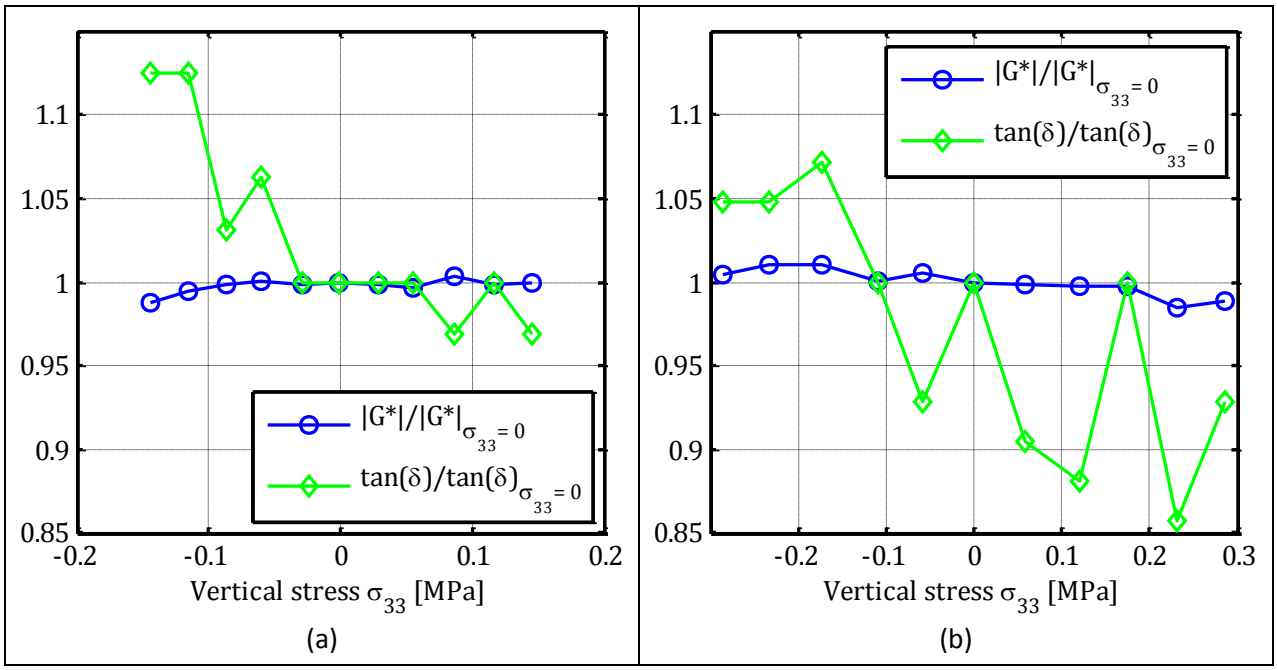


Figure 65 : Influence de la contrainte normale σ_{33} sur le module et le facteur de perte du joint polyimide pour $T = 25$°C (a) et $T = 200$°C (b), $f = 1$ Hz

Il faut noter ici que l'incompressibilité de la matrice polyimide, dans une phase vitreuse jusqu'à 250°C, est beaucoup plus discutable. En effet, l'étude de Bauer et Farris [61] montre que le coefficient de Poisson de films en polyimide varie à température ambiante de $\nu = 0{,}35$ à l'état libre de contrainte à $\nu = 0{,}48$ pour une déformation dans le plan de $5\ \%$. Au niveau des tests de caractérisation effectués, l'amplitude de déformation reste en-dessous de $0{,}1\%$ (excepté lors de l'étude sur l'effet Payne), d'où une matrice qui peut être a priori considérée compressible aux petites déformations ($|\Delta\gamma| \leq 1\ \%$), comme d'ailleurs la plupart des réseaux polymères thermodurcissables (polyimides, epoxy,

polyuréthanes…). D'autre part, les cavités présentes dans le joint le rendent structurellement plus compressible.

Ainsi, une sollicitation normale σ_{33} sur le joint résulte en une contrainte hydrostatique $\sigma_h = \frac{(1+\nu)}{3(1-\nu)}\sigma_{33}$, c'est-à-dire pour $\nu = 0{,}35 : p = -\sigma_h = 0{,}70 \cdot \sigma_{33}$.

Les différents points soulignés pendant cette analyse sur la force normale suggèrent que l'influence de la pression hydrostatique sur les joints adhésifs est régie par un ou plusieurs des points suivants :

- la nature vitreuse ou caoutchoutique du polymère : en effet, le silicone est déjà largement caoutchoutique à température ambiante alors que le polyimide reste vitreux jusqu'à environ $250℃$.
- la nature principalement élastique ou viscoélastique du polymère : en effet, le silicone qui présente le plus cet effet de la contrainte normale a un facteur de perte deux à trois fois plus élevé que le joint polyimide aux conditions de test, et le polyimide semble commencer à sentir l'influence de la force normale quand la température du joint se rapproche de sa température de transition vitreuse.
- la compressibilité du polymère : le joint silicone est a priori quasiment incompressible contrairement au joint polyimide à température ambiante.

Le prochain chapitre permettra d'avancer des éléments de réponse en montrant l'influence de la pression hydrostatique même dans le cadre de simulations purement hyperélastiques sans prise en compte de la viscosité du matériau.

3.3 Conclusion

Ce chapitre résume les principaux travaux effectués dans cette thèse pour caractériser le comportement viscoélastiques des joints silicone et polyimide. A température ambiante, ces deux polymères présentent des comportements différents puisque le joint silicone est dans le régime caoutchoutique alors que le joint poyimide est dans l'état vitreux. Néanmoins, au cours de la vie de l'outil industriel, la plage de température vue par les joints adhésifs est particulièrement large (températures négatives en stockage et températures basses à très hautes en forage et production) et s'approche de la température de transition vitreuse des deux matériaux. La viscosité doit donc être prise en compte pour obtenir une simulation fiable de la réponse des joints aux sollicitations qu'ils verront durant leur vie en service. Par ailleurs, le facteur de perte se révèlera un élément important lors de l'étude en fatigue. Il justifie donc l'approche viscoélastique choisie, bien que les deux matériaux soient relativement éloignés de leur température de transition vitreuse à température ambiante.

Une caractérisation linéaire sous forme de courbes maîtresses a permis d'identifier le comportement des joints sur plusieurs dizaines de décades de fréquences. L'influence de l'amplitude de déformation (aussi connue sous le nom d'effet Payne) a été investiguée et intervient à partir de déformations de l'ordre du pourcent. Les amplitudes appliquées durant les essais en fatigue allant jusqu'à la trentaine de pourcents,

la prise en compte de cette effet est donc nécessaire et a été modélisée à l'aide d'un modèle existant dont la formulation est temporelle et respecte la thermodynamique. Enfin, la pression étant un autre paramètre de chargement important de l'application industrielle, son influence sur les joints adhésifs a été étudiée. Il a été trouvé que seul le joint adhésif silicone (caoutchoutique) présente une dépendance marquée à la pression hydrostatique, alors que le joint polyimide (vitreux à température ambiante) n'a pas montré de sensibilité particulière à la pression jusqu'à $200°C$.

L'influence d'une prédéformation statique sur le comportement du joint n'a pu être étudiée avec les moyens expérimentaux à disposition dans cette thèse, et constitue une piste d'approfondissement du travail exposé dans ce chapitre. Enfin, l'évolution du comportement avec le vieillissement du matériau n'a pas pu être abordée non plus dans ce chapitre. Le Chapitre 6 présentera quelques résultats sur ce sujet dans le cadre de l'étude en fatigue. Le comportement à l'état vieilli mériterait néanmoins d'être investigué avec les mêmes tests expérimentaux que ceux utilisé pour étudier le comportement à l'état neuf.

Chapitre 4 Etude numérique de la microstructure

Les joints adhésifs, tant silicone que polyimide, présentent au niveau microstructural une très forte hétérogénéité due à la présence des particules d'argent conductrices. La complexité de la structure a deux origines distinctes :

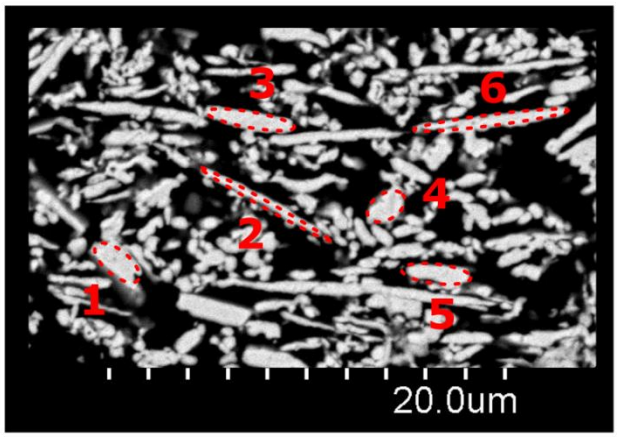
- le contraste de rigidité entre la matrice et les particules, qui peut être très élevé (supérieur à 10^4 dans le cas du joint silicone) ;
- la forte anisotropie de la forme des particules, alliée à leur répartition non pas aléatoire mais plutôt ordonnée dans un voisinage de la particule et qui donne donc un matériau localement (à l'échelle de quelques dizaines de microns) anisotrope.

Ce chapitre se propose d'étudier l'influence de cette microstructure sur la réponse en cisaillement des joints adhésifs. Deux aspects différents de l'homogénéisation seront étudiés :

- l'évolution des grandeurs homogénéisées en fonction de différents paramètres de la microstructure ;
- la répartition des contraintes dans la matrice en fonction de ces mêmes paramètres.

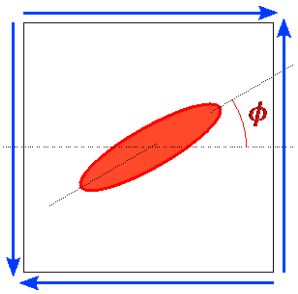
Les images MEB de la microstructure des joints polyimide (Figure 7) et silicone (Figure 8) du Chapitre 1 montrent la complexité et la non-régularité des contours des charges ressemblant à des flocons ou à des lamelles. Ce genre de forme est assez difficilement gérable numériquement car les arêtes et les coins des particules génèrent inévitablement des singularités de contraintes qui peuvent mener à des difficultés de convergence des calculs. D'autre part, ces formes complexes et anisotropes rendent difficile la génération numérique de formes géométriques véritablement représentatives (ce qui nécessite en outre un outil d'estimation de cette représentativité). Enfin, générer numériquement un Volume Elémentaire Représentatif (VER) requiert de mesurer des distances entre objets géométriques pour vérifier l'absence d'interpénétration, donc une complexité trop importante de leur forme rendrait long et compliqué le calcul de cette distance. Il a donc finalement été choisi de prendre en compte cette forme anisotrope de flocons par l'objet géométrique le plus simple qui peut présenter une anisotropie : l'ellipsoïde. Cette approximation implique automatiquement que tous les résultats obtenus dans cette partie sont à considérer de manière qualitative et non quantitative. Nous nous intéresserons donc plus aux évolutions relatives des différentes quantités qu'à leurs valeurs absolues.

La Figure 66 suivante, zoom de la Figure 7 (b) montrant une vue en coupe du joint polyimide, présente quelques charges relevées au hasard avec leurs dimensions caractéristiques et leurs rapports d'aspects. Le grand axe de l'ellipse est noté d_a, le petit axe est noté d_c et le rapport d'aspect w est défini comme étant égal à d_c/d_a.



Charge	d_a (µm)	d_c (µm)	d_b/d_c
1	3,1	1,4	0,45
2	7,6	0,6	0,07
3	4,5	1,0	0,22
4	2,0	1,4	0,71
5	3,4	1,1	0,33
6	7,7	0,8	0,11

Figure 66 : Approximation des charges argent en particules ellipsoïdales, dimensions caractéristiques



La distribution du rapport d'aspect w des charges et de leur orientation ϕ par rapport à l'horizontale (illustrée ci-contre) a été investiguée avec le logiciel Mathematica® puis le logiciel open-source de traitement d'image Fiji (version améliorée d'ImageJ). Le contact entre les charges ainsi que la vision des charges en dessous de la matrice à cause de sa pénétration par le faisceau d'électrons du MEB rend l'exercice difficile. Le résultat reste pauvre, car le traitement d'image agglomère les charges entre elles quels que soient les paramètres utilisés. La Figure 67 montre le résultat du traitement d'une photo MEB du joint polyimide avec le logiciel Fiji. L'ellipse la plus proche de chaque charge identifiée y a été tracée en rouge. La comparaison entre les charges en gris clair sur la figure et les ellipses équivalentes en rouge illustre bien les fortes limitations de la méthode pour des contours de formes aussi complexes et une fraction volumique aussi importante. De plus, la netteté des particules est légèrement affaiblie par la pénétration du faisceau dans la matrice polymère.

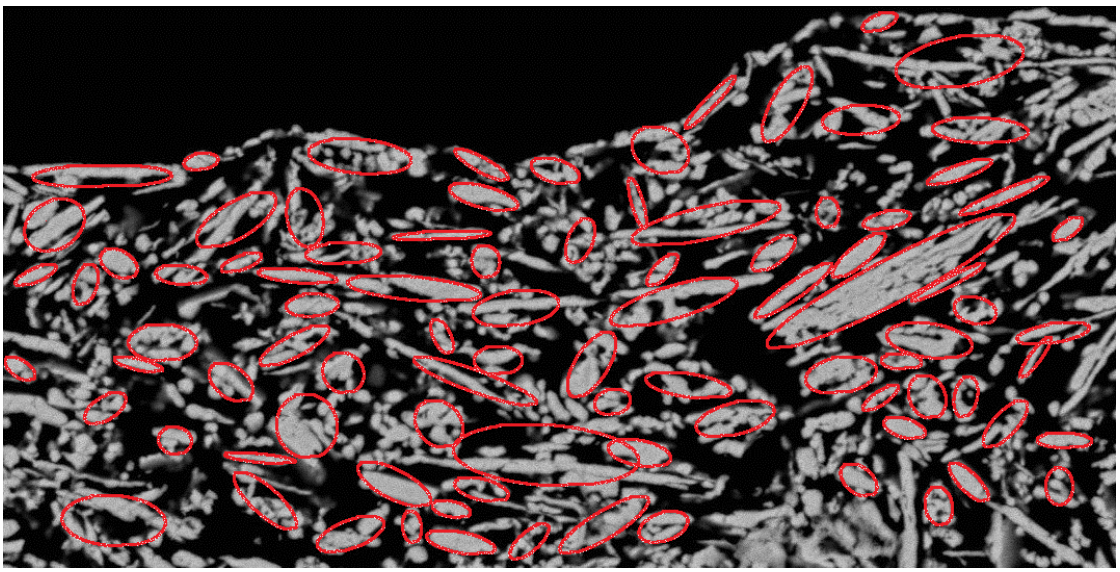


Figure 67 : Identification des particules dans le joint polyimide avec le logiciel Fiji

Il est illusoire de vouloir obtenir les distributions précises et réelles de rapport d'aspect et d'orientation des particules dans le joint à partir de ce genre de résultat. Néanmoins quelques tendances qualitatives peuvent toujours être soulignées. La Figure 68 présente les histogrammes des rapports d'aspect w et d'orientation ϕ des 90 charges identifiées avec Fiji et entourées en rouge sur la Figure 67 :

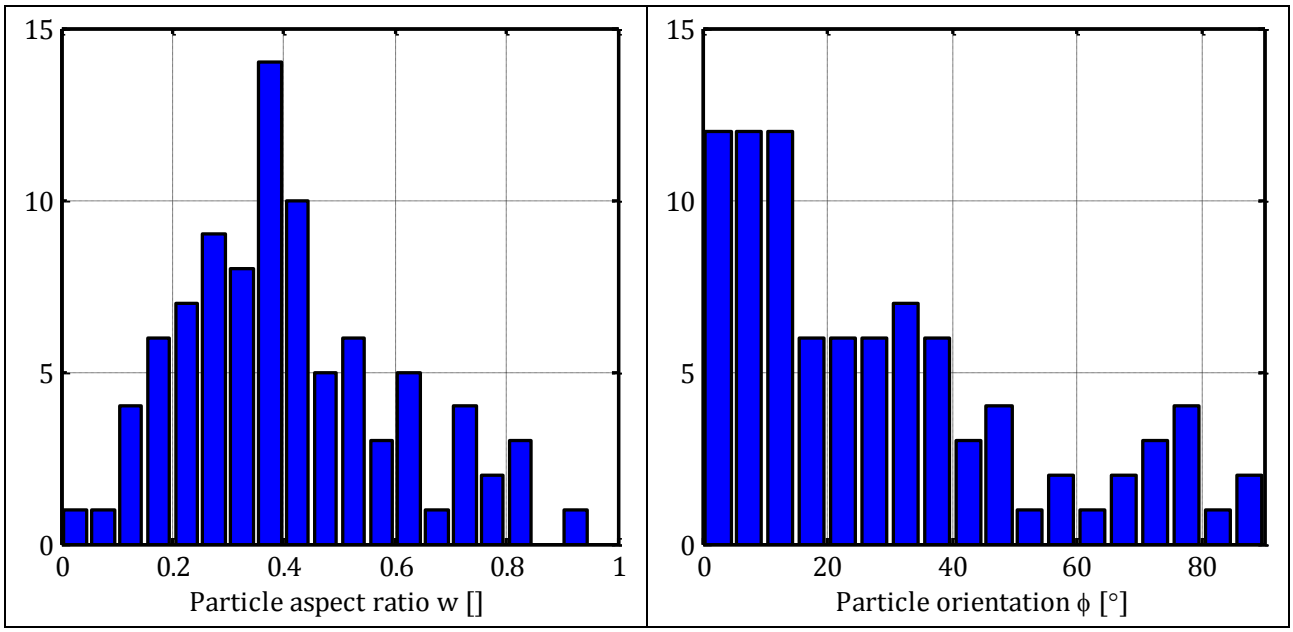


Figure 68 : Histogrammes des rapports d'aspects et d'orientation des charges identifiées sur la Figure 67

Les charges équivalentes identifiées ont un rapport d'aspect typique autour de $w \sim 0{,}35$ à $0{,}4$, et elles sont préférentiellement orientées horizontalement, proche de $\phi = 0°$.

La génération du VER cubique a été effectuée grâce à un algorithme de remplissage séquentiel aléatoire (Random Sequential Addition RSA, voir [62]) écrit sous Matlab®, qui tient compte de la périodicité imposée au VER. Les ellipsoïdes générés sont des sphères aplaties (« oblates ») ayant pour demi-grand axe $10\ \mu m$ et pour demi-petit axe $3\ \mu m$. Le rapport d'aspect vaut donc $0{,}3$, ce qui est moins faible que les rapports d'aspects constatés « à l'œil » sur les images MEB pour les particules les plus allongées (aux alentours de $0{,}1$), mais cohérent avec les résultats du traitement d'image (cf Figure 68). Ce choix a également été motivé par la perte d'efficacité drastique de l'algorithme RSA pour les faibles rapports d'aspects (typiquement en-dessous de $0{,}3$). Tous les ellipsoïdes sont générés avec des orientations identiques horizontales, engendrant l'isotropie dans le plan Oxy horizontal. Ce choix est en accord avec l'ordre constaté au niveau local, et permettra entre outre d'étudier l'influence de l'orientation ϕ des particules sur la réponse du VER. Afin d'augmenter le taux de charges et conformément aux observations MEB montrant une répartition polydisperse, des sphères de diamètre $6\ \mu m$, $4\ \mu m$ et $3\ \mu m$ ont été ajoutées en différentes proportions. La fraction volumique finale atteinte est $f = 53\ \%$. Les fractions volumiques des différents types de particules sont listées dans le Tableau 10 :

Catégorie	Dimensions	Fraction volumique
Ellipsoïde	demi-grand axe 10 µm demi-petit axe 3 µm	0,40
Sphère	rayon 3 µm	0,04
Sphère	rayon 2 µm	0,06
Sphère	rayon 1,5 µm	0,03

Tableau 10 : Fractions volumiques des différents types de particules

Le côté du cube a été fixé à $L = 25$ µm bien que le grand diamètre des ellipses soit à peine plus faible (20 µm), car cette distance est de l'ordre de grandeur de l'épaisseur de l'application industrielle.

Afin d'éviter des problèmes de maillage ou de convergence de calcul, l'algorithme vérifie que les particules générées sont espacées d'une distance minimale de $d_{tol} = 0{,}3$ µm sous peine de rejet. Il faut noter que ce paramètre numérique peut avoir une véritable influence sur les résultats obtenus, comme souligné par Gusev dans [63] en particulier pour le module de cisaillement. D'autre part, il est clair que les particules sont en contact franc dans le joint afin de conduire le courant électrique. Ce paramètre d_{tol} n'a donc aucune justification physique mais a été introduit uniquement à des fins numériques. La Figure 69 montre le VER périodique finalement obtenu avec le chargement de cisaillement γ_{13} illustré par les flèches bleues :

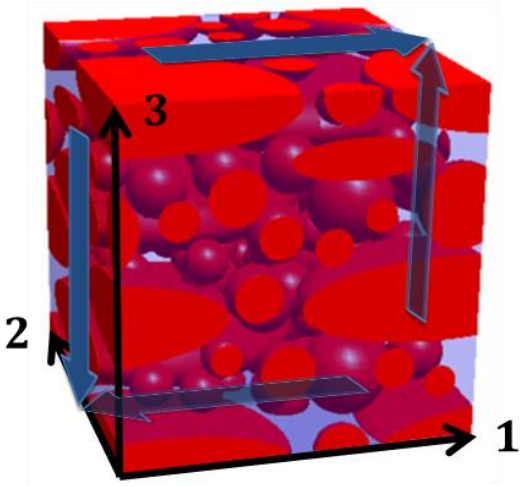


Figure 69 : VER généré par la méthode RSA avec les particules en rouge et la matrice en bleu transparent, et chargement de cisaillement γ_{13} illustré avec des flèches bleues

Un dernier point à aborder pour la génération de ce VER est celui de la distribution spatiale des charges. En effet, des charges ellipsoïdales alignées entraînent une anisotropie de la distribution spatiale. En particulier, il est intuitivement attendu que les directions 1 et 2 soient équivalentes et différentes de la direction 3 (cf Figure 69 ci-dessus pour la convention des axes). Un moyen de quantifier cette anisotropie est l'utilisation de fonctions de description statistique telle que la fonction de corrélation à 2 points [62] : cette fonction $S_2(r)$ de la distance $r = \left|\underline{x}_2 - \underline{x}_1\right|$ entre deux points $\underline{x}_1$ et $\underline{x}_2$ exprime la probabilité que les deux points appartiennent tous les deux à la phase d'inclusion. La propriété suivante est donc toujours vérifiée : $S_2(0) = f$. Concernant le comportement de S_2 pour r grand, $S_2(\infty) = f^2$ pour un matériau aléatoire et $S_2(r)$ périodique pour un matériau périodique (les périodes spatiales du matériau

et de S_2 sont identiques pour une direction donnée). Enfin, la distance moyenne entre deux particules (toujours pour une direction donnée) correspond par définition de S_2 au premier maximum local de $S_2(r)$ pour $r > 0$. Le calcul de S_2 a été effectué avec un algorithme FFT dans les trois directions principales pour $r \in [0\,;L]$ sachant leur périodicité égale au côté L du VER, et les résultats sont affichés Figure 70 :

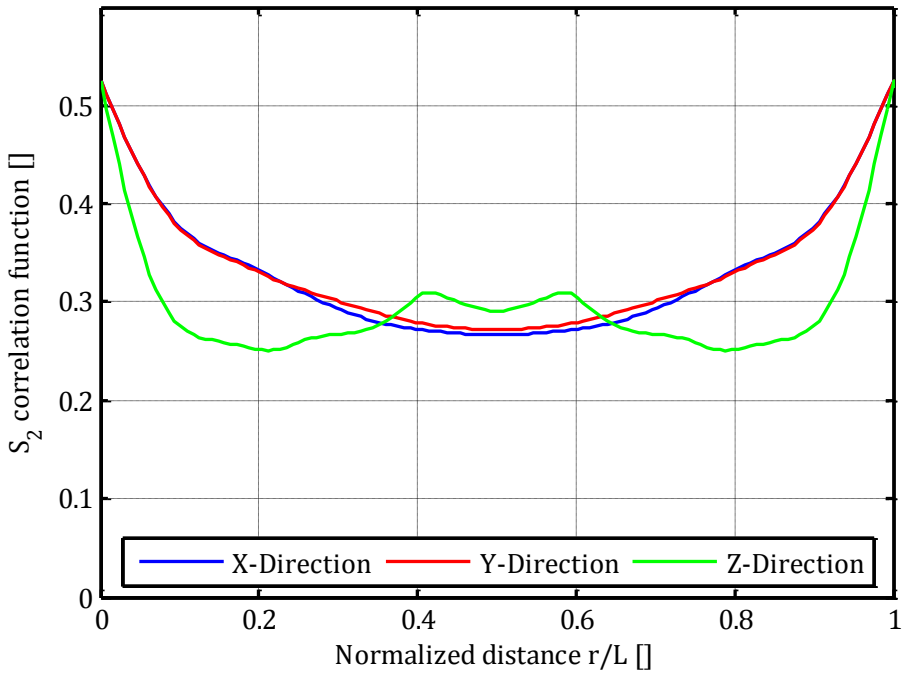


Figure 70 : Fonction de corrélation à deux points S_2 du VER pour les trois directions principales

Les allures de S_2 pour les directions 1 et 2 sont très proches puisque leur différence relative reste inférieure à $4\,\%$ pour $0 \leq r/L \leq 1$, confirmant l'isotropie dans le plan horizontal Oxy. Elles ne présentent pas de maximum local à l'intérieur du segment, la distance moyenne entre les charges dans ce plan reste de L. En revanche, S_2 présente bien un minimum local dans la direction verticale 3 pour $r/L = 0{,}415$, ce qui induit une distance moyenne entre particules de l'ordre de $0{,}415\ L = 10{,}4\ \mu\text{m}$ dans la direction verticale. Ceci correspond donc à un rapport d'aspect de la distribution spatiale des charges de $w^d = 0{,}415$. Ce rapport est strictement inférieur de $21\,\%$ à la fraction volumique $f = 0{,}53$ utilisée dans la génération du VER. Or, comme il sera évoqué dans le paragraphe 4.1.1 suivant, la condition de non-interpénétration de particules ellipsoïdales s'écrit $w^d \geq f$. Le résultat obtenu ci-dessus est atteint par l'introduction de particules sphériques. En effet, $w^d \geq f_{ellipsoïdes} = 0{,}40$ (cf Tableau 10).

Les calculs numériques menés et présentés dans ce chapitre prennent en compte uniquement deux phases (la matrice et les charges) sans interphase à la surface des charges, et l'adhésion à l'interface entre matrice et charges est considérée parfaite (pas de décollement ni de glissement de la matrice à la surface des charges, donc pas de prise en compte de réarrangement des charges). Cette simplification résulte de l'absence totale de connaissances sur le comportement de l'interphase et de l'interface. D'autre part, les calculs numériques restent élastiques linéaires ou hyperélastiques, sans prise en compte de la viscosité de la matrice. Cette simplification repose sur l'hypothèse de séparation des variables

spatiales et temporelle pour les champs de contrainte et déformation dans le VER, dans le cadre restrictif des chargements proportionnels :

$$\sigma(\underline{x}, t) = g(\underline{x}) \times h(t)$$

Ce choix est fort et sans doute grossier dans certains cas de chargements complexes, puisqu'une éventuelle redistribution des contraintes/de la déformation par viscosité en présence de gradients dans la matrice est rendue impossible. Il sera néanmoins justifié avec un calcul viscoélastique par Elements Finis pour un essai de relaxation, comme celui effectué en annexe de l'article constituant la section 2.1. Cette approximation implique par ailleurs que le tenseur fonction de la variable spatiale $g(\underline{x})$ est principalement impacté par les rigidités G_i des branches de Maxwell alors que la fonction du temps $h(t)$ dépend de leurs constantes de relaxation λ_i. Enfin, elle permet de comparer les résultats obtenus avec des schémas classiques d'homogénéisation élastique en champ moyen.

Enfin, les cavités présentes après polymérisation dans les joints polyimide ne seront pas étudiées spécifiquement dans ce chapitre. Il est plutôt considéré que ces cavités sont représentatives du processus de collage et non du matériau lui-même : en effet, les Figure 35 et Figure 41 montrent que la géométrie et la répartition des cavités dépendent très fortement de la surface collée et des étapes suivies dans le processus de collage. En particulier, un joint de largeur très faible peut ne présenter aucune cavité. Les modèles d'homogénéisation de milieux poreux sont en outre seulement un cas particulier des modèles d'homogénéisation de milieux particulaires présentés et utilisés dans ce chapitre. Ils n'apportent donc pas spécialement d'éléments nouveaux à la discussion.

Dans une première partie, les modèles d'homogénéisation utilisés dans cette étude seront présentés. Puis leurs résultats seront comparés d'abord pour des lois élastiques linéaires. Enfin, les résultats obtenus par des calculs FEM hyperélastiques seront détaillés.

4.1 Présentations des modèles analytiques et des méthodes numériques d'homogénéisation utilisées

L'homogénéisation de milieux hétérogènes de type inclusions-matrice trouve justement une de ses motivations dans l'étude des polymères chargés, et peut être étudiée selon différentes approches :

- L'homogénéisation en champ moyen : elle est principalement basée sur les résultats des travaux d'Eshelby pour une inclusion ellipsoïdale dans une matrice infinie. Elle présente l'avantage d'avoir des résultats analytiques directement accessibles pour des inclusions ellipsoïdales. C'est une des raisons pour lesquelles il a été choisi d'approximer les particules d'argent avec des formes ellipsoïdales dans notre approche. L'homogénéisation en champ moyen n'introduit aucune échelle de longueur dans la résolution du problème, mais uniquement les rapports d'aspects et les orientations éventuelles des particules.
- L'homogénéisation périodique : le matériau est censé être un enchaînement périodique d'une cellule de base sur laquelle est résolu le problème d'homogénéisation. Cette méthode suppose

donc la connaissance d'une cellule de base représentative du matériau. Cette représentativité sera vérifiée pour le VER généré introduit plus haut. Le problème n'est donc à résoudre que sur cette cellule de base en tenant compte des conditions périodiques en déplacement et contraintes. La résolution peut être analytique dans les cas les plus simples, le plus souvent numériques à l'aide de la Méthode des Éléments Finis (FEM) ou encore de la transformée de Fourier (FFT).

- L'homogénéisation asymptotique, qui ne sera pas abordée dans cette étude. Dans cette méthode, les champs mécaniques ont une périodicité à l'échelle microstructurale mais peuvent varier sur des échelles de longueur mésoscopiques intermédiaires entre l'échelle de la microstructure et celle du domaine macroscopique.

4.1.1 Homogénéisation en champ moyen

4.1.1.1 Résultat fondamental d'Eshelby

Les travaux d'Eshelby dans les années 1950 [64] [65] permettent d'obtenir l'état de déformation final ε_i d'une inclusion ellipsoïdale subissant une transformation libre de contrainte ε_T tout en étant plongée dans une matrice infinie de même rigidité C. En notant avec l'indice i les grandeurs relatives à l'inclusion et l'indice m les grandeurs relatives à la matrice, le problème s'écrit

$$\begin{cases} \sigma_i = \boldsymbol{C} : (\varepsilon_i - \varepsilon_T) = \boldsymbol{C} : \varepsilon_i + \tau \quad \text{avec} \quad \tau = -\boldsymbol{C} : \varepsilon_T \\ \sigma_m = \boldsymbol{C} : \varepsilon_m \end{cases}$$

où la contrainte τ joue le rôle de contrainte de polarisation. Eshelby a prouvé que pour une inclusion ellipsoïdale, les champs de contrainte et déformation sont homogènes dans l'inclusion. Il introduit le tenseur d'Eshelby noté $\boldsymbol{S}^{i\varepsilon}$ tel que

$$\varepsilon_i = \boldsymbol{S}^{i\varepsilon} : \varepsilon_T \quad \text{et donc} \quad \sigma_i = \boldsymbol{C} : \left(\boldsymbol{S}^{i\varepsilon} - \boldsymbol{I}\right) : \varepsilon_T$$

Le tenseur d'Eshelby est adimensionnel et dépend uniquement des propriétés matériaux (le coefficient de Poisson) de la matrice et des rapports d'aspect de l'inclusion. Il est pratique d'introduire le tenseur de Hill noté $\boldsymbol{P}^{i\varepsilon} = \boldsymbol{S}^{i\varepsilon} : \boldsymbol{C}^{-1} = \boldsymbol{S}^{i\varepsilon} : \boldsymbol{S}$ avec $\boldsymbol{S} = C^{-1}$ qui permet d'exprimer ε en fonction de la contrainte de polarisation τ :

$$\varepsilon_i = -\boldsymbol{P}^{i\varepsilon} : \tau$$

Si une déformation à l'infini homogène de la matrice $\varepsilon_\infty = E$ est superposée à ce problème, la déformation dans l'inclusion est la superposition des deux problèmes

$$\varepsilon_i = E + \boldsymbol{S}^{i\varepsilon} : \varepsilon_T = E - \boldsymbol{P}^{i\varepsilon} : \tau$$

De ces résultats découlent directement la solution pour une inclusion hétérogène (appelée pour l'occasion l'inhomogénéité d'Eshelby) de rigidité $\boldsymbol{C}_i$ différente de celle de la matrice $\boldsymbol{C}_m$ quand cette matrice est soumise à l'infini à une déformation homogène $\varepsilon_\infty = E$. En effet le problème s'écrit maintenant

$$\begin{cases} \sigma_i = \boldsymbol{C}_i : \varepsilon_i = \boldsymbol{C}_m : \varepsilon_i + \tau \quad \text{avec} \quad \tau = (\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}_m) : \varepsilon_i \\ \sigma_m = \boldsymbol{C} : \varepsilon_m \\ \varepsilon_\infty = E \end{cases}$$

Le résultat d'Eshelby implique que

$$\varepsilon_i = E - \boldsymbol{P}^{i\varepsilon} : \tau = E - \boldsymbol{P}^{i\varepsilon} : (\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}_m) : \varepsilon_i \quad \text{avec} \quad \boldsymbol{P}^{i\varepsilon} = \boldsymbol{S}^{i\varepsilon} : \boldsymbol{C}_m^{-1} = \boldsymbol{S}^{i\varepsilon} : \boldsymbol{S}_m$$

D'où

$$\varepsilon_i = \left(\boldsymbol{I} + \boldsymbol{P}^{i\varepsilon} : (\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}_m)\right)^{-1} : E$$

4.1.1.2 Localisation des déformations et schémas d'homogénéisation

L'opérateur moyenne $\langle\cdot\rangle$ du champ a sur le volume V est défini comme

$$\langle a \rangle = \frac{1}{V}\int_V a(\underline{x})\mathrm{d}x$$

Considérons un milieu hétérogène d'élasticité $\boldsymbol{C}(\underline{x})$. La moyenne volumique des déformations dans le milieu est notée $\langle\varepsilon(\underline{x})\rangle = E$ et la moyenne volumique des contraintes dans le milieu $\langle\sigma(\underline{x})\rangle = \Sigma$. Les tenseurs de localisation $\boldsymbol{A}$ et $\boldsymbol{B}$ sont définis par

$$\begin{cases} \varepsilon(\underline{x}) = \boldsymbol{A}(\underline{x}) : E \ \text{, d'où} \ \langle \boldsymbol{A}(\underline{x})\rangle = \boldsymbol{I} \\ \sigma(\underline{x}) = \boldsymbol{B}(\underline{x}) : \Sigma \ \text{, d'où} \ \langle \boldsymbol{B}(\underline{x})\rangle = \boldsymbol{I} \end{cases}$$

Le lemme de Hill donne

$$\langle \varepsilon(\underline{x}) : \sigma(\underline{x})\rangle = E : \langle\sigma(\underline{x})\rangle = \langle\varepsilon(\underline{x})\rangle : \Sigma = E : \Sigma$$

Les deux approches duales en déformation et contrainte permettent d'introduire les tenseurs d'élasticité $\boldsymbol{C}^{hom}$ et de souplesse $\boldsymbol{S}^{hom} = \left(\boldsymbol{C}^{hom}\right)^{-1}$ homogénéisés :

$$\begin{cases} \Sigma = \langle\sigma\rangle = \langle \boldsymbol{C} : \varepsilon\rangle = \langle \boldsymbol{C} : \boldsymbol{A} : E\rangle = \langle \boldsymbol{C} : A\rangle : E = \boldsymbol{C}^{hom} : E \ \text{, d'où} \ \boldsymbol{C}^{hom} = \langle \boldsymbol{C} : \boldsymbol{A}\rangle \\ \mathrm{E} = \langle\varepsilon\rangle = \langle \boldsymbol{S} : \sigma\rangle = \langle \boldsymbol{S} : \boldsymbol{B} : \Sigma\rangle = \langle \boldsymbol{S} : B\rangle : \Sigma = \boldsymbol{S}^{hom} : \Sigma \ \text{, d'où} \ \boldsymbol{S}^{hom} = \langle \boldsymbol{S} : \boldsymbol{B}\rangle \end{cases}$$

Pour N phases particulaires ellipsoïdales de fraction volumique f_i d'élasticité $\boldsymbol{C}_i$ d'orientation constante par phase dans une matrice de fraction volumique f_m d'élasticité $\boldsymbol{C}_m$, $\boldsymbol{C}^{hom}$ peut s'écrire

$$\boldsymbol{C}^{hom} = \langle \boldsymbol{C} : \boldsymbol{A}\rangle = f_m \boldsymbol{C}_m : \langle \boldsymbol{A}\rangle_m + \sum_{i=1}^{N} f_i \boldsymbol{C}_i : \langle \boldsymbol{A}\rangle_i$$

$$= \boldsymbol{C}_m + \sum_{i=1}^{N} f_i (\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}_m) : \langle \boldsymbol{A}\rangle_i$$

avec $\langle\cdot\rangle_i$ l'opérateur moyenne sur le volume V_i de la phase i.

Les schémas d'homogénéisation en champ moyen donnent différentes expressions pour les moyennes par phases du tenseur de localisation $\langle \boldsymbol{A} \rangle_i$ $(1 \leq i \leq N)$, basées sur le résultat d'Eshelby abordé dans le paragraphe 4.1.1.1 précédent. Ce choix implique que la déformation dans chaque inclusion est constante, cette hypothèse sera par la suite vérifiée avec des méthodes de calcul en champ complet.

Pour la simplicité des formules, le tenseur $\boldsymbol{T}_i$ suivant est défini pour chaque phase i :

$$\boldsymbol{T}_i = \left(\boldsymbol{P}^{i\varepsilon} + (\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}_m)^{-1}\right)^{-1}$$

Schéma dilué : le schéma dilué considère que les différentes phases d'inclusion n'interagissent pas entre elles (c'est-à-dire que la déformation moyenne est celle dans la matrice $E = E_m$). L'expression des $\langle A \rangle_i$ est donc directement celle trouvée par Eshelby :

$$\langle \boldsymbol{A} \rangle_i = \left(\boldsymbol{I} + \boldsymbol{P}^{i\varepsilon} : (\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}_m)\right)^{-1}$$

D'où

$$\boldsymbol{C}^{dilué} = \boldsymbol{C}_m + \sum_{i=1}^{N} f_i (\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}_m) : \left(\boldsymbol{I} + \boldsymbol{P}^{i\varepsilon} : (\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}_m)\right)^{-1} = \boldsymbol{C}_m + \sum_{i=1}^{N} f_i \boldsymbol{T}_i$$

$$= \boldsymbol{C}_m + \langle \boldsymbol{T} \rangle$$

Le schéma dilué est considéré valide pour des fractions volumiques de particules allant jusqu'à 10% [66].

Schéma de Mori-Tanaka [67] : ce schéma considère cette fois les interactions entre particules, soit $E = f_m E_m + \sum f_i E_i$. L'expression de $\langle \boldsymbol{A} \rangle_i$ se complexifie en

$$\langle \boldsymbol{A} \rangle_i = \left(\boldsymbol{I} + \boldsymbol{P}^{i\varepsilon} : (\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}_m)\right)^{-1} : \left(f_m \boldsymbol{I} + \sum_{i=1}^{N} f_i \left(\boldsymbol{I} + \boldsymbol{P}^{i\varepsilon} : (\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}_m)\right)^{-1}\right)^{-1}$$

D'où après calculs

$$\boldsymbol{C}^{MT} = \boldsymbol{C}_m + \langle \boldsymbol{T} \rangle : \left(f_m \boldsymbol{I} + \langle \boldsymbol{T} : (\boldsymbol{C} - \boldsymbol{C}_m)^{-1} \rangle\right)^{-1}$$

Ce schéma peut être raisonnablement utilisé pour des fractions volumiques jusqu'à $20\ \%$ [68].

Schéma de Ponte-Castaneda-Willis [69] : en complément du schéma de Mori Tanaka, ce schéma prend en compte la distribution spatiale de chaque phase par l'intermédiaire d'un tenseur de Hill supplémentaire $\boldsymbol{P}^{id}$:

$$\langle \boldsymbol{A} \rangle_i = \left(\boldsymbol{I} + \boldsymbol{P}^{i\varepsilon} : (\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}_m)\right)^{-1} : \left(f_m \boldsymbol{I} + \sum_{i=1}^{N} f_i \left(\boldsymbol{I} + (\boldsymbol{P}^{i\varepsilon} - \boldsymbol{P}^{id}) : (\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}_m)\right) : \left(\boldsymbol{I} + \boldsymbol{P}^{i\varepsilon} : (\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}_m)\right)^{-1}\right)^{-1}$$

Ce découplage apparent entre la forme des particules $\boldsymbol{P}^{i\varepsilon}$ et la distribution spatiale $\boldsymbol{P}^{id}$ résulte d'une hypothèse de linéarisation lors du déroulement des calculs de [69]. Si cette hypothèse n'est pas faite, les

deux quantités restent couplées dans le cas général et les expressions deviennent plus complexes [70]. Le rapport d'aspect w^d utilisé pour le tenseur de Hill $\boldsymbol{P}^{id}$ de la distribution spatiale est sensé respecter la non pénétration des inclusions $f \leq w^d \leq f^{-1/2}$ [69]. Néanmoins il a été montré [71] que ce schéma pour des particules ellipsoïdales d'orientation aléatoire respecte les bornes obtenues par approche variationnelle d'Hashin-Shtrickman bien au-delà de la limite de non-pénétration. D'autre part, les schémas PCW et MT correspondent si $\boldsymbol{P}^{id} = \boldsymbol{P}^{i\varepsilon}$ pour chaque phase. Dans le cas particulier d'un tenseur de Hill spatial identique pour toutes les phases $\boldsymbol{P}^{id} = \boldsymbol{P}^{d}$, l'expression suivante est obtenue :

$$\boldsymbol{C}^{PCW} = \boldsymbol{C}_m + \left(\langle \boldsymbol{T} \rangle^{-1} - \boldsymbol{P}^d\right)^{-1}$$

Étant donné la formulation de ce schéma ressemblant fortement à celle de Mori-Tanaka, la fraction volumique maximum au-delà de laquelle le schéma PCW n'est plus valide est du même ordre de grandeur que celle du schéma MT.

Schéma auto-cohérent [72] : les différentes phases incluant la matrice sont considérées de manière équivalente, d'où le problème implicite obtenu au final car l'expression des $\langle \boldsymbol{A} \rangle_i$ dépend du tenseur d'élasticité homogénéisé $\boldsymbol{C}^{AC}$:

$$\langle \boldsymbol{A} \rangle_i = \left(\boldsymbol{I} + \boldsymbol{P}^{iAC} : (\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}^{AC})\right)^{-1} \quad \text{avec} \quad \boldsymbol{P}^{iAC} = \boldsymbol{S}^{i\varepsilon} : (\boldsymbol{C}^{AC})^{-1}$$

$$\boldsymbol{C}^{AC} = \sum_{i=0}^{N} f_i \boldsymbol{C}_i : \left(\boldsymbol{I} + \boldsymbol{S}^{i\varepsilon} : (\boldsymbol{C}^{AC})^{-1} : (\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}^{AC})\right)^{-1}$$

Cette équation implicite est habituellement résolue itérativement jusqu'à convergence en prenant comme solution initiale, par exemple, la solution du schéma dilué ou de Mori-Tanaka. La matrice est cette fois-ci considérée de la même manière que les autres phases, ce qui a deux conséquences : (i) le schéma reste valide jusqu'à des fractions volumiques importantes ; (ii) une forme ellipsoïdale doit nécessairement lui être attribuée. Ce dernier point rend les résultats moins facilement interprétables, puisqu'ils dépendent de ces paramètres de forme qui ne correspondent pas vraiment à une réalité physique dans notre situation de polymère chargé. Ce schéma a également une version « généralisée » mise au point par Christensen et Lo [73] mais dont l'application à des inclusions non sphériques reste complexe. Elle ne sera pas utilisée dans ce travail.

Schéma différentiel [74]: Ce schéma part de la solution diluée et l'intègre de manière incrémentale pour arriver à des fractions volumiques fortes (typiquement $50\ \%$ voir plus). La formule suivante est obtenue :

$$\begin{cases} \dfrac{d\boldsymbol{C}^{diff}}{df} = \dfrac{1}{1-f}\displaystyle\sum_{i=1}^{N} \eta_i \left(\boldsymbol{S}^{i\varepsilon} : \left(\boldsymbol{C}^{diff}\right)^{-1} + \left(\boldsymbol{C}_i - \boldsymbol{C}^{diff}\right)^{-1}\right)^{-1} \quad \text{avec} \quad f = \sum f_i \quad \text{et} \quad \eta_i = \dfrac{f_i}{f} \\ \boldsymbol{C}^{diff}(f=0) = \boldsymbol{C}_m \end{cases}$$

Les différents schémas présentés ci-dessus (dilué, Mori-Tanaka, Ponte-Castaneda-Willis, auto-cohérent, différentiel) ont leurs points forts mais également leurs faiblesses, en particulier :

- La symétrie majeure du tenseur d'élasticité homogénéisé $\boldsymbol{C}^{hom}$ n'est pas toujours respectée pour les schémas de Mori-Tanaka et auto-cohérent avec des particules non-sphériques.
- Les schémas dilués, MT et PCW ne sont a priori pas adaptés pour des fractions volumiques aussi élevées que celle de notre étude.
- Le problème d'Eshelby étant sans longueur caractéristique autre que celle de l'inclusion, aucun schéma ne peut prendre en compte l'influence de la polydispersité de répartition de charges dans une matrice.
- L'orientation aléatoire d'inclusions ellipsoïdales n'est pas non plus explicitement prise en compte puisque le tenseur $\boldsymbol{P}^{i\varepsilon}$ ne contient d'information que sur une orientation choisie. Une opération de moyenne à définir est donc nécessaire pour obtenir les résultats d'une orientation aléatoire.

La réponse de chaque schéma est illustrée dans le cas simple d'inclusions sphériques isotropes (E_i, ν_i) dans une matrice isotrope (E_0, ν_0), pour des fractions volumiques f de particules variant de 0 à $0{,}6$. Par commodité, les coefficients de Poisson des deux phases sont fixés à $\nu_i = \nu_0 = 0{,}49$ correspondant à des matériaux quasi-incompressibles et le contraste de rigidité E_i/E_0 reste variable. Dans le cadre du schéma auto-cohérent, une forme sphérique est attribuée à la matrice. Ce même choix pour la distribution spatiale rend par ailleurs identique les schémas de Mori-Tanaka et Ponte-Castaneda-Willis. Dans cette configuration, l'isotropie du matériau homogénéisé est respectée pour tous les schémas étudiés. La Figure 71 montre l'évolution du rapport des modules de cisaillement G^{hom}/G_0 avec la fraction volumique f pour les schémas dilué, Mori-Tanaka, auto-cohérent et différentiel :

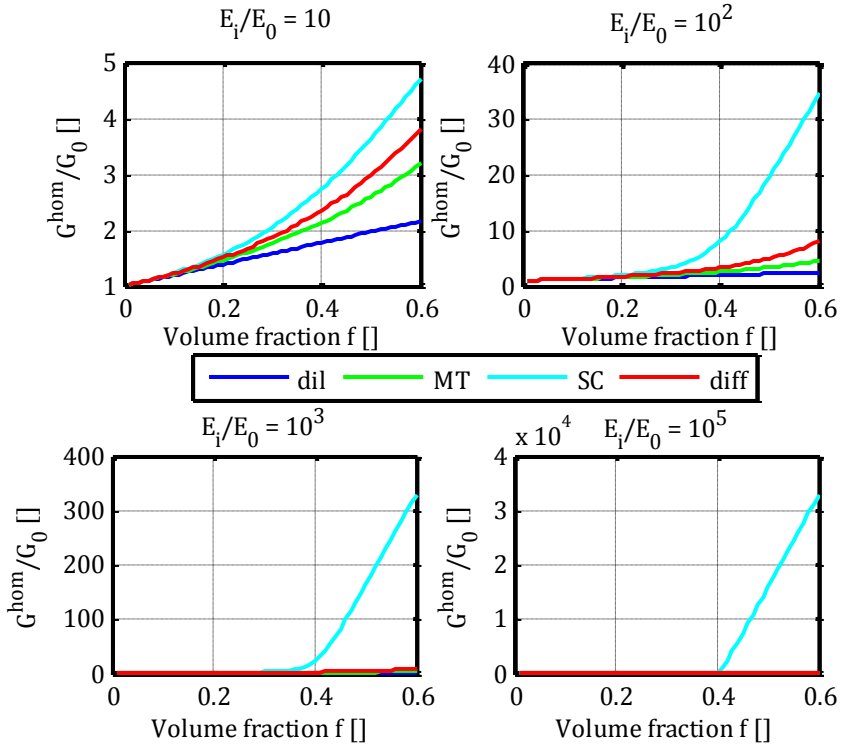


Figure 71 : Evolution du module de cisaillement homogénéisé normalisé G^{hom}/G_0 avec la fraction volumique de particules f pour les schémas dilué, Mori-Tanaka (MT), auto-cohérent (SC) et différentiel en fonction du constraste de rigidité matrice/particule E_i/E_0

La Figure 71 montre que le schéma auto-cohérent présente un phénomène de divergence soudaine pour de forts contrastes de rigidité au-delà d'un seuil de fraction volumique que l'on identifie à $f_{seuil} = 0{,}4$ pour un contraste infini (10^5 dans notre exemple). Cette tendance se fait déjà sentir dès les contrastes intermédiaires (à partir de 10^2) avec une brusque variation de pente de $G^{hom}(f)$ aux alentours de $f \sim 0{,}45$. Cette fraction volumique f_{seuil} dépend entre autres du coefficient de Poisson des deux phases (on obtient $f_{seuil} \sim 0{,}48$ pour $\nu_i = \nu_0 = 0{,}3$). Cette instabilité est mise en valeur avec l'évolution du premier coefficient de Lamé λ^{hom} du matériau homogénéisé : la Figure 72 montre qu'il devient négatif lorsqu'on franchit le seuil de fraction volumique identifié à la figure précédente. Cette valeur de λ^{hom} négative correspond à un coefficient de Poisson ν^{hom} négatif qui, bien que permis par la thermodynamique, n'est pas attendu pour ce type de matériau et constitue une limitation de ce schéma d'homogénéisation.

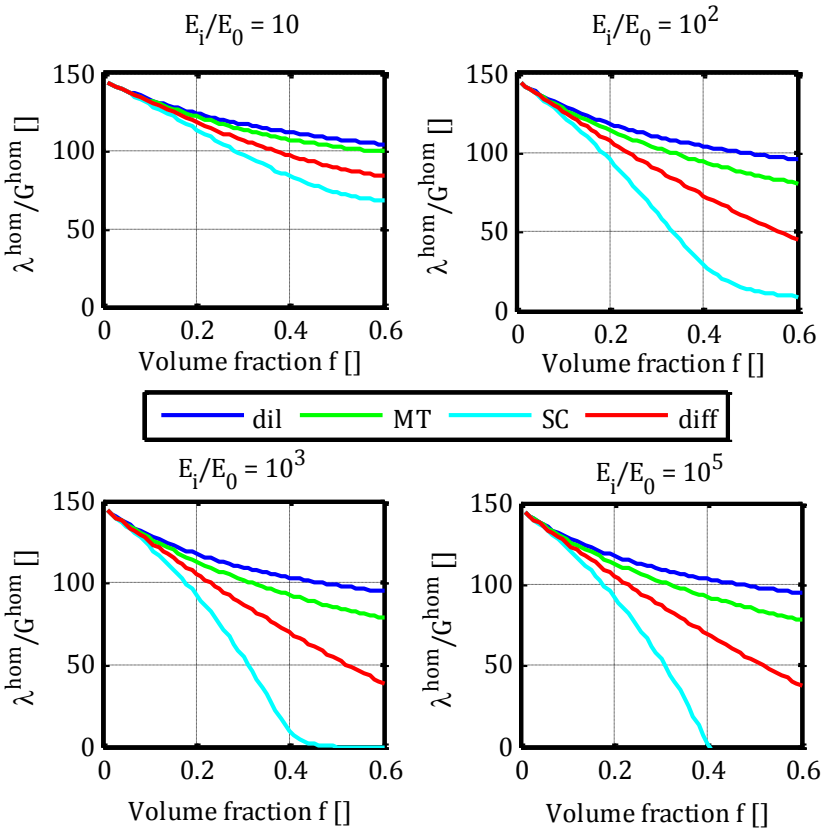


Figure 72 : Evolution du rapport λ^{hom}/G^{hom} avec la fraction volumique f pour les quatre schémas d'homogénéisation dilué, MT, SC et différentiel en fonction du contraste E_i/E_0

Un tel phénomène de divergence avec ce schéma d'homogénéisation a déjà été mis en valeur par Willis [75] dans des problèmes de conductivité thermique de matériaux hétérogènes. Etant donné les fractions volumiques mises en jeu dans l'étude des joints silicone et polyimide ainsi que le contraste entre les polymères et les charges argent ($E_{silicone} \sim 1$ MPa et $E_{argent} = 83$ GPa d'après la littérature), ce schéma ne sera donc pas retenu dans l'étude qui suit.

4.1.2 Homogénéisation périodique

Les défauts des schémas analytiques précédemment cités ne peuvent être surmontés qu'avec des calculs en champ complet, c'est-à-dire en résolvant entièrement le problème mécanique sur tout le domaine. Mises à part quelques situations précises (type sphère rigide dans un milieu élastique infini par exemple) où une solution peut être connue et où une intégrale sur tout le volume d'étude pourrait donc être calculée, l'immense majorité des problèmes mécaniques sont résolus numériquement. Une idée pour limiter la longueur et la complexité des calculs numériques est de poser le problème auxiliaire sur une cellule de base périodique représentative du matériau. La périodicité permet en effet de supposer le matériau final comme la réplication à l'infini de cette cellule de base. Le problème est formellement posé de la manière suivante pour une cellule de base Y (dont la frontière est notée ∂Y) :

$$\begin{cases} \operatorname{div} \sigma(\underline{x}) = 0 \\ \varepsilon(\underline{x}) = \nabla^s u(\underline{x}) \quad \text{avec} \quad u(\underline{x}) = E \cdot \underline{x} + u_{per}(\underline{x}) \\ \sigma(\underline{x}) = \boldsymbol{C}(\underline{x}) : \varepsilon(\underline{x}) \\ u_{per} \text{ périodique sur } \partial Y \text{ et } \sigma \cdot n \text{ anti-périodique sur } \partial Y \end{cases}$$

Les égalités $\langle \varepsilon \rangle = E, \langle \sigma \rangle = \Sigma,$ et $\Sigma = \boldsymbol{C}_{hom} : E$ sont toujours vraies. En revanche, les champs de contrainte et déformation sont ici accessibles en tout point de cellule de base, donc aussi la densité de distribution d'un certain nombre de quantités relatives aux contraintes ou déformations : contrainte équivalente (déviatorique), hydrostatique, élongation maximale, etc…

Les deux méthodes présentées dans cette étude et utilisées pour l'homogénéisation périodique sont les méthodes FEM et FFT. Ces deux méthodes calculent pour chaque chargement les champs complets de contrainte $\sigma(\underline{x})$ et $\varepsilon(\underline{x})$, permettant l'accès à toutes les mesures statistiques (moyenne mais aussi et surtout distribution) contrairement aux méthodes en champ moyen exposées dans la partie précédente.

Homogénéisation périodique par Éléments Finis [76] [77] : une fois la cellule de base choisie, l'étape technique pour la méthode FEM est le maillage de cette cellule. En effet, les conditions périodiques en déplacement peuvent être a priori compliquées à appliquer pour un maillage quelconque. Imposer la périodicité du maillage permet de lier simplement les degrés de liberté des nœuds concernés pour assurer la périodicité des déplacements. Cette étape de maillage a été réalisée à l'aide du logiciel Netgen® pour générer les fichiers du maillage et des conditions de périodicité gérables par le logiciel FEM Abaqus®, avec lequel les calculs FEM proprement dits ont été réalisés. La Figure 73 montre le maillage tétraédrique quadratique obtenu.

Etant donné la forme des équations de périodicité des déplacements générées par Netgen® aux nœuds des surfaces extérieures ∂Y du VER, le chargement macroscopique est imposé sur quatre nœuds extrêmes correspondant au point origine O et aux trois extrémités A (pour la direction x), B (pour la direction y) et C (pour la direction z) illustrées Figure 73 (le lecteur peut se référer à l'article [78] pour plus de détails sur ce point).

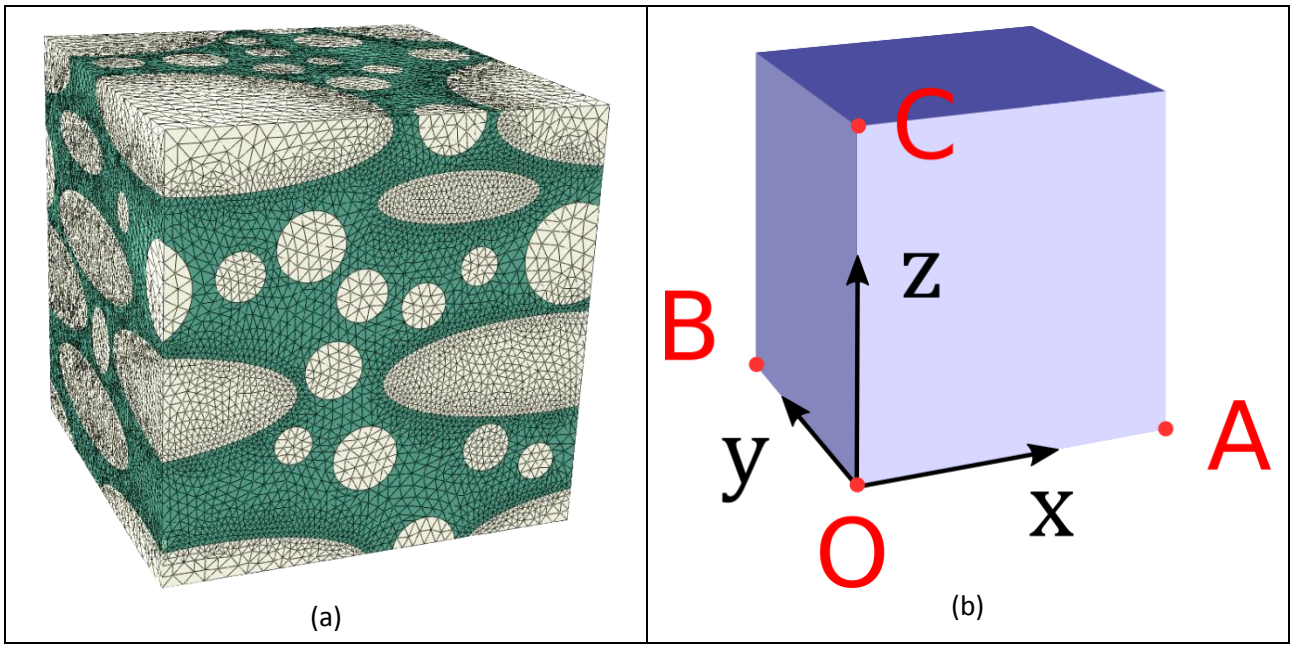


Figure 73 : Maillage généré par Netgen pour le VER de l'étude (a) et nœuds d'imposition du chargement macroscopique E ou Σ (b)

Le Tableau 11 ci-dessous donne un exemple de conditions limites imposées en déplacement aux nœuds O, A, B et C pour générer un chargement de cisaillement dans le cadre des petites déformations de la forme

$$E = \varepsilon_0(\underline{e}_1 \otimes \underline{e}_3 + \underline{e}_3 \otimes \underline{e}_1) = \frac{\gamma_0}{2}(\underline{e}_1 \otimes \underline{e}_3 + \underline{e}_3 \otimes \underline{e}_1)$$

Point / Déplacement	O $(0,0,0)$	A $(L,0,0)$	B $(0,L,0)$	C $(0,0,L)$
u_1	0	0	0	$(\gamma_0/2)L$
u_2	0	0	0	0
u_3	0	$(\gamma_0/2)L$	0	0

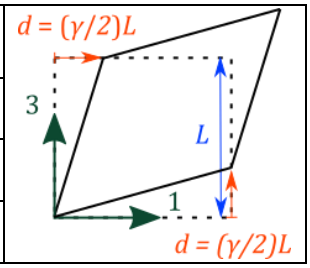


Tableau 11 : Conditions limites en déplacement correspondant à un chargement de cisaillement dans le plan 13

Pour un chargement en déplacement, le calcul de la réponse macroscopique Σ du VER peut se faire en moyennant le champ de contrainte sur tous les éléments du maillage. Alternativement la force de réaction aux nœuds O, A, B, C peut être récupérée pour obtenir la contrainte moyenne dans le cadre des petites déformations en divisant simplement cette force de réaction par la section L^2 du cube. Finalement $\boldsymbol{C}^{hom}$ en est déduit sachant que $\Sigma = \boldsymbol{C}^{hom} : E$

La démarche pour un chargement macroscopique en contrainte Σ est tout à fait équivalente : des forces concentrées au niveau des quatre nœuds O, A, B et C sont appliquées et les déplacements associés sont récupérés puis divisés par L pour obtenir la réponse du VER en déformation dans le cadre des petites déformations. L'obtention de la souplesse homogénéisée est directe sachant que $E = \boldsymbol{S}^{hom} : \Sigma$. Il est intéressant de noter que des chargements mixtes (en déplacement pour certains degrés de liberté et en

force pour les autres) peuvent si besoin être générés. Ce type de chargement n'est pas spécialement habituel dans le cadre de l'obtention des tenseurs $\boldsymbol{C}^{hom}$ et $\boldsymbol{S}^{hom}$ pour lesquels il lui est préféré respectivement un chargement intégralement en déplacement ou en force. Il permet néanmoins de simuler des problèmes concrets comme un VER de joint adhésif soumis à un glissement simple piloté en déplacement superposé à une compression dans l'épaisseur pilotée en contrainte.

Les lois de comportement matériaux choisies pour chaque phase peuvent être quelconques : élastiques ou anélastiques, linéaires ou non. Dans le cas de lois de comportement complexes (en particulier anélastiques), la réponse peut dépendre du trajet de chargement, ce qui rend l'interprétation des résultats et l'étape d'homogénéisation du matériau moins évidente. Cela ne sera pas le cas avec les lois élastique linéaire et hyperélastique utilisées dans cette étude.

Homogénéisation périodique par transformée de Fourier : Cette méthode introduite par Moulinec et Suquet en 1994 [79] [80] repose sur la résolution du problème de polarisation dans un milieu infini homogène d'élasticité $\boldsymbol{C}_0$ par l'intermédiaire de l'opérateur de Green $\boldsymbol{\Gamma}_0$ (que l'on confondra par commodité avec son tenseur d'ordre 4 associé) :

$$\begin{cases} \sigma(\underline{x}) = \boldsymbol{C}_0 : \varepsilon(\underline{x}) + \tau(\underline{x}) \\ \operatorname{div} \sigma(\underline{x}) = 0 \end{cases} \qquad \textbf{Eq 15}$$

$$\Rightarrow \quad \varepsilon(\underline{x}) = -(\boldsymbol{\Gamma}_0 * \tau)(\underline{x}) = -\int_{\underline{x}'} \boldsymbol{\Gamma}_0(\underline{x} - \underline{x}') : \tau(\underline{x}') \mathrm{d}V_{\underline{x}'} \qquad \textbf{Eq 16}$$

La transposition dans l'espace de Fourier du produit de convolution obtenu dans l'équation Eq 16 donne

$$\hat{\varepsilon}(\underline{k}) = -\widehat{\boldsymbol{\Gamma}_0}(\underline{k}) : \hat{\tau}(\underline{k}) \qquad \textbf{Eq 17}$$

Pour un milieu hétérogène d'élasticité $\boldsymbol{C}(\underline{x}) = \boldsymbol{C}_0 + \boldsymbol{\delta C}(\underline{x})$, les équations du problèmes sont identiques en remplaçant le champ de polarisation τ par $(\boldsymbol{\delta C} : \varepsilon)$ et en prenant en compte le chargement macroscopique $E = \langle \varepsilon \rangle$, c'est-à-dire :

$$\begin{cases} \sigma(\underline{x}) = \boldsymbol{C}_0 : \varepsilon(\underline{x}) + (\boldsymbol{\delta C} : \varepsilon)(\underline{x}) \\ \operatorname{div} \sigma(\underline{x}) = 0 \\ \langle \varepsilon \rangle = E \end{cases}$$

D'où les expressions dans les domaines réel et de Fourier :

$\varepsilon(\underline{x}) = E - \left(\boldsymbol{\Gamma}_0 * (\boldsymbol{\delta C} : \varepsilon)\right)(\underline{x})$	$\begin{cases} \hat{\varepsilon}(\underline{k}) = -\widehat{\boldsymbol{\Gamma}_0}(\underline{k}) : \widehat{(\boldsymbol{\delta C} : \varepsilon)}(\underline{k}) \text{ pour } \underline{k} \neq \underline{0} \\ \hat{\varepsilon}(\underline{0}) = E \end{cases}$

L'équation est résolue itérativement jusqu'à convergence de la solution en prenant comme solution initiale $\varepsilon = E$. Une fois le champ de déformation final obtenu, la contrainte moyenne dans l'espace réel

peut être calculée par $\Sigma = \langle \boldsymbol{C} : \varepsilon \rangle$ et le tenseur d'élasticité homogénéisé $\boldsymbol{C}^{hom}$ est ensuite obtenu comme pour la méthode FEM.

L'expression du tenseur de Green dans l'espace de Fourier s'écrit dans le cas général

$$\widehat{\boldsymbol{\Gamma}_0}(\underline{k}) = \underline{k} \otimes N(\underline{k}) \otimes \underline{k}$$

avec $N = K^{-1}$ l'inverse du tenseur acoustique $K(\underline{k}) = \underline{k} \cdot C_0 \cdot \underline{k}$. Cette méthode dépend donc directement du milieu considéré comme celui de référence $\boldsymbol{C}_0$. Dans le cas d'un milieu de référence isotrope $\boldsymbol{C}_0(\lambda_0, G_0)$, l'expression de $\widehat{\boldsymbol{\Gamma}_0}(\underline{k})$ s'écrit explicitement [81] :

$$\widehat{\boldsymbol{\Gamma}_0}_{mnpq}(\underline{k}) = \frac{1}{4G_0|\underline{k}|^2}\left(\delta_{np}k_qk_m + \delta_{mp}k_nk_q + \delta_{nq}k_pk_m + \delta_{mq}k_nk_p\right) - \frac{\lambda_0 + G_0}{G_0(\lambda_0 + 2G_0)}\frac{k_mk_nk_pk_q}{|\underline{k}|^4}$$

L'incompressibilité du milieu n'est ici pas problématique pour cette méthode puisque $\widehat{\boldsymbol{\Gamma}_0}$ tend vers une valeur finie quand $\lambda_0 \to \infty$.

Dans le cas de deux phases isotropes caractérisées par leurs coefficients de Lamé (λ, G), le milieu de référence conduisant à la convergence de l'algorithme la plus rapide est simplement la demi-somme des coefficients de chaque phase [79]. Indépendamment du milieu de référence, la vitesse de convergence de l'algorithme est également fortement affectée par le contraste de rigidité entre les phases : augmenter le contraste diminue la convergence.

La méthode FFT est appliquée en discrétisant de manière régulière le VER de l'étude en n^3 voxels pour lesquels une rigidité $\boldsymbol{C} = \boldsymbol{C}_0 + \boldsymbol{\delta C}$ est attribuée en fonction de leur appartenance à la phase « matrice » ou « charges ». Les coefficients de Fourier des différents tenseurs sont calculés par transformée de Fourier discrète rapide, ce qui assure d'office la périodicité du problème. Le code FFT utilisé dans cette thèse a été écrit et gracieusement prêté par Renald Brenner (Université Pierre et Marie Curie).

4.1.3 Homogénéisation élastique VS. viscoélastique

Bien que non-utilisée dans cette thèse, une méthodologie d'homogénéisation de matériaux hétérogènes viscoélastiques non-vieillissants existe et s'appuie sur le principe de correspondance et la transformée de Laplace-Carson, où la transformée d'une fonction $g(t)$ vaut

$$\tilde{g}(s) = s\int_0^\infty e^{-st}g(t)\mathrm{d}t$$

La loi de comportement viscoélastique linéaire Eq 4 devient dans l'espace de Laplace-Carson :

$\tilde{\tau}(s) = \tilde{G}(s)\,\tilde{\gamma}(s)$	$\tilde{\gamma}(s) = \tilde{J}(s)\,\tilde{\tau}(s)$	**Eq 18**

L'équation Eq 18 a formellement la même structure qu'une loi de comportement élastique, ce qui constitue le principe de correspondance. Les schémas d'homogénéisation en champ moyen vus dans le

paragraphe 4.1.1 peuvent donc être appliqués pour obtenir une expression analytique ou numérique des modules $\tilde{G}(s)$ et $\tilde{J}(s)$ puis effectuer la transformée de Laplace-Carson inverse pour remonter aux modules de relaxation $G(t)$ et de fluage $J(t)$. Dans la pratique, cette inversion est effectuée de manière numérique par une méthode de collocation classique ou une approche avec variables internes [82] [83].

La difficulté de cette approche réside dans l'inversion de la transformée de Laplace-Carson, du moins dans sa version classique. En effet cette inversion peut être numériquement lourde et dépend du trajet de chargement utilisé. Pour des raisons de simplicité, cette approche d'homogénéisation viscoélastique ne sera pas abordée dans cette thèse.

4.2 Comparaison des résultats d'homogénéisation pour des lois linéaires

Cette partie du chapitre présente les différents résultats obtenus pour une homogénéisation en utilisant des lois élastiques linéaires pour la matrice polymère comme les charges argent. Les données matériaux utilisées sont résumées dans le Tableau 12 :

Comportement mécanique des charges	$E_i = 83\ \text{GPa}, \nu_i = 0{,}37$
Comportement mécanique de la matrice	$E_0 = [1\ 10\ 10^2\ 10^3]\ \text{MPa}, \nu_0 = 0{,}49$
Fraction volumique de charges	$\left.\begin{matrix} f_{ellipsoides} = 0{,}40 \\ f_{sphères} = 0{,}13 \end{matrix}\right\} \Rightarrow f_{total} = 0{,}53$
Rapport d'aspect des ellipsoïdes	$w = 0{,}3$
Rapport de la distribution spatiale	$w^d = 0{,}415$
Orientation des particules	$\phi = 0°$ à $45°$

Tableau 12 : Données d'entrée pour les différents schémas d'homogénéisation

Les données des charges sont tirées de la littérature pour le matériau argent. La rigidité de la matrice varie de 1 MPa à 1 GPa pour couvrir les différents polymères, du silicone souple au polyimide rigide. Le coefficient de Poisson de la matrice ν_0 est pris égal à $0{,}49$ et non $0{,}5$ car les schémas analytiques ont besoin d'un module de compressibilité isotrope K fini, et Abaqus® ne gère pas non plus l'incompressibilité stricte dans les calculs linéaires élastiques. Les fractions volumiques de charges et leur rapport d'aspect correspondent exactement au VER de l'étude. Le rapport de la distribution spatiale correspond également à celui déterminé pour ce VER grâce aux fonctions de corrélation à deux points (cf introduction de ce chapitre). L'influence de l'orientation des particules est étudiée de $0°$ (particules horizontales) à $45°$ (particules obliques) puisque toutes les autres orientations de $45°$ à $360°$ peuvent ensuite être déduites par des considérations de symétries de la structure et du chargement de cisaillement.

Cette partie a pour objectif d'étudier l'évolution du module de cisaillement homogénéisé G_{13}^{hom} du joint en fonction de la rigidité de la matrice et de l'orientation des particules. Elle abordera d'abord une rapide étude de la représentativité du VER par la méthode FFT ainsi qu'une justification des calculs élastiques pour un matériau viscoélastique.

4.2.1 Représentativité du VER de l'étude

La question de la représentativité des Volumes Elémentaires Représentatifs est fondamentale en homogénéisation. Dans le cas où le matériau homogénéisé obtenu est censé être isotrope, une méthode simple pour estimer la représentativité d'un VER est de vérifier que les directions de l'espace sont équivalentes et que l'écart à l'isotropie par rapport à la symétrie cubique DEV_n défini dans le paragraphe 1.1 est le plus faible possible. Une autre méthode beaucoup plus lourde consiste à générer plusieurs VER différents avec la même méthode de génération et de comparer les comportements mécaniques de chacun pour identifier les VER non-représentatifs, les éliminer et garder le comportement moyen de ceux restants (voir par exemple [63]).

Dans notre cas, les particules ellipsoïdes aplaties dans le plan horizontal Oxy (c'est-à-dire $\phi = 0°$) sont censées donner au VER un comportement isotrope transverse d'axe vertical 3. La représentativité de notre VER sera donc étudiée vis-à-vis de son isotropie transverse effective ou non. Les critères à vérifier pour le tenseur d'élasticité homogénéisé sont :

$$\begin{cases} \boldsymbol{C}_{44} = \boldsymbol{C}_{55} \text{ , c'est-à-dire } G_{13} = G_{23} \\ \boldsymbol{C}_{11} = \boldsymbol{C}_{22} \\ \boldsymbol{C}_{13} = \boldsymbol{C}_{23} \\ DEV_n = \dfrac{(\boldsymbol{C}_{11} + \boldsymbol{C}_{22}) - (\boldsymbol{C}_{13} + \boldsymbol{C}_{23}) - 2(G_{13} + G_{23})}{2(G_{13} + G_{23})} = 0 \end{cases}$$

Cette étude a été réalisée avec l'algorithme FFT plutôt qu'avec la méthode FEM car la vitesse de l'algorithme FFT est bien plus grande. Pour maximiser la vitesse de convergence, le contraste entre les phases le plus raisonnable est choisi, c'est-à-dire une matrice assez rigide : $E_0 = 1$ GPa.

On a effectué les calculs avec quatre discrétisations du VER différentes : $n^3 = (32)^3$, $(64)^3$, $(128)^3$ et $(256)^3$. Les Figure 74 et Figure 75 suivantes montrent les évolutions des différentes quantités du tenseur d'élasticité homogénéisé avec la discrétisation du VER.

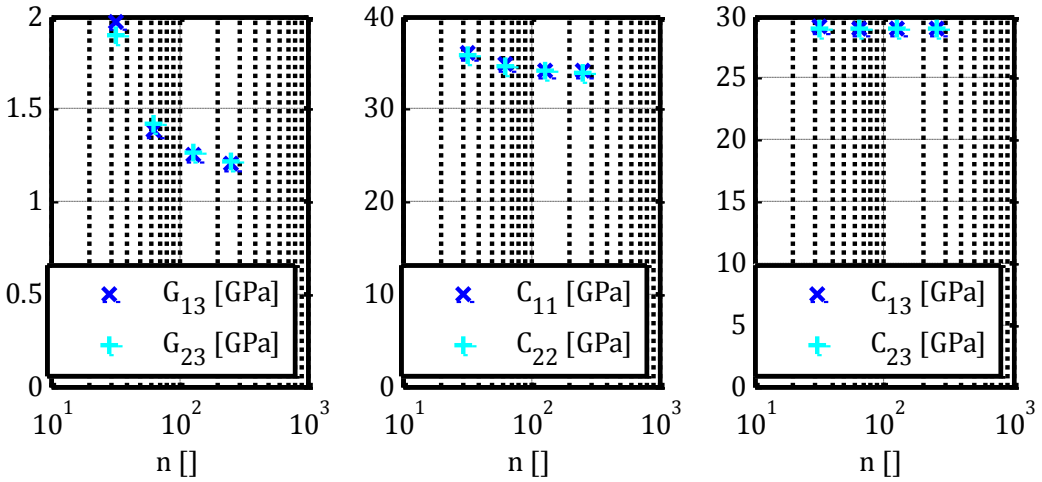


Figure 74: Evolution des coefficients du tenseur d'élasticité homogénéisé avec la discrétisation du VER

On constate sur la Figure 74 la très bonne équivalence des deux directions du plan horizontal puisque la différence des coefficients de $[\boldsymbol{C}]$ est juste inférieure à $0{,}5$ % pour $n = 256$, et toujours inférieure $0{,}6$ % dès $n = 128$. L'écart à l'isotropie plane DEV_n affiché Figure 75 converge vers 5 %. Cette valeur, bien que faible, ne paraît pas tout à fait négligeable comparée aux pourcentages encore plus faibles déduits de la figure précédente entre les coefficients $\boldsymbol{C}_{i3}$.

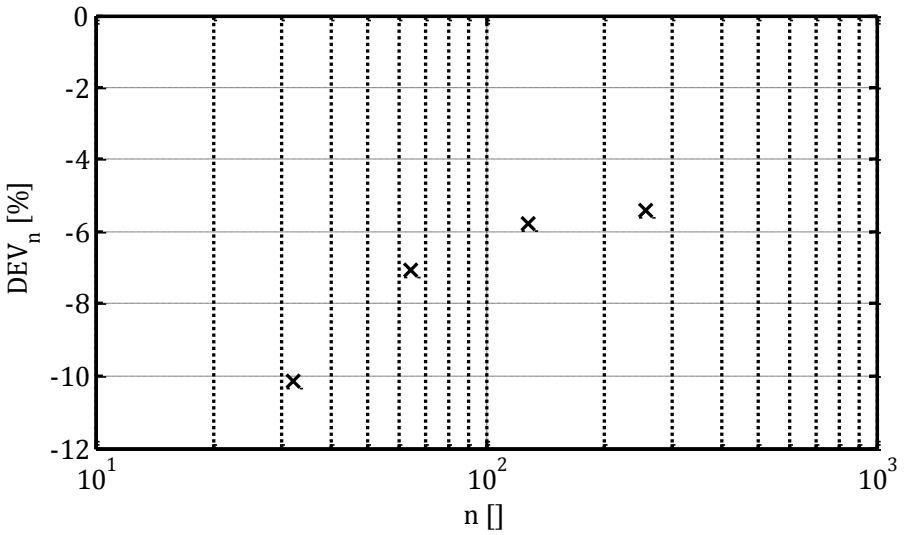


Figure 75 : Evolution de l'écart à l'isotropie plane du VER en fonction de sa discrétisation

Afin de vérifier si cette valeur asymptotique de 5 % correspond à un artéfact numérique ou à une réelle déviation à l'isotropie du VER, la réponse du réseau hexagonal de fibres alignées illustré Figure 76 (a) est étudiée. L'étude est menée en 2D pour deux configurations différentes :

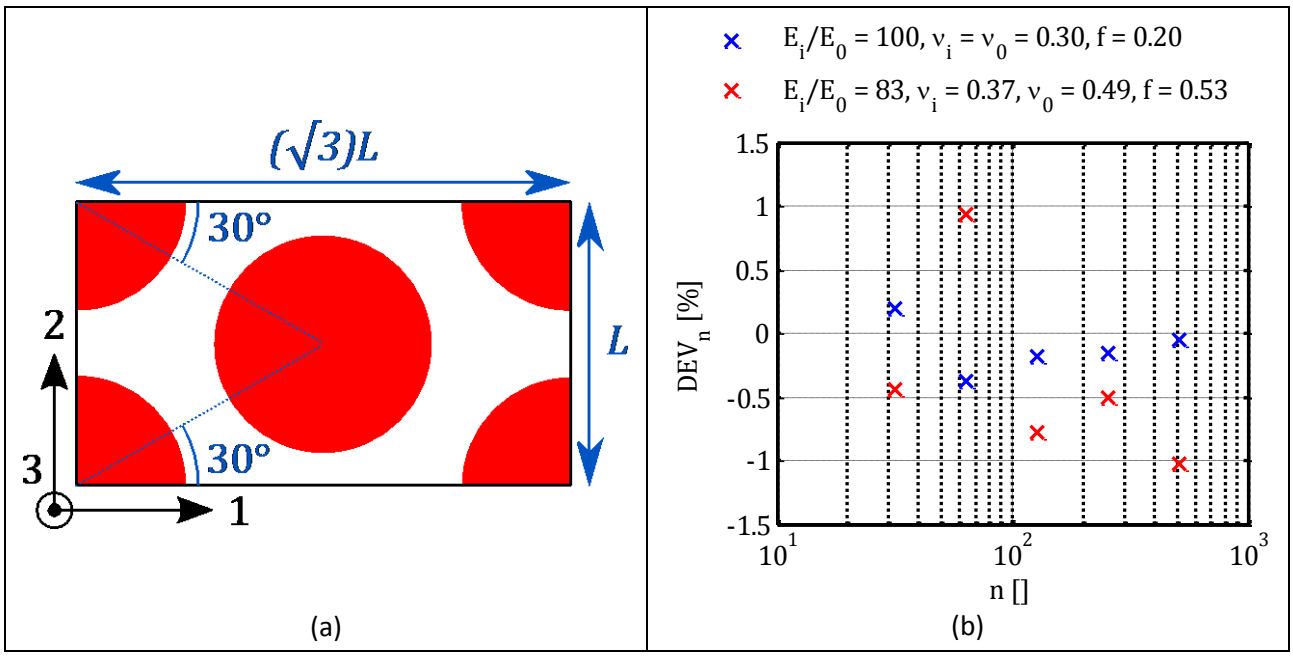


Figure 76 : (a) schéma d'une cellule de base d'une matrice chargée de fibres cylindriques disposées sur un réseau hexagonal pour une fraction volumique de $f = 0.53$; (b) Ecart à l'isotropie dans le plan transverse du composite schématisé en (a) pour deux configurations matériau et microstructure

- La première reprend les paramètres matériau utilisés pour l'étude des schémas analytiques (cf Figure 71 et Figure 72), et une fraction volumique « raisonnable »

$$E_i/E_0 = 100, \nu_i = \nu_0 = 0{,}30, f = 0{,}20$$

- La deuxième reprend les paramètres matériau et la fraction volumique du VER de l'étude

$$E_i/E_0 = 83, \nu_i = 0{,}37, \nu_0 = 0{,}49, f = 0{,}53$$

L'écart à l'isotropie est ici défini par $DEV_n = (\boldsymbol{C}_{11} + \boldsymbol{C}_{22} - \boldsymbol{C}_{12} - \boldsymbol{C}_{21} - 4G_{12})/4G_{12}$. La configuration hexagonale est connue pour impliquer l'isotropie [84] (tout réseau présentant une invariance par rotation de $120°$ possède cette propriété). La Figure 76 (b) montre que l'écart à l'isotropie obtenu avec le schéma FFT reste effectivement borné à $1\ \%$. La première configuration présente une convergence assez nette vers 0 avec la finesse de discrétisation n, tandis que la seconde ne semble pas significativement converger avec n, du moins jusqu'à $n = 512$. Une explication de ce comportement réside dans la relative incompressibilité du matériau homogénéisé impliquant des valeurs de $\boldsymbol{C}_{ii}^{hom}$ et $\boldsymbol{C}_{12}^{hom}$ particulièrement élevées rapport à G_{12}^{hom}. Toute imprécision numérique sur $\boldsymbol{C}_{ii}^{hom}$ et $\boldsymbol{C}_{12}^{hom}$ est donc amplifiée étant donnée la définition de DEV_n.

L'écart DEV_n obtenu pour le VER est donc 5 fois plus grand que l'écart numérique maximum pour un réseau hexagonal isotrope quasi-incompressible. Ce facteur 5 reste acceptable mais ne peut pas être négligé. Le VER sera considéré raisonnablement isotrope malgré la limite mise en exergue par ces calculs.

Au regard des pourcentages de différence obtenus entre les deux directions du plan horizontal inférieurs à $1\ \%$ et vu l'écart à l'isotropie considéré raisonnable, il est conclu que la représentativité de notre VER reste acceptable. D'autre part, les calculs effectués dans cette sous-partie permettent de constater que l'algorithme FFT a raisonnablement convergé pour une discrétisation de $(128)^3$, qui sera donc choisie pour l'étude à venir.

Pour aller plus loin et réellement confirmer la représentativité, d'autres réalisations de la microstructure seraient nécessaires. Elles n'ont pas été réalisées pour des raisons de temps et de reproductibilité : en effet, l'algorithme RSA codé dans cette thèse ajuste lui-même les fractions volumiques des familles de particules (cf Tableau 10) à générer en fonction des particules déjà générées afin d'arriver à des fractions volumiques supérieures à $50\ \%$. Les fractions volumiques de chaque famille changent donc légèrement d'une réalisation à l'autre. Ceci change irrémédiablement la réponse de chaque réalisation, ce qui compromet fortement des comparaisons pour l'estimation de la représentativité.

Les directions 1 et 2 étant équivalentes, il a été choisi de s'intéresser au module de cisaillement hors-plan du joint G_{13}^{hom}, (le choix G_{23}^{hom} aurait donné les mêmes résultats) dans le reste du chapitre. La notation sans indice G^{hom} se réfère par défaut à G_{13}^{hom} dans la suite.

4.2.2 Calculs numériques élastiques VS viscoélastiques

Comme expliqué plus haut, la justification des calculs élastiques repose sur l'hypothèse de séparation des variables spatiale et temporelle : $\sigma(\underline{x},t) = g(\underline{x})h(t)$. Cette hypothèse est vérifiée en effectuant un calcul Elements Finis linéaire sur le VER avec une loi de comportement viscoélastique linéaire simple de l'équation Eq 8 pour la matrice :

$$G(t) = G_\infty + \Delta G e^{-t/\lambda} = G_e\left(\chi + (1-\chi)e^{-t/\lambda}\right) \text{ avec } \chi = 0{,}1 \text{ et } \lambda = 1 \text{ s}$$

Un test de relaxation est simulé en imposant au VER une déformation de cisaillement constante

$$E(t) = \varepsilon_{13}(t)\left(\underline{e}_1 \otimes \underline{e}_3 + \underline{e}_3 \otimes \underline{e}_1\right) = \frac{\gamma_{13}(t)}{2}\left(\underline{e}_1 \otimes \underline{e}_3 + \underline{e}_3 \otimes \underline{e}_1\right) \text{ avec } \gamma_{13}(t) = \gamma_0 = 0{,}01$$

Nous avons choisi d'étudier la répartition de la contrainte σ_{13} dans la matrice en étudiant l'évolution avec le temps t de sa fonction de densité de probabilité (pdf = « probability density function »). Pour pouvoir comparer ces pdf à différents instants t, la contrainte σ_{13} est normalisée par sa moyenne dans tout le VER (matrice et charges inclues) $\langle\sigma_{13}(t)\rangle$. Ceci revient à une normalisation par la quantité $G^{hom}(t) \times \gamma_0$, où $G^{hom}(t)$ est simplement défini par $\langle\sigma_{13}(t)\rangle/\gamma_0$. Cette normalisation est également utilisée pour un calcul élastique où le module de cisaillement de la matrice a été pris égal au module viscoélastique instantané G_e. Les pdf de la contrainte σ_{13} normalisée par $G^{hom}\gamma_0$ sont tracées Figure 77 pour trois instants différents $t = 0{,}3$ s, 1 s et 3 s encadrant la constante de relaxation de la matrice $\lambda = 1\ s$.

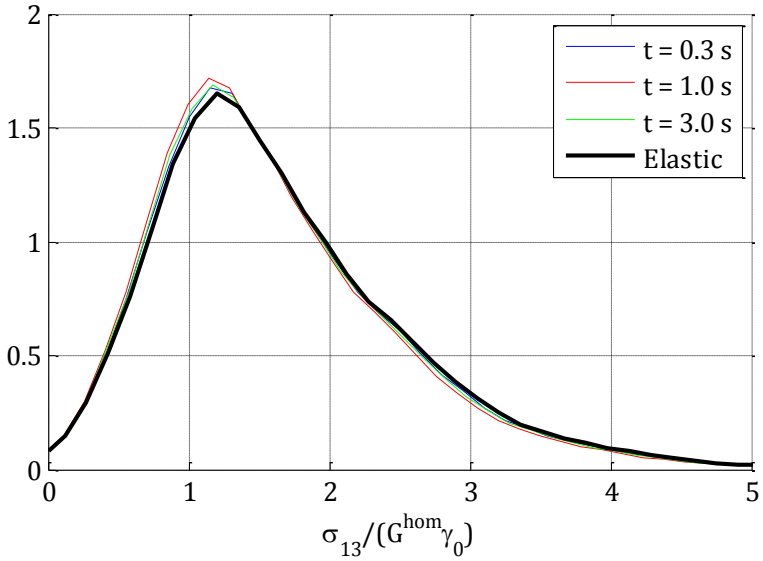


Figure 77 : Distribution de la contrainte de cisaillement σ_{13} normalisée pour un calcul viscoélastique linéaire à trois instants différents et pour un calcul élastique linéaire

Les distributions sont semblables puisque l'écart maximum entre elles plafonne autour de 5 % de différence. Pour autant, la distribution correspondant au calcul élastique paraît légèrement plus large et moins haute au niveau de son pic comparée aux distributions du calcul viscoélastique : ceci illustre l'absence de redistribution des contraintes de la modélisation élastique. Les zones à contrainte plus

élevée ne peuvent donc pas se décharger au profit des zones moins chargées, d'où la largeur du pic légèrement augmentée et sa hauteur légèrement diminuée. Il est donc important de noter que l'approximation des calculs élastiques va légèrement élargir et diminuer la hauteur des distributions calculées par rapport aux distributions obtenues avec des calculs viscoélastiques. Néanmoins nous considèrerons ces variations assez faibles pour justifier l'utilisation de lois élastiques (linéaires ou non) dans cette étude.

Il est par ailleurs intéressant de regarder l'homogénéité des contraintes dans les charges, puisque les schémas analytiques s'appuient tous sur cette hypothèse pour utiliser le résultat d'Eshelby. La Figure 78 ci-contre présente la contrainte de Von Mises normalisée par $G_0\gamma_0$ dans les charges du VER : il est aisé de voir que les charges interagissent entre elles et que la contrainte dans une particule y est localement d'autant plus élevée qu'une particule voisine est proche. L'hypothèse d'uniformité de la contrainte dans les charges est donc assez fortement mise à mal. Les résultats des schémas analytiques seront donc à prendre avec du recul de ce point de vue.

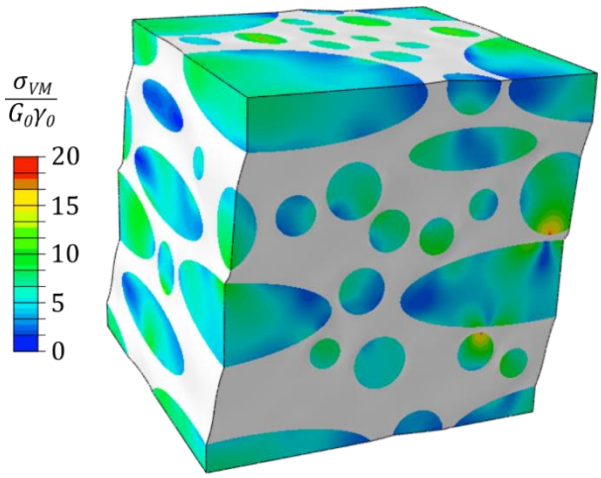


Figure 78 : Contrainte de Von Mises normalisée par $G_0\gamma_0$ dans les particules du VER en configuration déformée

4.2.3 Influence de la rigidité de la matrice sur le module de cisaillement du joint

Cette section présente l'évolution de la rigidité de la matrice $E_0 \in [1\,\text{MPa}\,;1\,\text{GPa}]$, l'orientation des particules ellipsoïdales étant fixée à l'horizontale $\phi = 0°$. Il est intuitivement attendu que le module de cisaillement homogénéisé G^{hom} dépende linéairement de E_0 au moins pour les forts contrastes de rigidité $E_i/E_0 \geq 10^3$ car les charges peuvent être considérées totalement rigides dans ce cas-là. Une évolution de la forme suivante est donc proposée :

$$G^{hom} = A(E_0)^b \quad \text{avec } b \sim 1 \qquad \textbf{Eq 19}$$

La Figure 79 présente les résultats des schémas analytiques (dilué, Mori-Tanaka, Ponte-Castaneda-Willis avec $w^d = 0{,}415$, et différentiel) et des méthodes FEM et FFT, la régression de la formule Eq 19 est effectuée sur la plage $[1\,\text{MPa}\,;\,100\,\text{MPa}]$ et affichée dans la légende de la Figure 79. Le seul schéma déviant significativement (plus de $0{,}5\,\%$) de l'hypothèse de linéarité $b \sim 1$ est la méthode FFT avec $b = 0{,}936$. Le code FFT ne semble donc pas donner de résultats entièrement fiables pour des forts contrastes $E_i/E_0 \geq 10^3$. Les résultats s'éloignent d'ailleurs progressivement des autres schémas quand E_0 diminue en prédisant un module homogénéisé plus élevé. Ce comportement curieux à fort contraste n'est pas expliqué, la méthode FFT ayant déjà donné des résultats fiables pour l'homogénéisation de milieux poreux (donc à contraste infini).

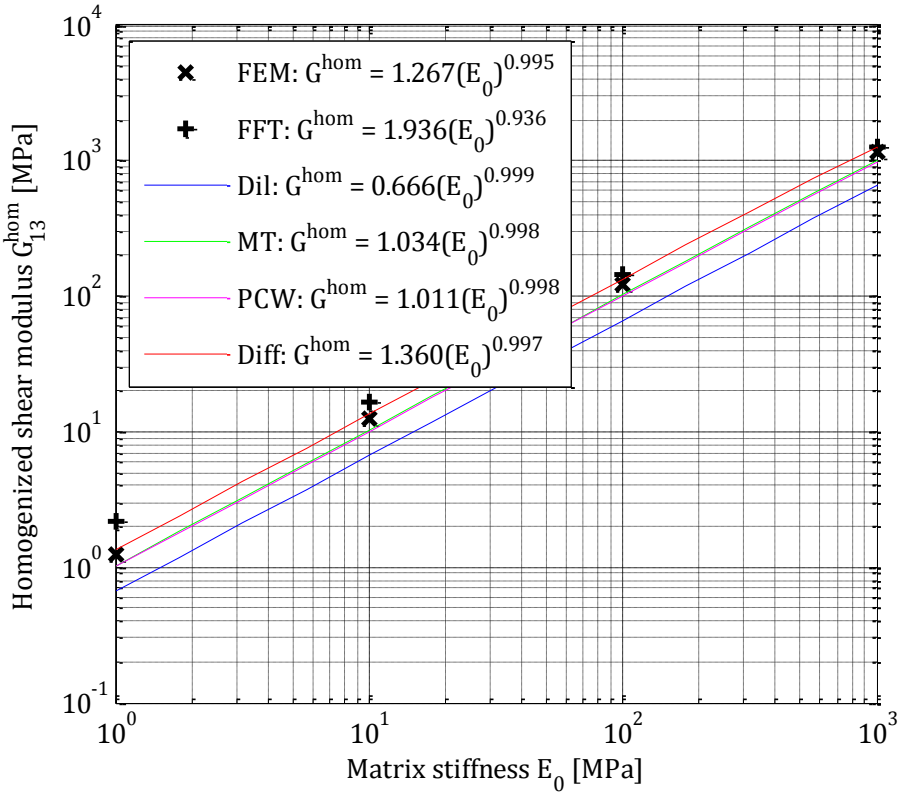


Figure 79 : Réponse des schémas d'homogénéisation pour une rigidité de la matrice variant de 1 MPa **à** 1 GPa

Concernant le préfacteur A de l'équation Eq 19, le schéma analytique se rapprochant le plus des résultats FEM est le schéma différentiel, avec $A_{FEM} = 1{,}27$ et $A_{Diff} = 1{,}36$ soit 7 % de surestimation par rapport aux résultats Eléments Finis alors que les autres schémas analytiques sont à au moins 17 % de sous-estimation. Ceci illustre bien les limites des schémas dilué, MT et PCW pour les fortes fractions volumiques contrairement au schéma différentiel.

Le module de cisaillement de la matrice quasi-incompressible ($\nu_0 = 0{,}49$) vaut $G_0 = E_0/\big(2(1+\nu_0)\big) \sim E_0/3$. Il est donc déduit que la présence des charges dans la matrice la rigidifie d'un facteur $G^{hom}/G_0 \sim 4$. Il est ici rappelé que la valeur de ce facteur de renforcement est à prendre en ordre de grandeur, étant donné les approximations de modélisation présentées dans l'introduction de ce chapitre.

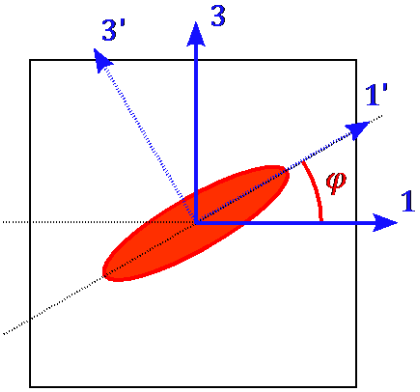
4.2.4 Influence de l'orientation des particules sur le module de cisaillement du joint

Comme expliqué plus haut, seules les orientations comprises entre $0°$ et $45°$ seront étudiées, les autres pouvant se déduire par symétrie du chargement dans le cadre des petites déformations. Il est attendu que le VER se rigidifie quand les particules sont orientées à $45°$ de l'horizontale car cette orientation coïncide avec les directions principales de chargement lors d'un chargement de cisaillement. L'approche est différente selon que le schéma est analytique ou numérique :

Schémas analytiques : la formule de rotation d'un tenseur d'ordre 4 est utilisée. Connaissant la matrice de rotation R pour passer de la base $\mathcal{B}$ à la base $\mathcal{B}'$, les formules de rotation pour un vecteur X et un tenseur $\boldsymbol{C}$ d'ordre 4 s'écrivent

$$X = R \cdot X' \Leftrightarrow X_i = R_{im} X_m{}'$$

$$\boldsymbol{C}_{ijkl} = R_{im} R_{jn} R_{kp} R_{lq} \boldsymbol{C}_{mnpq}{}'$$



Dans la situation de l'étude (cf schéma ci-contre), la matrice de rotation R s'écrit

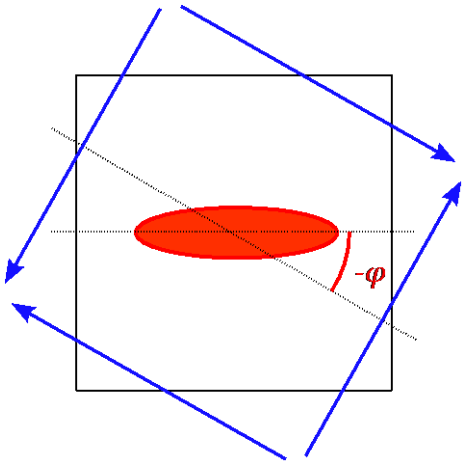
$$R(\phi) = \begin{pmatrix} \cos\phi & 0 & -\sin\phi \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin\phi & 0 & \cos\phi \end{pmatrix}$$

Après calculs et prise e compte des symétries de C, il est obtenu :

$$G_{13}(\phi) = (c^2 - s^2)^2 \times G_{13}(0°) + (cs)^2 \times \left(\boldsymbol{C}_{11}(0°) + \boldsymbol{C}_{33}(0°) - \boldsymbol{C}_{13}(0°) - \boldsymbol{C}_{31}(0°)\right)$$
$$\text{avec } c = \cos\phi \text{ et } s = \sin\phi$$

$\boldsymbol{C}_{13}(0°) = \boldsymbol{C}_{31}(0°)$ si la symétrie majeure est conservée, ce qui n'est pas forcément le cas avec le schéma de Mori-Tanaka.

Schémas numériques : une possibilité est de faire tourner la microstructure d'un angle ϕ, ou plus astucieusement de faire tourner le chargement de cisaillement γ_{13} d'un angle $-\phi$ comme illustré sur le schéma ci-contre. Le tenseur de déformation macroscopique à appliquer au VER devient donc



$$E(\phi) = {}^t R(\phi) \begin{bmatrix} 0 & 0 & \gamma_0/2 \\ 0 & 0 & 0 \\ \gamma_0/2 & 0 & 0 \end{bmatrix} R(\phi)$$

$$= \frac{\gamma_0}{2} \begin{bmatrix} 2cs & 0 & c^2 - s^2 \\ 0 & 0 & 0 \\ c^2 - s^2 & 0 & -2cs \end{bmatrix} \text{ avec } c = \cos\phi \text{ et } s = \sin\phi$$

La contrainte de cisaillement dans le repère tourné de $-\phi$ est récupérée avec la formule de rotation

$$\Sigma_{13}(\phi) = cs(\Sigma_{11} - \Sigma_{33}) + (c^2 - s^2)\Sigma_{13}$$

Enfin, le module de cisaillement est défini par $G_{13}(\phi) = \Sigma_{13}(\phi)/(\gamma_0/2)$.

Avec ces deux méthodes, la réponse des schémas est étudiée pour $\phi \in [0° ; 45°]$ pour deux rigidités de la matrice : $E_0 = 1$ MPa et $E_0 = 1$ GPa. En particulier, les variations relatives du module de cisaillement $G^{hom}(\phi)/G^{hom}(0°)$ sont tracées dans la Figure 80 pour $E_0 = 1$ GPa et dans la Figure 81 pour $E_0 = 1$ MPa.

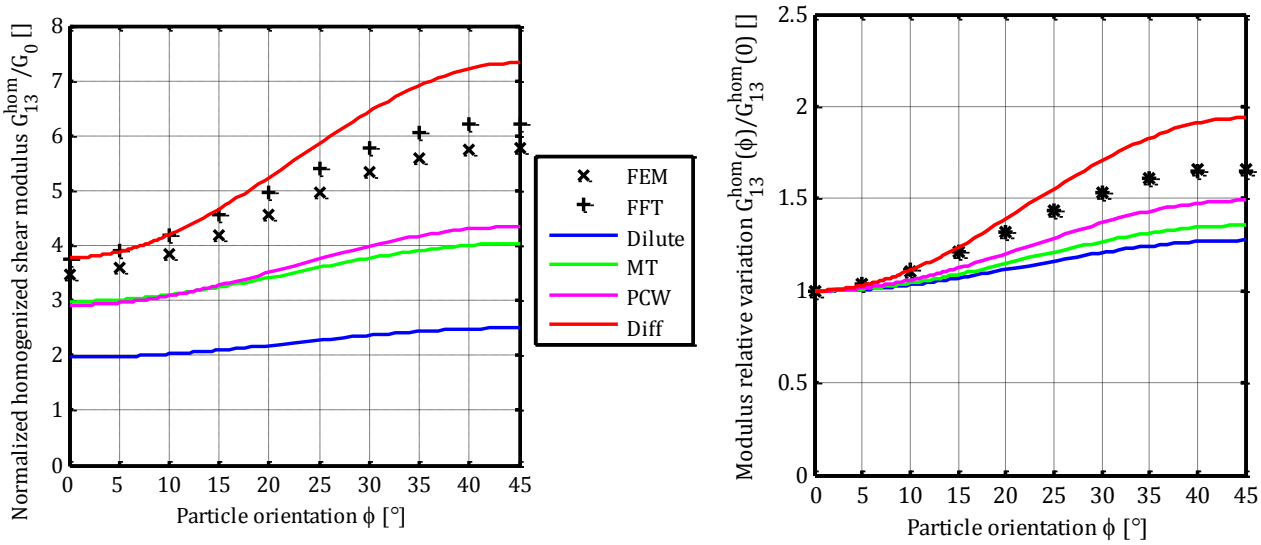


Figure 80 : Variation du module de cisaillement homogénéisé avec l'orientation des particules pour $E_0 = 1\ GPa$

La Figure 80 montre que le matériau est plus rigide quand les ellipsoïdes sont alignés avec les directions principales du chargement à $\phi = 45°$ de l'horizontale. Les schémas FFT et FEM donnent la même variation relative $G^{hom}(\phi)/G^{hom}(0°)$, prouvant le meilleur comportement du code FFT quand le contraste de phases est plus réduit ($E_i/E_0 = 83$ dans ce cas-là). La variation maximale $G^{hom}(45°)/G^{hom}(0°)$ vaut 1,66 d'après les deux schémas numériques. Le schéma différentiel a tendance à surestimer la variation par rapport aux schémas numériques. En revanche l'allure de la variation relative du schéma PCW est particulièrement proche grâce à l'introduction du rapport d'aspect w^d de la distribution spatiale. Ce paramètre permet donc de bien rendre compte du comportement du matériau, au moins du point de vue qualitatif (car les prédictions absolues du schéma PCW restent nettement en-dessous des prédictions numériques à cause de la fraction volumique f élevée). En revanche, les schémas dilué et MT sous-estiment nettement et la valeur du module et sa variation avec ϕ.

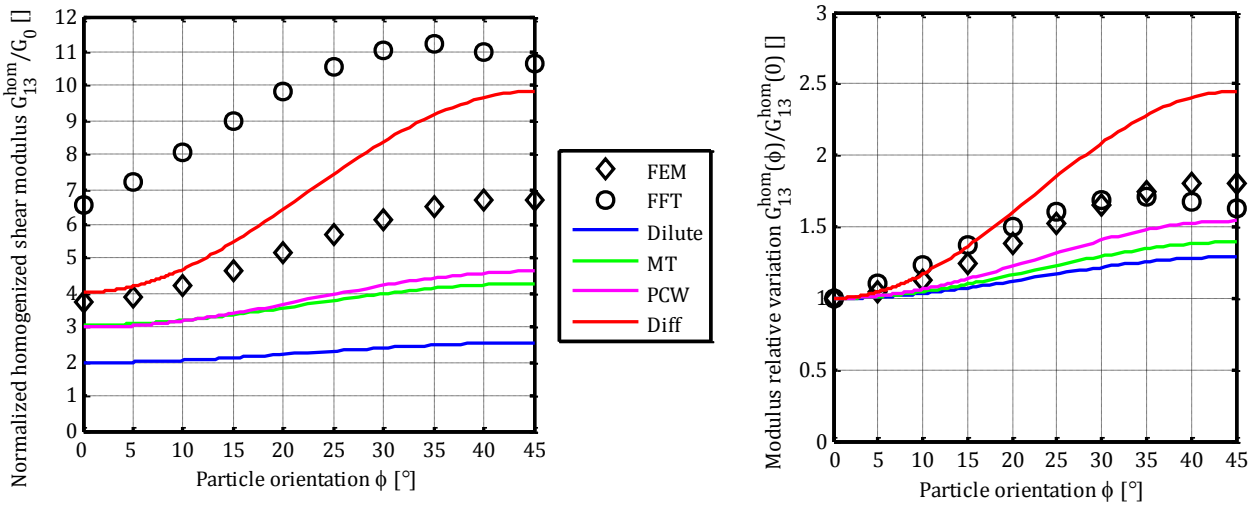


Figure 81 : Variation du module de cisaillement homogénéisé avec l'orientation des particules pour $E_0 = 1\ MPa$

Pour une matrice souple $E_0 = 1\ \mathrm{MPa}$, la Figure 81 montre cette fois les limites aux forts contrastes du code FFT qui exhibe une augmentation du module avec ϕ puis une diminution non-expliquée dès $\phi > 35°$. Mis à part ce point, des conclusions très similaires à celles pour $E_0 = 1\ \mathrm{GPa}$ peuvent être tirées :

- une variation obtenue par FEM de $G^{hom}(45°)/G^{hom}(0°) = 1{,}8$;
- une surestimation du schéma différentiel mais un comportement du schéma PCW intéressant pour la variation relative, des schémas dilué et MT trop éloignés des données FEM.

Cette étude montre que la rigidité du joint adhésif peut localement varier d'un facteur 2 (en ordre de grandeur) en fonction de l'orientation ϕ prise par les particules durant la polymérisation du joint. Cette information est importante : en effet, les substrats très rigides par rapport au joint imposent une déformation de glissement simple à peu près constante sur toute la longueur du joint (sauf hypothétiquement aux extrémités en cas d'effets de bord éventuels). Ceci implique donc que l'état de contrainte du joint peut présenter des gradients sur sa longueur et des variations d'environ $100\ \%$ dans les quelques zones caractérisées par $\phi = 45°$ par rapport à la majorité du joint où $\phi \sim 0°$ (cf histogramme de la Figure 68).

4.3 Résultats FEM avec une modélisation hyperélastique de la matrice

La méthode des Eléments Finis permet sans grand effort supplémentaire de passer des calculs linéaires aux calculs non-linéaires hyperélastiques en grandes transformations. Des simulations hyperélastiques ont donc été menées dans le but d'obtenir des informations additionnelles sur le comportement de la microstructure. Les lois de comportement utilisées dans cette partie seront Néo-Hookéennes sauf mention contraire, compressibles ou non. Le lecteur est invité à se référer au paragraphe 1.1 concernant la modélisation hyperélastique pour plus d'informations à ce sujet. Il est rappelé ici que pour une sollicitation de glissement simple, cette loi de comportement donne une relation linéaire entre la contrainte vraie de cisaillement σ_{ij} et le glissement simple γ_{ij} :

$$\sigma_{ij} = G\gamma_{ij} \quad \text{avec} \quad G = 2C_{10}$$

Dans un premier temps, l'évolution de la dispersion des contraintes hydrostatique et équivalente dans la matrice est présentée en fonction de différents paramètres :

- la rigidité $G_0 = C_{10}/2$ de la matrice ;
- sa compressibilité, caractérisée par son coefficient de Poisson ν_0 (cf. Eq 1 pour sa définition) ;
- l'orientation des particules ϕ ;
- l'amplitude du glissement simple $\gamma_{13} = \gamma_0$.

Ensuite l'influence de la pression hydrostatique sur le module homogénéisé du joint sera illustrée. Enfin une rapide étude des contraintes résiduelles dues au refroidissement du joint après sa cuisson est abordée.

4.3.1 Dispersion des contraintes hydrostatique et déviatorique

La distribution des contraintes hydrostatique et équivalente est l'objet de ce paragraphe. Ces deux invariants du tenseur des contraintes (ou de son déviateur) présentent un intérêt car ils sont chacun responsables d'un mode de rupture différent (respectivement la cavitation intra-matrice et la décohésion matrice-particule) comme il sera abordé dans le Chapitre 5 suivant. Les définitions de la contrainte hydrostatique σ_h et de la contrainte équivalente σ_{eq} (cf. 1.1) sont :

$$\begin{cases} \sigma_h = \frac{1}{3}\mathrm{tr}\,(\sigma) = \frac{1}{3}(\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33}) \\ \sigma_{eq} = \sigma_{VM} = \sqrt{\frac{3}{2}(\sigma - \sigma_h I) : (\sigma - \sigma_h I)} \end{cases}$$

Afin de pouvoir facilement comparer les distributions entre elles, il sera considéré dans les graphes suivants :

- la contrainte hydrostatique σ_h normalisée par le produit du module de cisaillement de la matrice et du glissement simple $G_0 \times \gamma_0$. Ce produit représente simplement la réponse de la matrice homogène (non-chargée) de rigidité G_0 à un chargement de cisaillement γ_0. Pour une telle sollicitation, la contrainte hydrostatique devrait être en moyenne nulle, la distribution devrait donc être centrée en $\sigma_h = 0$.
- la contrainte équivalente σ_{VM} normalisée par le produit $\sqrt{3}G_0\gamma_0$. Ce produit correspond à la contrainte de Von Mises dans une matrice homogène de module G_0 soumis à un cisaillement γ_0. Les particules rigidifiant le composite final, la distribution de σ_{VM} devrait être décalée sur la droite de la quantité $\sqrt{3}G_0\gamma_0$.

Influence de la rigidité G_0 de la matrice : le chargement de cisaillement détaillé dans le Tableau 11 est imposé au VER. Il faut noter que ce chargement n'est pas complètement isochore car le volume du cube déformé varie en $\Delta V/V = \Delta V/L^3 = -(\gamma_0/2)^2$, qui n'est plus négligeable dans le cadre des grandes transformations. Les particules sont alignées horizontalement $\phi = 0°$ et la matrice est considérée complètement incompressible $\nu_0 = 0{,}5$. Abaqus® permet en effet l'incompressibilité stricte pour une loi hyperélastique en fixant le paramètre de la loi $D_1 = 0$, contrairement aux calculs linéaires présentés dans la partie 4.2 précédente. L'amplitude du chargement est limitée à $\gamma_0 = 0{,}01\%$ afin de minimiser les effets de variation de volume ($\Delta V/V \sim 10^{-8}$).

La Figure 82 présente les distributions de σ_h et σ_{VM} pour différentes rigidités G_0 de la matrice. Pour les matrices souples (G_0 faible), la distribution de contrainte hydrostatique n'est plus exactement centrée en 0 à cause la variation du volume $\Delta V/V$. La queue de distribution de $\sigma_h > 0$ ne varie pas significativement avec G_0 : plus de $12\,\%$ de la matrice présente une contrainte hydrostatique σ_h supérieure à $2G_0\gamma_0$. L'influence de G_0 est plus présente sur la contrainte équivalente : la distribution s'élargit quand G_0 diminue pour tendre vers une distribution asymptotique, atteinte quand $G_0 = 10$ MPa.

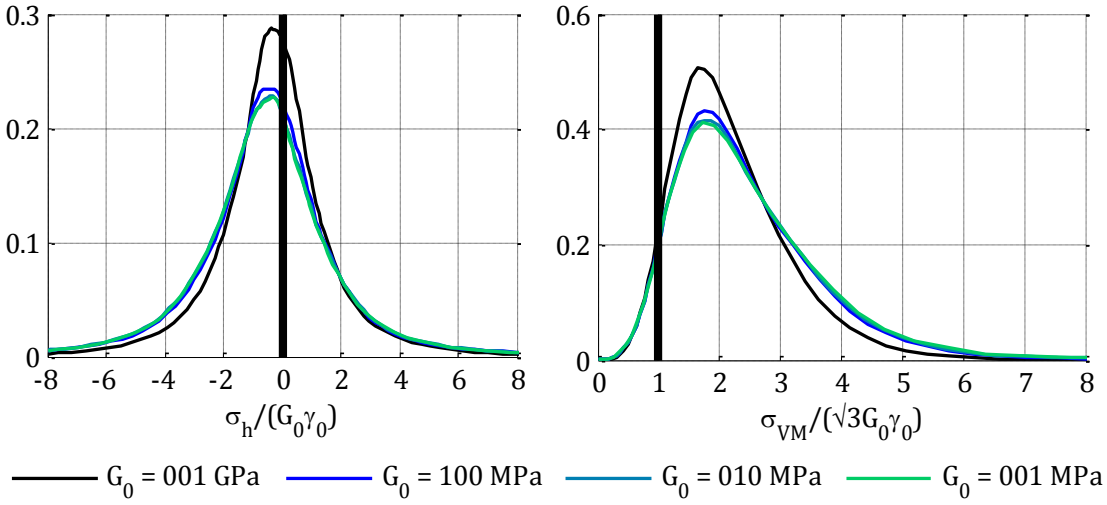


Figure 82 : Distribution des contraintes hydrostatique σ_h et équivalente σ_{VM} dans la matrice pour différentes rigidités G_0

En-dessous de cette valeur de $G_0 = 10$ MPa, les particules se comportent donc comme des corps rigides dans la matrice et la distribution n'évolue plus. Ce constat est à rapprocher de l'évolution linéaire du module du VER avec G_0 (cf équation Eq 19) jusqu'à 100 MPa constatée dans la section 4.2.3. L'approximation de particules rigides est valide du point de vue de l'élasticité homogénéisée avant de l'être pour la distribution de contraintes dans le VER.

Influence de la compressibilité ν_0 de la matrice : le chargement de cisaillement détaillé dans le Tableau 11 est toujours utilisé ici. Le module de cisaillement de la matrice G_0 est fixé à 10 MPa car les distributions asymptotiques étaient atteintes à cette valeur. Les particules sont toujours horizontales $\phi = 0°$ et l'amplitude du cisaillement est la même $\gamma_0 = 0{,}01\%$. La Figure 83 présente les distributions de σ_h et σ_{VM} pour différentes compressibilités ν_0 de la matrice.

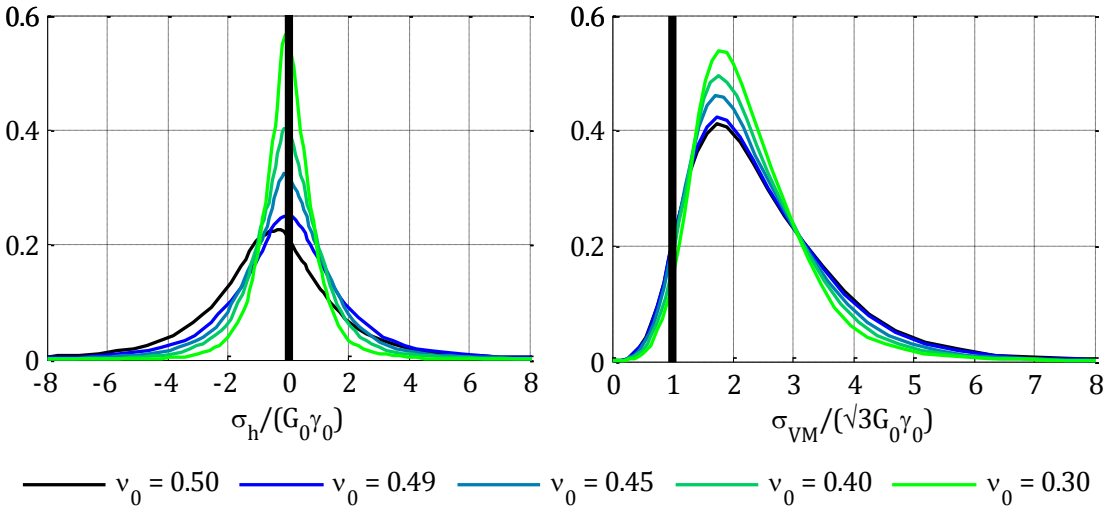


Figure 83 : Distribution des contraintes hydrostatique σ_h et équivalente σ_{VM} dans la matrice pour différentes compressibilités ν_0

Pour une matrice compressible, la Figure 83 montre que les distributions sont beaucoup plus resserrées comparées à une matrice incompressible. Par exemple, l'écart-type de la distribution de σ_h est multiplié par 2,3 entre les configurations $\nu_0 = 0{,}3$ et $\nu_0 = 0{,}5$. Le même phénomène est observé sur la contrainte équivalente σ_{VM}. La compressibilité de la matrice a donc une forte influence sur la distribution des contraintes, même pour un chargement qui - à 10^{-8} près- est isochore.

Influence de l'orientation ϕ des particules : Le chargement de cisaillement détaillé dans le Tableau 11 est tourné d'un angle $-\phi$ comme expliqué dans le paragraphe 4.2.4. Les autres paramètres sont fixés à $G_0 = 10$ MPa, $\nu_0 = 0{,}5$ et $\gamma_0 = 0{,}01\%$. Les distributions de σ_h et σ_{VM} en fonction de ϕ sont affichées Figure 84 : l'influence de ϕ est encore plus marquée que celle du coefficient de Poisson car les distributions de σ_h deviennent très fortement plates et présentent des plateaux pour des particules alignées avec les directions principales du chargement (c'est-à-dire $\phi = 45°$). La forme de la distribution perd visiblement son caractère gaussien en même temps qu'il est de plus en plus centré vers les contraintes hydrostatiques négatives, à cause de la diminution de volume due à l'application du chargement. Le volume de matrice où la contrainte hydrostatique dépasse $2G_0\gamma_0$ double quand ϕ passe de $0°$ à $45°$. Du côté de la contrainte équivalente, la largeur à mi-hauteur du pic augmente de $55\,\%$ quand ϕ passe de $0°$ à $45°$. Ces deux derniers constats montrent qu'une rupture (par cavitation ou décohésion) s'initiera préférentiellement aux endroits où l'orientation des particules s'approche de $\pm\,45°$.

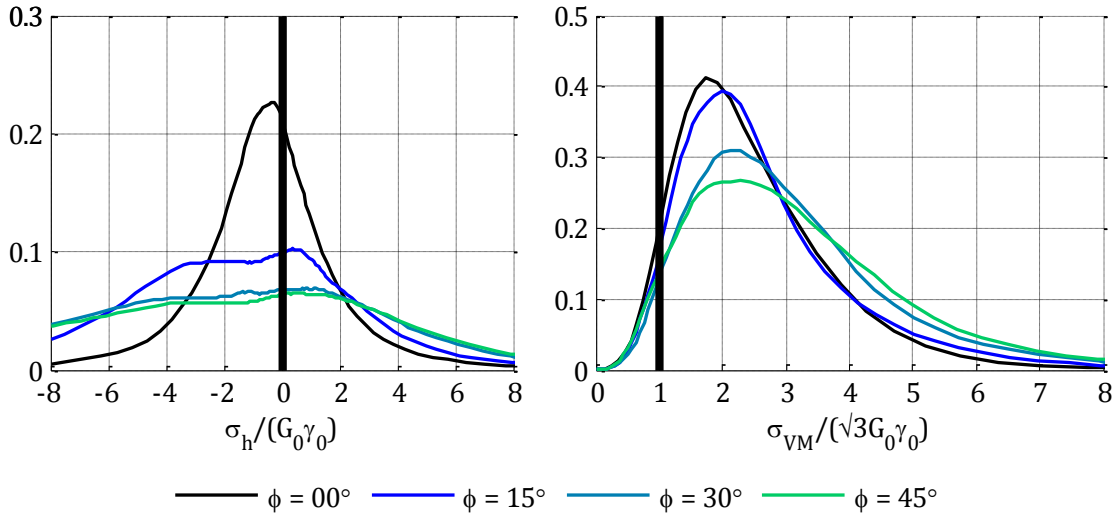


Figure 84 : Distribution des contraintes hydrostatique σ_h et équivalente σ_{VM} dans la matrice pour différentes orientations de particules ϕ de $0°$ à $45°$

Influence de l'amplitude γ_0 du chargement : les caractéristiques de la matrice sont fixées à $G_0 = 10$ MPa et $\nu_0 = 0{,}5$, l'orientation $\phi = 0°$. Etant donné les amplitudes de chargement mises en jeu, le chargement est modélisé par un vrai glissement simple (voir Tableau 13) plus représentatif de la réalité et surtout parfaitement isochore. Pour améliorer encore la représentativité du chargement, la condition

limite en déplacement u_3 sur le point C $(0,0,L)$ est relâchée et remplacée par une condition en force $f_3 = 0$: le joint n'est pas chargé verticalement (dans la direction normale à son plan).

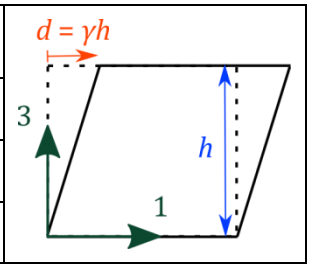
Déplacement \ Point	O (0,0,0)	A $(L,0,0)$	B $(0,L,0)$	C $(0,0,L)$	
u_1	0	0	0	$\gamma_0 L$	
u_2	0	0	0	0	
u_3	0	0	0	-	

Tableau 13 : Conditions limites en déplacement correspondant à un chargement de glissement simple

La Figure 85 illustre les distributions de σ_h et σ_{VM} pour trois amplitudes de glissement : 1 %, 14 % et 28 %. L'influence de γ_0 sur σ_h est plutôt inattendue : la dispersion n'augmente pas, mais la distribution se décentre vers les contraintes hydrostatiques positives. Ce comportement est uniquement dû aux linéarités des grandes transformations et non au chargement appliqué car la force verticale du point C est volontairement nulle pour éviter de s'opposer à la contraction ou la dilation naturelle du VER. La dispersion de la contrainte équivalente augmente également légèrement quand l'amplitude du chargement augmente, mais dans des proportions limitées par rapport à celles des autres paramètres investigués dans cette étude (G_0, ν_0, ϕ). Cette légère augmentation peut être expliquée par le faible raidissement de la courbe (σ, ε) du modèle Néo-Hookéen par rapport à la droite linéaire élastique (cf Figure 2) pour des déformations supérieures à 50 %.

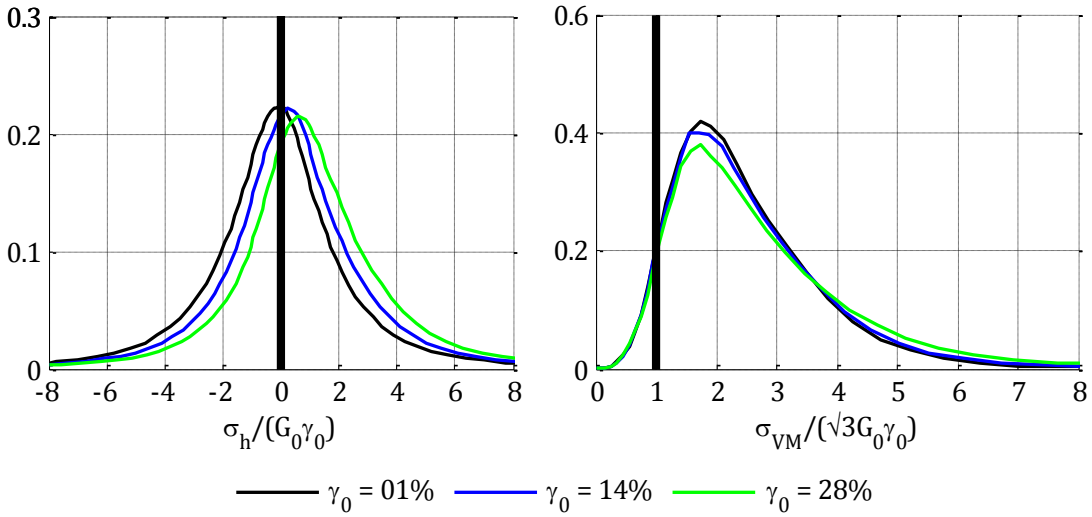


Figure 85 : Distribution des contraintes hydrostatique σ_h et équivalente σ_{VM} dans la matrice pour différentes amplitudes de chargement γ_0

A titre d'illustration de ce raidissement, le module de cisaillement sécant G^{hom} du VER est introduit et défini comme suit :

$$G_{13}^{hom}(\gamma_{13}) = \frac{\sigma_{13}(\gamma_{13})}{\gamma_{13}}$$

Ce module sécant a été calculé avec une loi Néo-Hookéenne (NH) et une loi de Mooney-Rivlin (MR) pour saisir l'effet d'un éventuel adoucissement (interne à la loi MR) dans la réponse finale du joint et l'écart de cette réponse à la linéarité de ces lois pour des matériaux homogènes :

$$G = \frac{\sigma_{13}}{\gamma_{13}} = 2(C_{10} + C_{01})$$

La Figure 86 montre que le module sécant reste relativement constant tout au long de la simulation : $1{,}8\ \%$ d'augmentation pour une matrice Néo-Hookéenne et $3{,}6\ \%$ d'augmentation pour une matrice du type Monney-Rivlin. Le raidissement le plus important apparaît avec la loi de Mooney-Rivlin et non avec la loi Néo-Hookéenne. Ceci reste à première vue non cohérent avec l'adoucissement de la loi de Mooney-Rivlin, mais peut être expliqué par son raidissement plus prononcé dans le domaine des compressions comme en témoigne la Figure 2. Les zones de la matrice en compression seraient donc responsables du léger raidissement du joint.

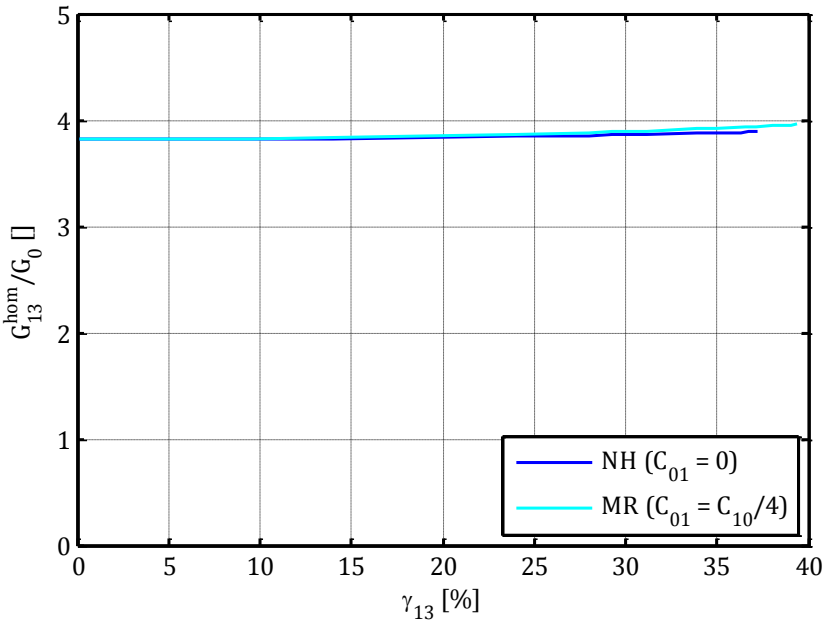


Figure 86 : Réponse du VER en grandes transformations avec une loi Néo-Hooke (NH) et Mooney-Rivlin (MR) pour la matrice

L'utilisation des lois Néo-Hookéenne et Mooney-Rivlin pour cette étude de l'influence de γ_0 peuvent néanmoins se discuter vis-à-vis des niveaux de déformations atteints : en effet la déformation macroscopique maximale est $28\ \%$, mais l'amplification de la déformation locale dans la matrice par rapport à une matrice homogène (reliée à l'amplification de la contrainte équivalente illustrée Figure 85) implique qu'une bonne partie de la matrice est sollicitée à des déformations bien supérieures (aux alentours de $3 \times 28\ \% \sim 100\ \%$). Les lois hyper-élastiques utilisées ici atteignent largement leurs limites à ces déformations. Les lois valables à ces fortes déformations exhibent classiquement un raidissement, impliquant des contraintes plus élevées. Les distributions effectives devraient donc être légèrement plus larges et aplaties que celles calculées et tracées en Figure 85.

4.3.2 Influence de la pression hydrostatique

Cette partie présente les résultats obtenus en faisant varier la contrainte verticale σ_{33} sur le VER. Pour se faire, le chargement est appliqué de manière identique à l'étude de l'influence de γ_0 dans le paragraphe précédent, et expliqué dans le Tableau 13 : un glissement simple γ_{13} et une force verticale f_3 au point C $(0,0,L)$ qui modélise une pression hydrostatique appliquée à l'assemblage collé qui résulte en une contrainte σ_{33} dans le joint (cf hypothèses du paragraphe 1.3). Les calculs sont menés pour une matrice Néo-Hookéenne incompressible ($G_0 = 10$ MPa, $\nu_0 = 0{,}5$) avec des particules horizontales $\phi = 0°$ et une amplitude de cisaillement $\gamma_0 = 1\,\%$ (le module sécant homogénéisé est constant dans cette gamme d'amplitude de déformation d'après la Figure 86). La Figure 87 illustre les résultats des simulations avec les points bleu foncé. Les résultats (en bleu clair) de calculs effectués avec une matrice compressible $\nu_0 = 0{,}35$ y sont ajoutés afin de comprendre si l'effet de la pression hydrostatique dépend de la compressibilité de la matrice.

Dans le cas incompressible ($\nu_0 = 0{,}5$), la relation $p = -\sigma_h = -\sigma_{33}$ reste vraie. De manière similaire au paragraphe 3.2.3 exposant les résultats expérimentaux sur la pression hydrostatique, il est obtenu :

$$G^{hom}(p) = G^{hom}(0)\left(1 + \frac{p}{p_0}\right) \text{ avec } p_0 = 7{,}6 \text{ MPa}$$

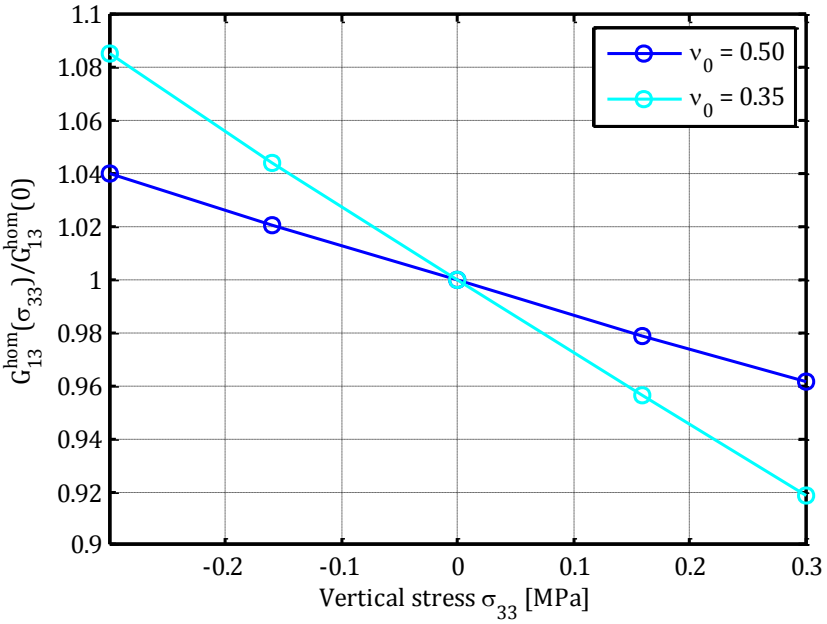


Figure 87 : Evolution du module de cisaillement homogénéisé avec la contrainte hors-plan σ_{33} pour deux niveaux de compressibilité de la matrice

Pour rappel, le coefficient identifié expérimentalement vaut $p_0 = 3{,}2$ MPa pour le joint silicone. Le facteur 2 entre les deux peut avoir plusieurs origines différentes :

- l'approximation des formes des charges argent dans la matrice, qui sont plutôt plus allongées que les ellipsoïdes considérés dans cette étude numérique.

- l'influence de la pression, qui peut être modélisée de manière visqueuse comme illustré dans le paragraphe biographique 3.1.4. Cette étude passe forcément à côté de cet aspect par le choix des calculs élastiques reposant sur l'hypothèse de séparation des variables d'espace et du temps.

Néanmoins l'hyperélasticité permet de mettre en exergue cette dépendance à la pression hydrostatique, qui est totalement absente en élasticité linéaire.

D'autre part, la Figure 87 montre également qu'une matrice plus compressible devient encore plus sensible à la pression avec $p_0 = 3{,}6$ MPa pour $\nu_0 = 0{,}35$. Cette observation n'est pas en accord avec les résultats du joint polyimide (dont la matrice se rapproche de $\nu = 0{,}35$ d'après la littérature), qui ne présentait aucune dépendance à la pression. Cette contradiction peut avoir plusieurs raisons :

- la matrice polyimide est bien plus rigide que $G_0 = 10$ MPa, et ce phénomène serait beaucoup moins marqué quand le contraste entre les phases se réduit. En effet il est nécessairement inexistant pour un cube de matrice hyperélastique homogène.
- à température ambiante, la matrice polyimide a un comportement vitreux sans doute plus proche du linéaire élastique qu'hyperélastique caoutchoutique. Or les calculs linéaires élastiques n'ont montré aucune dépendance à la pression hydrostatique.
- l'influence de la pression serait exclusivement visqueuse et se ferait sentir seulement à l'approche de la T_g et au-dessus, or à température ambiante la polyimide est 200°C en-dessous de sa T_g.

4.3.3 Etude des contraintes résiduelles

Cette étude numérique se conclut avec les contraintes résiduelles qui proviennent du rétreint du joint après cuisson. En effet le joint cuit à des températures élevées (confidentielles) dont l'ordre de grandeur est d'environ 200°C au-dessus de la température ambiante T_a. Un chargement thermique de refroidissement intermédiaire $\Delta T = -180$°C sera donc ici considéré. Les coefficients d'expansion thermique (CTE) α utilisés ont les valeurs suivantes :

	Charges argent	Matrice	Substrats aluminium
CTE $10^6\alpha\ [K^{-1}]$	19	330	23

La valeur du CTE de la matrice est typique de celle d'un polymère silicone. Les autres données d'entrées sont similaires à la partie précédente : $G_0 = 1$ MPa, $\nu_0 = 0{,}5$, $\phi = 0°$.

Dans un premier temps, un rétreint « libre » est d'abord simulé, où les conditions limites sur les nœuds A, B et C sont libres d'effort dans la direction portée par la droite passant par le point en question et l'origine O, c'est-à-dire :

$$f_1(A) = f_2(B) = f_3(C) = 0$$

Les contraintes calculées dans ce cas proviennent de la différence de dilatation thermique entre la matrice et les charges. Considérant l'isotropie dans le plan horizontal vérifiée au paragraphe 4.2.1, il est attendu un coefficient de dilatation thermique du joint différent dans son plan et dans sa direction normale :

$$\alpha^{hom} = \alpha_{pp}^{hom}\left(\underline{e}_1 \otimes \underline{e}_1 + \underline{e}_2 \otimes \underline{e}_2\right) + \alpha_{33}^{hom}\underline{e}_3 \otimes \underline{e}_3$$

La Figure 88 illustre le comportement du VER dans les trois directions lors d'un rétreint libre. Les valeurs des CTE obtenues pour chaque direction sont affichées dans la légende de la figure. La différence entre α_{11}^{hom} et α_{22}^{hom} est de 3,2 %, alors que α_{33}^{hom} a plus de 20 % d'écart avec les deux autres.

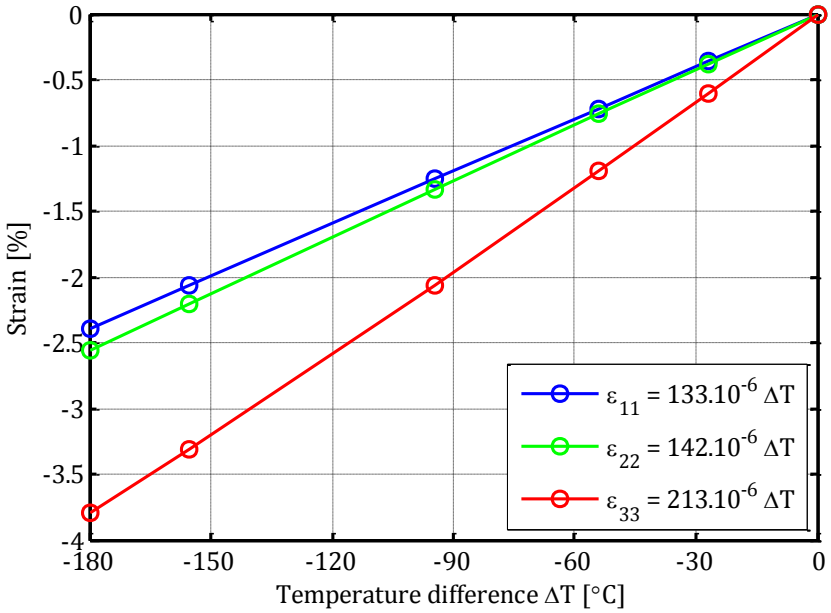


Figure 88 : Rétreint libre du VER dans les trois directions pour une différence de température appliquée de 200℃

Etant donné cette différence, l'approximation suivante sera considérée valide :

$$\begin{cases} \alpha_{11}^{hom} = \alpha_{22}^{hom} = \alpha_{PP}^{hom} = 138 \cdot 10^{-6}\ \mathrm{K}^{-1}\ (\pm 3\ \%) \\ \alpha_{33}^{hom} = 213 \cdot 10^{-6}\ \mathrm{K}^{-1} \end{cases}$$

Dans un second temps, le changement apporté par la présence des substrats en aluminium est étudié : ces derniers contrôlent en effet le rétreint dans le plan horizontal grâce à leur rigidité beaucoup plus élevée, en changeant les conditions limites de la sorte :

$$\begin{cases} u_1(A) = u_2(B) = (\alpha_{alu}\Delta T)L \\ f_3(C) = 0 \end{cases}$$

Ici, les contraintes ont pour origine la différence de CTE entre charges et matrice, mais également la différence entre le CTE α_{pp}^{hom} dans le plan du joint et celui des substrats α_{alu}. Dans ce cas particulier, le calcul nous donne un CTE de l'assemblage collé dans la direction hors-plan $\alpha_{33}^{assemblage} = 429 \cdot 10^{-6}\ \mathrm{K}^{-1}$. Cette valeur est encore plus grande que celle de la matrice seule ($330 \cdot 10^{-6}\ \mathrm{K}^{-1}$) donc

illustre bien l'effet des substrats sur l'assemblage collé. D'autre part, une contrainte hydrostatique positive dans le joint est attendue car le joint est étiré dans son plan à cause du CTE de l'aluminium plus faible que celui du joint.

Cet effet peut également être étudié du point de vue de la dispersion des contraintes dans la matrice. La Figure 89 montre la distribution de la contrainte hydrostatique et la contrainte équivalente dans la matrice. Ces deux mesures de la contrainte ont été normalisées par le module d'Young de la matrice incompressible $E_0 = 3\ G_0$.

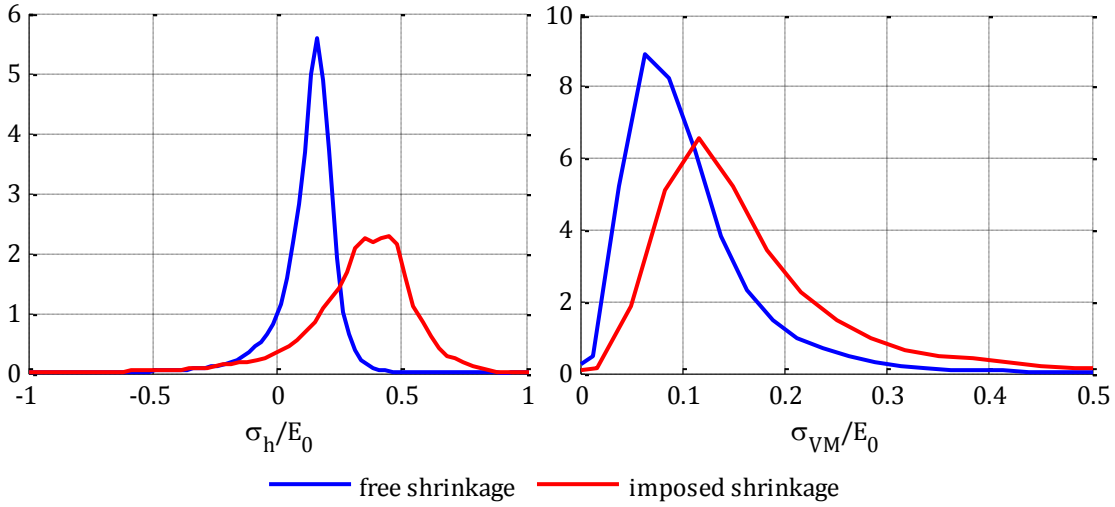


Figure 89 : distribution des contraintes σ_h et σ_{VM} dans la matrice pour les deux rétreints étudiés: libre et avec substrat (appelé « imposé » dans la légende)

Dans le cas du rétreint libre, une contrainte hydrostatique moyenne aux alentours de $0{,}15\ E_0$ apparaît. Elle est due à la différence de dilatation entre les charges et la matrice. Cette contrainte moyenne est grandement augmentée jusqu'à $0{,}4\ E_0 = 1{,}2\ G_0$ quand les substrats sont pris en compte dans le calcul. Du côté de la contrainte équivalente, le pic est décalé sur la droite de $64\ \%$ et élargi de $30\ \%$.

Ces valeurs de contrainte sont assez importantes, puisqu'environ $50\ \%$ de la matrice est chargée avec $\sigma_h \geq G_0$ et $15\ \%$ avec $\sigma_{VM} \geq G_0$. Néanmoins ces valeurs doivent être relativisées car il n'est pas pris en compte dans ce calcul la relaxation du matériau, qui peut être particulièrement importante à l'échelle de la vie du joint depuis sa cuisson jusqu'à la fin de service. Cette relaxation est difficilement calculable de manière fiable : il faudrait une caractérisation précise du comportement viscoélastique hydrostatique et déviatorique de la matrice seule, qui n'a pas été effectuée dans le cadre de cette thèse.

4.4 Conclusion

Ce chapitre a été l'occasion d'appliquer des raisonnements et méthodes d'homogénéisation dans le cadre des joints adhésifs chargés en cisaillement. Les observations MEB effectuées ont pu montrer la forme anisotrope complexe des charges argent utilisées dans les joints, ainsi que l'orientation globale

cohérente des particules entre elles dans un voisinage qui induit une anisotropie du comportement. L'approche choisie ici repose sur une approximation de la microstructure par des particules ellipsoïdales aplaties alignées entre elles réparties dans une matrice polymère. Certaines simplifications ont été faites par manque d'information ou par souci de garder la complexité du problème posé la plus basse possible, en particulier :

- l'absence d'interphase entre la matrice et les charges, constituant une zone de matrice au contact d'une charge et dont la proximité avec cette charge modifie le comportement (rigidification, réduction de l'élongation à rupture, etc.) ;
- les interfaces matrice-charge considérées parfaites, qui ne permettent donc pas de décohésion entre la matrice et la charge ni de glissement de matrice à la surface de la charge lors de la sollicitation ;
- la distance minimale entre deux charges introduite dans l'algorithme RSA de génération aléatoire de la microstructure. Cette distance peut engendrer des variations dans les résultats homogénéisés. Surtout, elle n'est pas représentative de la réalité car le contact franc des charges est effectif et nécessaire pour rendre le joint électriquement conducteur, ce qui est sa fonction industrielle première.

Malgré ces limites, plusieurs tendances ont pu être soulignées, dont les plus importantes sont rappelées ici :

- L'orientation des particules est un paramètre important pour la rigidité mésoscopique du joint : la rigidité homogénéisée peut varier d'un facteur d'ordre de grandeur 2, certaines zones du joint peuvent donc subir une contrainte deux fois plus élevée lors d'une sollicitation macroscopique de cisaillement suivant l'orientation locale des particules.
- La rigidité en cisaillement s'est révélée être sensible à la pression hydrostatique dans le cas d'une matrice à comportement hyperélastique incompressible ou compressible, alors que cette sensibilité n'existe pas pour des matrices linéaires élastiques (incompressibles ou non). Ce constat est une piste d'explication possible pour l'influence de la pression constatée expérimentalement uniquement avec le joint silicone et non avec le joint polyimide.
- La répartition des contraintes hydrostatique et équivalente a été étudiée en fonction de plusieurs paramètres mécaniques pertinents du matériau composite. Ces données peuvent ensuite servir à expliquer les différents modes de défaillance exposés au chapitre suivant qui font intervenir chacune des deux quantités.

Chapitre 5 Mécanismes et faciès de rupture

Les mécanismes de rupture en fatigue ont été analysés afin d'obtenir des informations supplémentaires sur les modes de défaillance des deux joints adhésifs étudiés. Dans le cadre des assemblages collés, deux types de mécanismes de rupture illustrés Figure 90 sont classiquement distingués :

- les ***ruptures cohésives*** intervenant au cœur d'un des matériaux assemblés. Ces ruptures s'opèrent classiquement au cœur du joint de colle, et mettent donc en œuvre des mécanismes propres au matériau composant le joint adhésif lui-même. Néanmoins, certaines configurations particulières peuvent faire intervenir une rupture interne du substrat, en particulier si le substrat se présente comme une structure laminée dont le processus de collage dégrade une des couches par un quelconque processus physico-chimique. Ces ruptures dans le substrat relèvent généralement d'un problème de conception et/ou de dimensionnement, et ne seront donc pas abordées ici.
- les ***ruptures adhésives*** intervenant à l'interface entre le joint adhésif et le substrat. Ce type de rupture met en œuvre des mécanismes interfaciaux et dépend donc autant de la géométrie de l'interface et des liaisons mises en jeu entre les deux pièces assemblées que des matériaux en eux-mêmes. Une rupture adhésive est donc une information sur l'assemblage collé en entier et non uniquement sur le matériau constituant le joint de colle. Elle est habituellement considérée comme mauvaise car elle intervient forcément avant une éventuelle rupture cohésive et affaiblit donc l'assemblage par rapport aux pièces (substrats et joint massique) considérées séparément. Surtout, tout travail de caractérisation de la résistance d'un assemblage à la rupture adhésive doit être recommencé dès lors qu'un paramètre de l'assemblage (matériau, géométrie de l'interface, processus de fabrication donc rugosité des substrats…) change, contrairement à la rupture cohésive qui peut être étudiée et caractérisée une fois pour toutes en étudiant la rupture massique du joint adhésif.

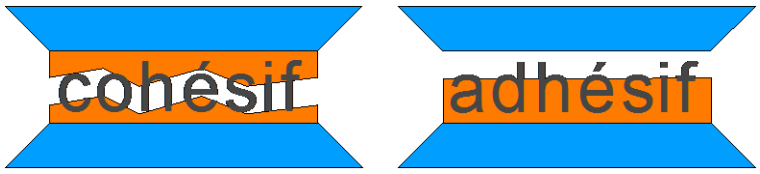


Figure 90 : Schématisation d'une rupture cohésive et d'une rupture adhésive

En résumé, un assemblage collé peut présenter des défaillances de type « matériau » (les ruptures cohésives) et de type « structure » (les ruptures adhésives).

Dans le domaine particulier des joints adhésifs pour des applications électroniques, la défaillance finale du joint est caractérisée par une perte (totale ou partielle en dessous d'un seuil limite défini par un cahier des charges) de conduction électrique. Cette chute de la conduction apparaît uniquement quand la fissure est ouverte. En effet il a été constaté qu'une rupture dans la totalité du joint ne faisait pas varier sa résistance électrique tant que les deux interfaces de rupture restaient en contact mécanique,

grâce à la très haute fraction volumique de charges argent. L'ouverture de la fissure peut s'opérer avec une rupture partielle du joint sous certaines conditions de chargement thermomécanique, ou lors du détachement du composant électrique quand la rupture est totale.

Ce chapitre présente dans un premier temps un rapide état de l'art des modes de défaillances d'un polymère chargé et d'un joint adhésif. Dans un deuxième temps, il propose l'analyse des faciès de rupture obtenus lors des essais en fatigue qui ont servi à alimenter les discussions du chapitre suivant sur la tenue en fatigue.

5.1 Bibliographie des mécanismes de défaillances des joints adhésifs

Cette partie présente l'état de l'art sur les différents mécanismes de rupture des joints adhésifs. Comme expliqué en introduction de ce chapitre, la distinction est habituellement faite entre les mécanismes de rupture interne au joint adhésif (donnant lieu aux ruptures cohésives) et les ruptures aux interfaces :

- Concernant ***les mécanismes cohésifs***, les principales raisons avancées pour la rupture de polymères chargés sont la décohésion de la matrice polymère aux interfaces des charges, et la cavitation de défauts (cavités) microscopiques initialement présents dans le joint adhésif. Suivant le type de renfort utilisé, un troisième mode de défaillance du matériau peut-être la rupture de la charge elle-même : cela peut être le cas avec des renforts de type fibre de verre ou plus rarement noir de carbone, mais n'a jamais été reporté avec des charges métalliques (et plus généralement au comportement ductile). Ce dernier mode de défaillance n'ayant pas non plus été constaté durant ce travail de thèse, il ne sera donc pas abordé dans ce manuscrit.
- ***Les ruptures adhésives*** peuvent être vues comme le décollement de la matrice polymère du joint de colle à son interface avec le substrat. Deux approches différentes ont été explorées dans la littérature : (i) ***une approche de type Griffith*** où l'énergie de la décharge élastique du joint égale celle de création de surface libre lors de la propagation de la fissure entre le substrat et le joint (plus éventuellement des termes dissipatifs) ; (ii) ***une approche du contact adhésif de type JKR*** entre deux surfaces rugueuses se basant sur l'énergie d'adhésion de Dupré $W = \Gamma_1 + \Gamma_2 - \Gamma_{12}$ (avec Γ_1 et Γ_2 les tensions de surface du joint et du substrat et Γ_{12} l'énergie de l'interface joint-substrat). Ces approches sont radicalement différentes car la première considère une propagation de fissure irréversible alors que la seconde considère l'adhésion et le décollement de manière réversible. Les ruptures obtenues dans ce travail de thèse étant toutes irréversibles, cette partie présentera uniquement l'approche de type mécanique de la rupture (Griffith). Le lecteur peut se référer aux articles [85], [86], [87] et [88] pour plus d'informations sur l'approche du contact adhésif.

Enfin, il est souvent affirmé dans la littérature [89] [90] que les mécanismes de rupture des polymères ne diffèrent pas significativement pour des sollicitations monotones ou cycliques. Ce constat sera pris pour acquis dans cette thèse, qui ne s'intéresse du reste pas aux ruptures sous chargement monotone, mais à celles sous chargement cyclique.

5.1.1 Décohésion matrice-particule

La décohésion entre une matrice élastique et une particule sphérique rigide a été abordée par Gent [91] selon une approche similaire à celle de Griffith pour la mécanique linéaire de la rupture. Il considère une inclusion sphérique inclue dans une matrice soumise à une traction unixiale σ. L'interface inclusion-matrice présente un détachement au niveau d'un de ses pôles défini par l'angle θ illustré Figure 91. En égalisant l'énergie de création de surface avec la décharge élastique du volume illustré en pointillé Figure 91, Gent obtient que la décohésion se poursuit si

$$\sigma^2 \geq \sigma_{seuil}^2 = \frac{4\pi\Gamma E}{3r \sin 2\theta}$$

avec E le module d'Young de la matrice, Γ l'énergie de création de surface par unité de surface, r le rayon de l'inclusion.

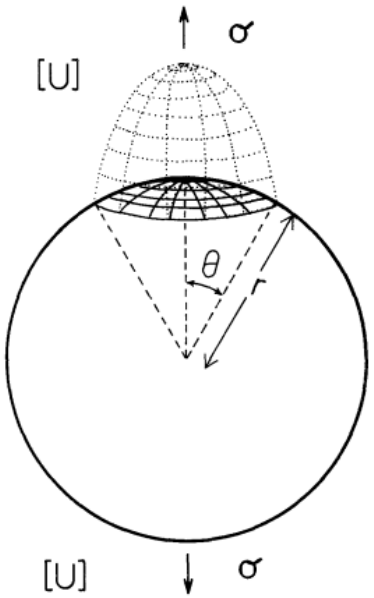


Figure 91 : Schéma d'une inclusion présentant un détachement à son pôle [91]. Le volume illustré en pointillé est considéré relaxé des contrainte initiallement présentes avant le détachement

Ce résultat implique les remarques suivantes :

- Si $\theta < 45°$, alors la décohésion se poursuit de manière instable jusqu'à $90° - \theta$, puis de manière stable au fur et à mesure que σ augmente. La contrainte minimale de décohésion vaut $4\pi\Gamma E/3r$ pour $\theta = 45°$ avec une propagation stable de la décohésion ensuite.
- La contrainte limite σ_{seuil} est apparemment une fonction croissante de la rigidité de la matrice E. Cette hypothèse a été testée pour un même matériau dont les auteurs ont fait varier la rigidité avec le degré de réticulation [92] : σ_{seuil} est au contraire une fonction décroissante de E. Ceci est expliqué par une énergie de création de surface Γ qui dépend fortement de la viscosité dans le cas d'une matrice polymère. Or, la viscosité chute au fur et à mesure que le degré de réticulation (donc la rigidité) augmente. Au final, ce serait donc le produit $\Gamma \times E$ qui décroîtrait quand E augmente.

- La contrainte limite σ_{seuil} est proportionnelle à l'inverse de la racine de la dimension de l'inclusion $1/\sqrt{r}$. Cette relation a été vérifiée par Gent [92], et mène à un angle θ relativement constant pour tous les diamètres de sphère testés. Cet angle correspondrait donc, d'après Gent, davantage à une caractéristique générale du phénomène de décohésion pour les matériaux étudiés qu'à une réelle mesure géométrique du défaut initial.

La dépendance en $1/\sqrt{r}$ montre que la décohésion apparaîtra en premier au niveau des particules les plus grosses. Au niveau d'une particule ellipsoïdale aplatie (oblate) de demi-axes $(a, a, c < a)$, la décohésion apparaîtra sans doute préférentiellement au niveau des rayons de courbures les plus élevés (donc des courbures les plus faibles) qui se trouvent aux pôles aplatis de l'ellipsoïde. A cet endroit, les deux rayons de courbure sont identiques et valent a^2/c. Il peut donc être raisonnablement supposé que pour c/a pas trop loin de 1, la contrainte limite de décohésion évolue en

$$\sigma_{seuil} \sim \sqrt{\frac{c}{a^2}} = \frac{1}{\sqrt{a}}\sqrt{\frac{c}{a}}$$

Vis-à-vis d'une sphère de rayon a, la contrainte seuil pour la décohésion est multipliée par un coefficient $\sqrt{c/a} < 1$. La forme lamellaire des charges argent dans les joints adhésifs de l'étude aurait tendance à favoriser la décohésion au niveau des pôles aplatis par rapport à des charges sphériques.

5.1.2 Cavitation

La cavitation a été mise en évidence dans des essais de traction de cylindres en caoutchouc par Gent et Lindley en 1959 [93] : une inflexion sur la courbe force-déplacement apparaît lorsque des cavités grandissent subitement dans les cylindres. Gent et Lindley expliquent ce phénomène en le modélisant par une instabilité élastique lorsque des contraintes hydrostatiques suffisamment élevées sont atteintes : pour un matériau Néo-Hookéen de module de cisaillement $G = 2C_{10}$ contenant une cavité sphérique infiniment petite soumis à une contrainte hydrostatique σ_h, la cavitation apparaît quand

$$\sigma_h \geq \sigma_{seuil} = \frac{5G}{2}$$

Ball [94] généralisa ce résultat pour tout matériau hyperélastique d'énergie de déformation $W(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3)$ avec une valeur de la contrainte hydrostatique seuil qui a pour expression

$$\sigma_{seuil} = \lim_{\epsilon \to 1^+} \int_{\lambda=\epsilon}^{\infty} \frac{W\left(\lambda, \lambda, \frac{1}{\lambda^2}\right)}{\lambda^3 - 1} \mathrm{d}\lambda$$

La borne supérieure infinie de l'intégrale de l'expression ci-dessus implique que le matériau est considéré élastique jusqu'à une élongation infinie [95]. Cette hypothèse ne peut être qu'une approximation car un matériau hyperélastique présente forcément une élongation limite au-dessus de laquelle la rupture apparaît (par scission de chaines pour un polymère par exemple). D'autre part, σ_{seuil} n'existe que si l'intégrale converge pour $\lambda \to \infty$. Toutes les expressions analytiques de l'énergie W ne

donnent donc pas nécessairement lieu à de la cavitation : une matrice de type Mooney-Rivlin (avec $C_{01} > 0$) ne cavitera par exemple jamais.

Dans le cas d'un chargement quelconque de contraintes principales $(\sigma_1, \sigma_2, \sigma_3)$, Hou et Abeyarathne [96] utilisent une approche variationnelle pour formuler le critère suivant pour un matériau Néo-Hookéen de module $G = 2C_{10}$:

$$\sigma^{HA} \geq \frac{5G}{2} \quad \text{avec} \quad (\sigma^{HA})^3 = \begin{cases} 0 & \text{si} \quad 4\sigma_i - \sigma_j - \sigma_k \leq 0 \\ \frac{1}{8}\prod_{ijk}\left(4\sigma_i - \sigma_j - \sigma_k\right) & \text{sinon} \end{cases}$$

Ce critère appelle plusieurs remarques :

- Les trois relations $4\sigma_i - \sigma_j - \sigma_k \leq 0$ limitent l'amplitude du déviateur des contraintes. L'état de triaxialité doit donc être « assez élevé » pour donner lieu à la cavitation. En particulier, une traction uniaxiale ne fera jamais caviter le matériau, même pour une contrainte supérieure à $3 \times (5G/2)$.
- Pour une sollicitation purement hydrostatique $\sigma_i = \sigma_h$, le critère donne $\sigma^{HA} = \sigma_h$.

Enfin, Lopez-Pamies [97] trouve, en 2011, par un raisonnement d'homogénéisation de milieux stratifiés, le critère suivant pour un matériau Néo-Hookéen comprenant des défauts (cavités) initiaux de répartition et d'orientation aléatoires soumis à un chargement quelconque :

$$(\sigma^{LP})^3 = 8\sigma_1\sigma_2\sigma_3 - 12G(\sigma_1\sigma_2 + \sigma_1\sigma_3 + \sigma_2\sigma_3) + 18G^2 \mathrm{tr}\,\sigma - 35G^3 \geq 0 \quad \text{avec} \quad \sigma_i \geq 3G/2$$

Similairement, les constats suivants peuvent être tirés :

- Les relations $\sigma_i \geq 3G/2$ imposent une triaxialité élevée pour amorcer la cavitation.
- Pour une sollicitation purement hydrostatique $\sigma_i = \sigma_h$, $\sigma^{LP} \geq 0 \Leftrightarrow \sigma_h = 5G/2$.

Certains auteurs ont pu introduire des éléments supplémentaires de modélisation du comportement par rapport à la seule hyperélasticité du matériau. Par exemple, Williams et Schapery [98] prennent en compte la création de surface libre quand la cavité grandit avec l'introduction d'un terme d'énergie de surface Γ. Les résultats dépendent de la taille initiale du défaut (la cavité sphérique) par rapport au ratio de l'énergie de surface sur le module d'Young du polymère Γ/E (avec $E = 2C_{10}/3$) : la contrainte hydrostatique seuil tend vers $5G/2$ quand le défaut initial est très petit devant Γ/E, et vers 0 quand le défaut est très grand (devant Γ/E). Ce résultat n'est pas très intuitif car il suppose qu'une cavité macroscopique peut grandir de manière catastrophique pour une contrainte hydrostatique de plus en plus faible. Pour éviter cet effet contre-intuitif, Gent et Tompkins [99] modélisent l'influence de l'interface cavité/matériau par un terme de pression de Laplace $2\Gamma/r$ (avec r le rayon de la cavité) à surmonter pour faire caviter le matériau. Pour un défaut initial petit par rapport à Γ/E, la contrainte hydrostatique à appliquer pour amorcer la cavitation peut largement dépasser $5G/2$. Mais une fois la croissance du défaut suffisant, la contrainte seuil pour continuer la cavitation revient à $5G/2$, comme prévu par [93] et [94]. Plus récemment, les travaux de Poulain [100] montrent que le phénomène de cavitation est surtout dirigé par les propriétés à rupture du matériau hyperélastique.

5.1.3 Couplage des deux phénomènes dans un polymère chargé

Pour un élastomère chargé avec une seule particule et soumis à un chargement uniaxial σ, les contraintes hydrostatiques les plus élevées dans la matrice apparaissent au voisinage des pôles de la particule où $\sigma_h = 2\sigma$ [101], comme illustré sur le graphe de la Figure 92.

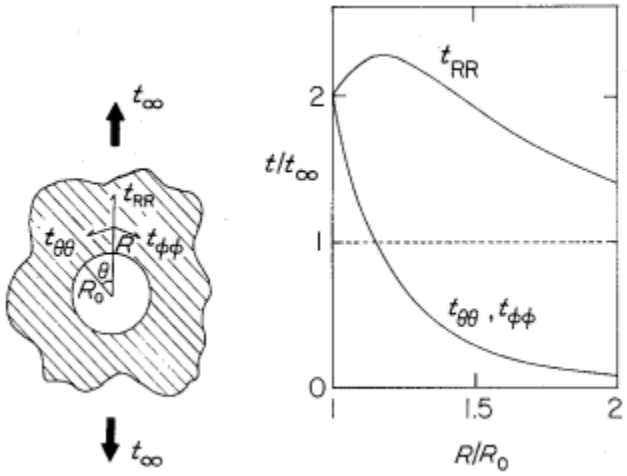


Figure 92 : Contraintes au voisinage d'une inclusion rigide de rayon R_0 en fonction de la distance R au centre de la particule dans la direction du chargement appliqué [101]

Une cavitation au voisinage d'un des pôles d'une particule de rayon r apparaît d'après [92] quand

$$\sigma = \frac{1}{2}\left(\frac{5G}{2}\right) + \frac{A}{\sqrt{r}} \quad \text{avec} \quad A \sim 35\ \text{kPa}\sqrt{\text{m}}$$

Cette expression correspond à la somme de la valeur habituelle $5G/2$ prédite par les modèles d'instabilité élastique et d'une contribution en $1/\sqrt{r}$ de type Griffith. Cette contribution est à rapprocher du fait qu'une cavitation au voisinage d'une particule débouche régulièrement sur la décohésion au niveau de la zone de cavitation. La cavité créée semble jouer le rôle de défaut initial pour la décohésion. Ceci implique que la cavitation conduit régulièrement à la décohésion dans le cas de matériaux polymères fortement chargés, puisqu'à forte fraction volumique il y aura statistiquement toujours une particule proche de n'importe quel site d'amorce de cavitation. Une autre piste d'explication de la contribution en $1/\sqrt{r}$ provient de la taille de charge : la taille de la zone à triaxialité élevée proche du pôle de la particule est proportionnelle au rayon de la particule. Une particule plus petite engendrera une zone à triaxialité élevée plus petite, ce qui fait diminuer la probabilité de présence d'un défaut initiateur de la cavitation dans cette zone. La contrainte à appliquer pour déclencher la cavitation augmente donc pour compenser cette baisse de probabilité. La forme de la contribution en $1/\sqrt{r}$ n'est en revanche pas spécialement justifiée, puisque le volume de la zone triaxiale évolue en r^3. Il faut également noter que Gent a identifié cette contribution avec des billes de verres avec un diamètre en général supérieur ou égal à $200\ \mu\text{m}$. L'évolution constatée n'est peut-être plus valable pour des particules d'une dizaine de microns telles que celles des joints de cette thèse.

Le phénomène inverse (la décohésion conduisant à la cavitation) a été montré par Le Cam [102] dans le cadre de la propagation d'une fissure dans un caoutchouc chargé de noirs de carbone : une zone de décollement matrice-particule se créant sous la contrainte appliquée va pouvoir s'ouvrir grâce aux grandes déformations que peut subir la matrice, et ainsi jouer le rôle de défaut initial pour la cavitation.

Les deux phénomènes de cavitation et décohésion sont donc assez fortement couplés dans les élastomères chargés puisqu'intervenant quasiment dans les mêmes zones de voisinage de pôles des particules.

Enfin, dans le cas de fractions volumiques élevées, deux particules proches peuvent interagir et donner lieu à des contraintes hydrostatiques σ_h encore supérieures à 2σ si les deux particules sont alignées dans l'axe de la traction σ [92]. Ceci peut donc donner lieu à de la cavitation entre les deux particules pour une contrainte de traction inférieure à $5G/4$, comme illustré Figure 93.

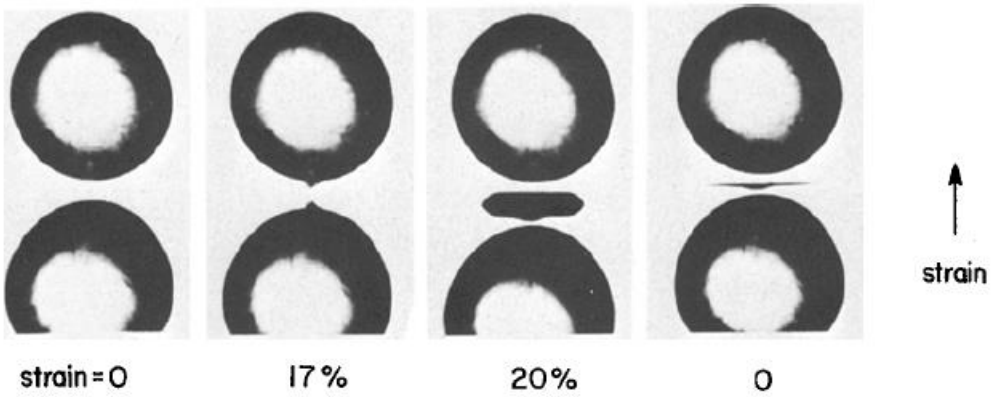


Figure 93 : cavitation entre deux particules alignées dans la direction de traction [92]

Il est à noter que la cavité crée, une fois déchargée (sur l'image de droite de la Figure 93), ressemble plus à une fissure macroscopique refermée qu'à une cavité revenue à sa taille de départ microscopique. Ce constat est un argument en défaveur de la modélisation de la cavitation par une instabilité élastique pure, puisque de la surface libre semble bien avoir été créée dans l'éprouvette après déchargement.

5.1.4 Décohésion matrice-substrat

La propagation d'une fissure entre deux demi-espaces élastiques infinis a été traitée par Mossakovskii et Rybka [103] en 1964 avec une approche de mécanique linéaire de la rupture de type Griffith. Ils considèrent pour cela une fissure circulaire de rayon a à l'interface entre le milieu 1 (E_1, ν_1) et le milieu 2 (E_2, ν_2) avec une contrainte uniaxiale σ appliquée perpendiculairement à l'interface, comme illustré sur la Figure 94. L'énergie nécessaire à la création d'une unité de surface libre par décollement des milieux 1 et 2 est notée Γ.

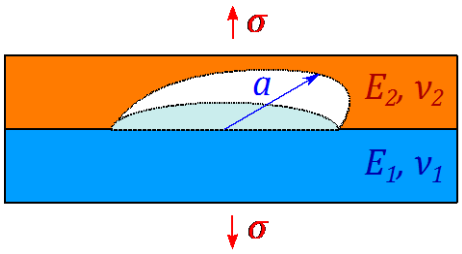


Figure 94 : Schéma en coupe de la géométrie étudiée dans [103] avec une décohésion de forme sphérique de rayon a à l'interface de deux milieux hétérogènes 1 et 2

Dans le cas de milieux élastiques quelconques, la contrainte critique pour propager la fissure de manière instable a pour expression générale

$$\sigma_{seuil}^2 = \frac{2\Gamma E_1 E_2 [E_1(1+\nu_2)(1-2\nu_2) - E_2(1+\nu_1)(1-2\nu_1)]}{[\xi_2 E_1^2 + \xi_1 E_2^2 + 2\xi_{12} E_1 E_2 (1+\nu_1)(1+\nu_2)](\Theta^2+1)\Theta a}$$

$$\text{avec} \quad \begin{cases} \xi_i = (1+\nu_i)^2(3-4\nu_i) \\ \xi_{12} = (1-2\nu_1)(1-2\nu_2) + 4(1-\nu_1)(1-\nu_2) \\ \Theta = \dfrac{1}{2\pi}\ln\left(\dfrac{E_1(1+\nu_2)(3-4\nu_2) + E_2(1+\nu_1)}{E_1(1+\nu_2) + E_2(1+\nu_1)(3-4\nu_1)}\right) \end{cases}$$

Deux cas particuliers peuvent être signalés pour cette contrainte seuil :

- Pour un matériau homogène ($E_1 = E_2 = E, \nu_1 = \nu_2 = \nu$), l'expression devient

$$\sigma_{seuil}^2 = \frac{\pi\Gamma E}{2a(1-\nu^2)} \left(\sim \frac{\pi\Gamma E}{2a}\right)$$

  Cette expression correspond à la contrainte limite de Griffith en considérant le module d'Young « corrigé » des déformations planes $E/1-\nu^2$.

- Pour un matériau 1 beaucoup plus rigide ($E_2/E_1 \longrightarrow 0$, ou encore $E_1 = \infty$ et $E_2 = E$),

$$\sigma_{seuil}^2 = \frac{2\pi\Gamma E}{a(1+\nu_2)(3-4\nu_2)\left(1+\dfrac{\ln(3-4\nu_2)}{4\pi^2}\right)\ln(3-4\nu_2)} \sim \frac{2\pi\Gamma E}{3a}$$

  L'expression est similaire à la fissure de Griffith dans un matériau homogène mais avec un préfacteur numérique légèrement plus élevé ($2/3$ au lieu de $1/2$).

Cette approche ne prend pas en compte l'éventuelle rugosité du substrat, qui peut éventuellement retarder la propagation de la fissure en augmentant la surface effective libre créée pour une même augmentation $\mathrm{d}a$ du rayon macroscopique de la fissure. L'énergie à apporter pour créer cette surface libre effective augmente forcément la contrainte seuil de propagation.

D'autre part, la rugosité implique un changement local d'orientation de la fissure en fonction des pics et vallées rencontrés. Lors du cisaillement du joint adhésif, ce changement d'orientation aura tendance à ouvrir ou au contraire à refermer la fissure comme illustré Figure 95, accélérant ou retardant sa

propagation. Enfin, le cisaillement du joint implique une propagation de fissure en mode II et non en mode I d'ouverture : le frottement de la matrice décollée sur le substrat peut également ralentir la propagation.

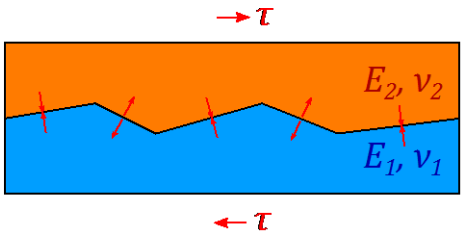


Figure 95 : Zones d'ouverture et fermeture de la fissure interfaciale pour un cisaillement du joint adhésif

Néanmoins, si la décohésion matrice-particule est le mode de défaillance cohésive prédominant, il est clair que l'obtention de ruptures cohésives ou adhésives de l'assemblage collé dépend principalement de la différence entre les énergies de surface Γ matrice-particule et matrice-substrat.

5.2 Identification des mécanismes

Les ruptures en fatigue des joints adhésifs ont été observées au microscope à balayage électronique (MEB). Les éprouvettes sont de section carrée de $5\ \mathrm{mm}$ de côté.Leur fabrication est détaillée dans la partie 2.2.1 du manuscrit. Les deux points suivants sont rappelés pour la bonne compréhension de la suite :

- Le joint polyimide présente des cavités régulièrement réparties à mi-épaisseur du joint. Ces cavités diminuent la surface effective du collage dans le sens où la surface disponible à mi-épaisseur pour transmettre la contrainte d'un substrat à l'autre correspond à la surface des substrats diminuée de la surface projetée dans le plan horizontal des cavités. Ce point favorise donc grandement la rupture cohésive à cœur du joint vis-à-vis de la rupture adhésive.
- La fabrication des joints inclut une étape de polissage des substrats afin de s'approcher des faibles rugosités des terminaisons des cartes électroniques (cf 2.2.1). Quelques essais ont néanmoins été effectués avec des substrats non-polis afin de constater l'influence éventuelle de la rugosité du substrat sur le mode de rupture du joint adhésif.

Le Tableau 14 résume le type de rupture obtenu en fonction de l'assemblage collé utilisé pour des joints à l'état neuf. Il est intéressant de noter que dans le cas des assemblages vieillis (qui ont tous été réalisés avec des substrats polis), le mode de rupture constaté est identique à celui des assemblages neufs, quel que soit le vieillissement (confiné sous argon ou à l'air libre) effectué.

Joint / Substrat	Silicone	Polyimide
Poli ($R_a \sim 0{,}5$ µm)	Adhésive	Cohésive
Non-poli ($R_a \sim 5$ µm)	Cohésive	Cohésive

Tableau 14 : Mode de rupture en fatigue obtenu en fonction du joint adhésif et du substrat utilisé

Les ruptures sont en permanence cohésives pour le joint polyimide. Les faciès de rupture obtenus (étudiés en détail au paragraphe 5.2.1 suivant) montrent clairement que la fissure s'est propagée entre les cavités initialement présentes, à l'endroit où la contrainte dans le joint est donc la plus élevée. Les ruptures obtenues constituent donc des informations sur le joint lui-même et non sur l'assemblage collé. Il a été vu que la taille et la répartition des cavités dépendaient des étapes pendant le processus de collage, en particulier des étapes de mise sous vide après dépose. Les ruptures caractérisent donc in fine le joint polyimide polymérisé suivant le processus utilisé pour l'assemblage : un autre processus avec d'autres étapes ou un ordre d'étapes différent pourrait conduire éventuellement à d'autre(s) mécanisme(s) de rupture.

Le joint silicone présente des ruptures cohésives ou adhésives selon la rugosité du substrat, comme le montre la Figure 96 :

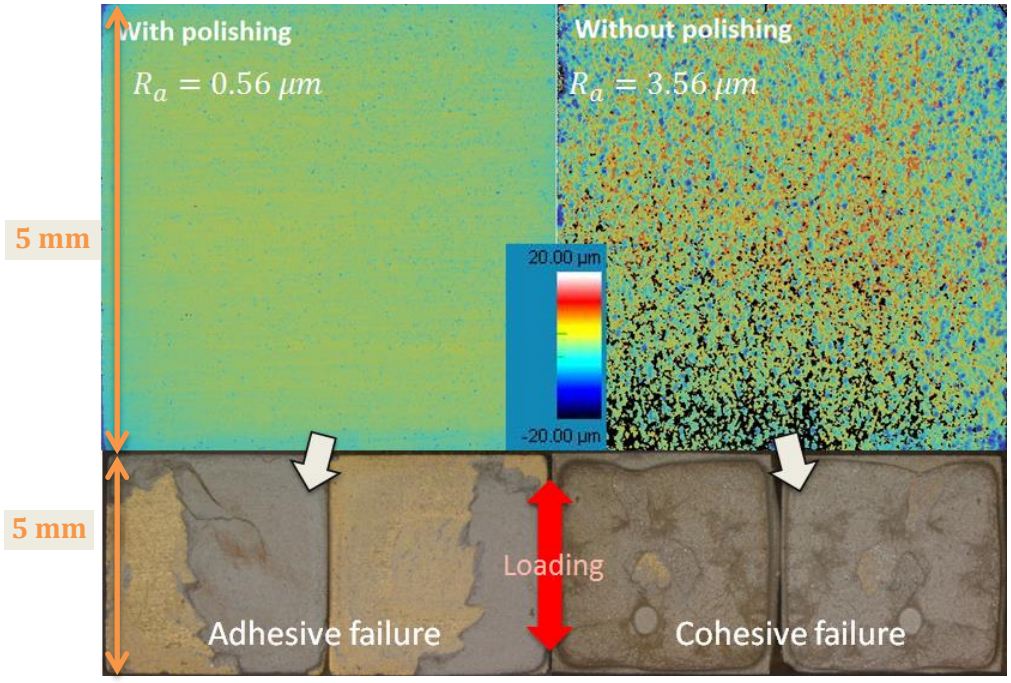


Figure 96 : Rupture adhésive ou cohésive selon la rugosité du substrat. La flèche rouge représente le sens du déplacement (vertical) des substrats pour engendrer la sollicitation de cisaillement dans le joint.

Cette caractéristique illustre l'importance de la surface effective de l'interface joint/substrat augmentée par la rugosité, déjà discutée au paragraphe 5.1.4 précédent. La forte limitation du collage sur de l'or, un des éléments chimiques les moins enclins à former des liaisons avec tout autre espèce chimique (tel qu'un polymère par exemple) du fait de sa grande stabilité, est ici mise en valeur. Cette tendance à

rester « inerte » vis-à-vis du polymère et donc à former le moins de liaisons chimiques possibles diminue sensiblement l'énergie de surface Γ nécessaire pour décoller la matrice du substrat. Si le substrat n'est pas assez rugueux pour augmenter la surface effective à décoller, le mode de rupture le plus favorisé est la rupture adhésive. Le paragraphe 2.2.1 rappelle l'utilité du dépôt d'or dans le cadre du brasage, mais il apparaît ici que cet élément affaiblit le collage, puisqu'il entraine la ruine de l'assemblage collé avant celle de chacun des matériaux considérés séparément. Les surfaces naturellement planes des terminaisons des cartes électroniques obtenues par le procédé de lithographie sont un autre élément affaiblissant du collage. Augmenter la rugosité de ces « pads » métalliques par un traitement quelconque (rayurage, sablage…) avant d'appliquer l'éventuelle étape de finition (plaquage) puis le collage permettrait d'augmenter la fiabilité du collage en retardant la rupture adhésive, si possible après la ruine cohésive du joint lui-même. Une réflexion sur les traitements de surface (état de rugosité et métaux utilisés pour les finitions) pourrait amener de rapides progrès pour le collage vis-à-vis du brasage.

Les deux paragraphes suivants s'appuient sur des observations par microscopie électronique pour investiguer et identifier les mécanismes de rupture des faciès de rupture

- cohésive et adhésive du joint silicone ;
- cohésive du joint polyimide.

5.2.1 Ruptures cohésives

Une observation au profilomètre du faciès de rupture cohésif d'un joint silicone est affichée Figure 97. Deux zones particulières peuvent être soulignées :

- Au milieu du joint se trouve une zone adhésive où le substrat est à nu (couleur bleu foncé). La zone rouge clair limitrophe est en fait une zone adhésive où le joint est entier (le substrat en regard est à nu). Cette zone est identifiée comme « Adhesive zone » sur la figure.
- En-dessous de cette zone adhésive se trouve une zone circulaire bleue, correspondant à une cavité présente lors de la polymérisation du joint (déjà présente lors de l'observation aux rayons X à la sortie de l'étuve). En effet, quelques joints silicone peuvent présenter une cavité isolée après la cuisson, provenant vraisemblablement d'air emprisonné lors de l'approche des deux substrats avant la polymérisation. Une étape de mise sous vide intermédiaire après l'approche des substrats pour éliminer ce type de bulle isolée a été testée mais ne s'est pas montrée concluante. L'observation prouve que la fissure a profité de la présence de cette cavité lors de sa propagation.

En dehors de deux zones particulières identifiées ci-dessus, plusieurs changements de couleur sont observés à divers endroits, montrant un brusque changement de plan de propagation de la fissure. Une observation comparative entre une zone de propagation dans un plan défini et une de ces zones de changement de plan donnent des pistes d'explication de la différence de comportement de la fissure.

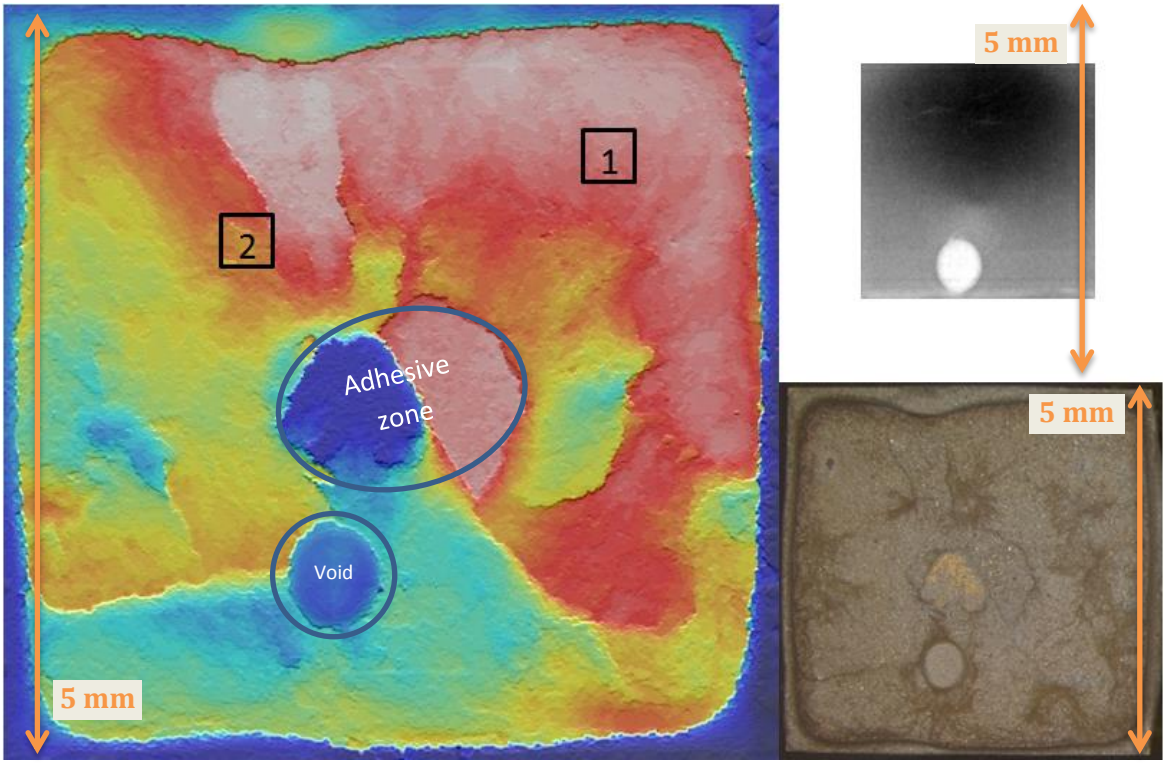
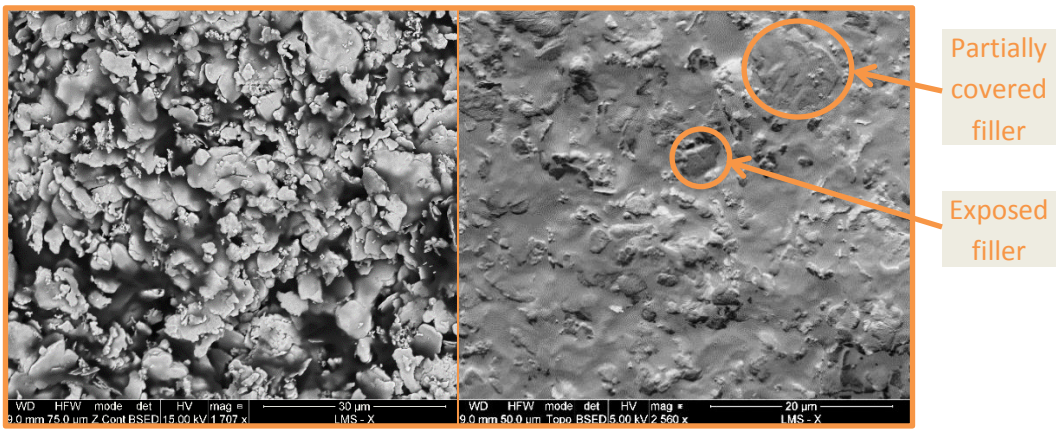


Figure 97 : Observation au profilomètre du faciès de rupture cohésif du joint silicone (le cliché optique est rappelé en bas à droite, le cliché rayons X en haut à droite). Une zone locale au milieu est identifiée comme adhésive, une autre en-dessous provient d'une cavité initialement présente dans le joint

Dans cette optique, les observations MEB des zones nommées 1 et 2 dans la Figure 97 correspondant aux deux types de zones évoquées (changement de plan de propagation de la fissure ou propagation plane) sont comparées. Ces observations ont été menées avec un détecteur d'électrons rétrodiffusés (donnant une information sur les densités des matériaux observés) possédant deux cadrans de détection autour du faisceau. Les images suivantes ont été faites avec deux modes différents :

- Le mode « Z-contrast » correspondant à la somme des signaux des deux cadrans, afin de récupérer la totalité de l'information sur la densité des matériaux en surface. Ce mode a été associé avec une assez forte tension d'accélération de 15 kV pour obtenir des informations sur les charges argent.
- Le mode « topography » correspondant à la différence des deux signaux, afin de récupérer une information sur la topographie de la surface observée. Ce mode a été utilisé avec une tension d'accélération faible de 5 kV pour faire interagir la matrice avec le faisceau d'électrons (qui la traverserait sans interagir en cas de tension trop élevée) et récupérer la topographie de la surface avec le recouvrement éventuel des charges par la matrice.

La Figure 98 présente l'observation MEB de la zone 1 de la Figure 97 correspondant à une propagation plane de la fissure dans le joint silicone, avec chacun des deux modes décrits ci-dessus :

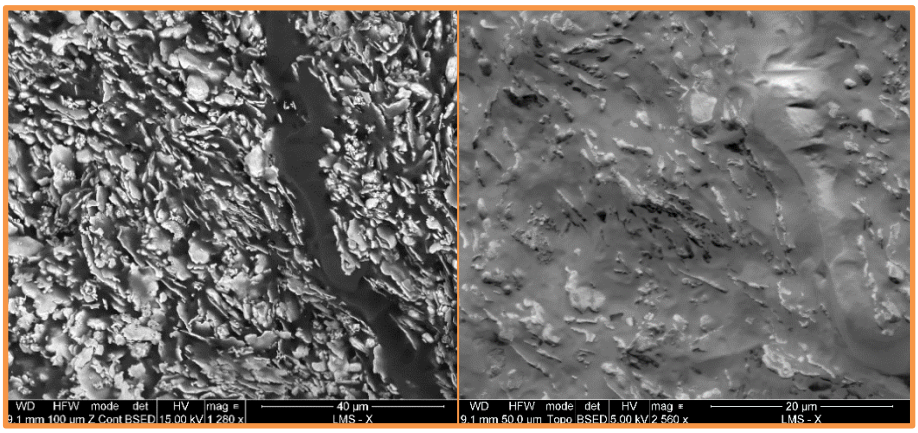


(a) (b)

Figure 98 : Observation MEB de la zone 1 correspondant à une propagation plane de la fissure du joint silicone, avec le mode « Z-contrast » (a) et le mode « topography » (b)

La Figure 98 (a) montre une orientation majoritairement horizontale des particules les plus grosses avec des lamelles plus fines disséminées entre les particules les plus grosses pour augmenter la fraction volumique et la conductivité électrique. Ces observations sont en accord avec le paragraphe 1.2.4. La partie (b) de la figure montre des charges argent mises à nu par le passage de la fissure. Ceci témoigne de la décohésion aux interfaces matrice-particules. Néanmoins, pour de nombreuses particules, la décohésion n'est que partielle puisqu'elles restent en partie recouvertes de matrice. Etant donné la forte fraction volumique de charge, il est difficile de distinguer clairement des éventuels sites d'amorce de cavitation : les particules sont tellement rapprochées qu'une amorce de cavitation se situe statistiquement toujours au voisinage d'une particule, ce qui peut déclencher sa décohésion comme l'explique Gent [92]. Néanmoins, il est clair qu'un travail sur le traitement des charges pour renforcer leurs liaisons avec la matrice polymère retarderait la propagation de la fissure et améliorerait donc la résistance en fatigue du joint silicone.

La Figure 99 présente l'observation MEB de la zone 2 (affichée sur la Figure 97) correspondant à un changement de plan de propagation plane de la fissure :



(a) (b)

Figure 99 : Observation MEB de la zone 2 correspondant à un changement du plan de propagation de la fissure du joint silicone, avec le mode « Z-contrast » (a) et le mode « topography » (b)

La Figure 99 (a) montre des particules localement à la verticale autour d'une zone ressemblant à un canal et sera désignée comme telle dans la suite. En s'éloignant de ce canal, les particules redeviennent rapidement horizontales (en bas à gauche de l'image par exemple), comme dans la zone d'observation 1 présentée en Figure 98. La partie (b) de la figure permet de confirmer que ce canal n'est pas une cavité, mais au contraire est rempli de matrice. Il s'agit donc d'une zone localement pauvre en charges après la polymérisation du joint. La question de l'apparition de ces canaux de matrice et de cette orientation particulière des lamelles d'argent peut légitimement être posée : ces éléments sont-ils présents dès la polymérisation ou bien apparus durant la sollicitation en fatigue du joint ? Il semble que ces canaux sont présents dès la sortie de l'étuve comme en témoigne la vue aux rayons X de la Figure 97 qui permet - difficilement - de distinguer certains filaments clairs justement au voisinage de la zone 2. Enfin, la partie (b) de la Figure 99 montre très clairement les extrémités des lamelles argent verticales affleurer la surface, preuve de la décohésion. Il est intéressant de noter que les extrémités des lamelles correspondent aux courbures géométriques les plus élevées. Moins de décohésion au niveau de ces particules devrait être constatée par comparaison avec les particules horizontales, d'après le modèle de Gent du paragraphe 5.1.1 de la bibliographie sur la décohésion. Cette contradiction peut avoir au moins deux raisons différentes :

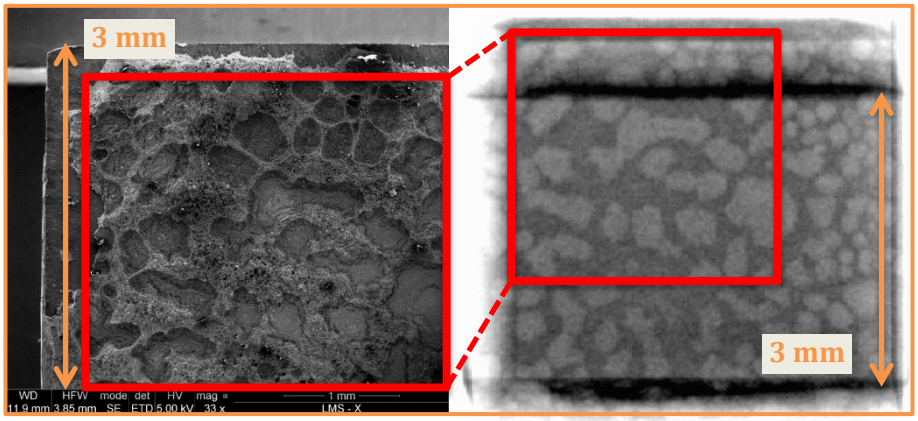
- Ce modèle atteint ses limites pour des formes de particules aussi complexes que les lamelles d'argent des joints adhésifs étudiés.
- La forte concentration volumique forcerait la fissure à effectuer de nombreux détours pour se propager en moyenne horizontalement avec des particules verticales. Ce surcoût en énergie de surface devient énergétiquement défavorable et la fissure passe finalement d'extrémité en extrémité de particule pour minimiser le chemin parcouru.

Néanmoins, il apparaît que ces zones particulières avec des particules verticales autour d'un canal de matrice sont une configuration géométrique privilégiée pour que la fissure puisse changer de plan de propagation.

Des ruptures cohésives ont également été obtenues après les tests de fatigue du joint polyimide, neuf comme vieilli. Les observations montrent clairement une propagation entre les cavités présentes après polymérisation à cause de l'évaporation du solvant. La Figure 100 illustre ce phénomène avec la comparaison du faciès de rupture (observé au MEB avec le détecteur d'électrons secondaires, sensibles au relief de la surface) à gauche et du cliché rayons X des cavités du joint après sa sorties de l'étuve. Les positions des cratères présents dans la surface de rupture correspondent parfaitement à celles des cavités présentes dans le joint avant l'essai de fatigue. Sans surprise, les cavités jouent donc un rôle décisif dans la tenue mécanique du joint. Enfin, il paraît logique que la dispersion des résultats de fatigue sera forte, puisque la répartition des cavités varie selon les assemblages collés.

Il a été constaté, par simples tests « à la main », la meilleure tenue du joint polyimide quand l'étape de mise sous vide après la dépose de la pâte à joint est ajoutée au processus (cf. Figure 35 pour l'influence de cette étape supplémentaire sur la disposition et la taille des cavités). Il est ici confirmé qu'éliminer ces cavités (ou les limiter sérieusement) résulterait en une amélioration colossale de la tenue en fatigue du joint. Une piste d'amélioration peut se déduire de la constatation de la forme des cavités sur les

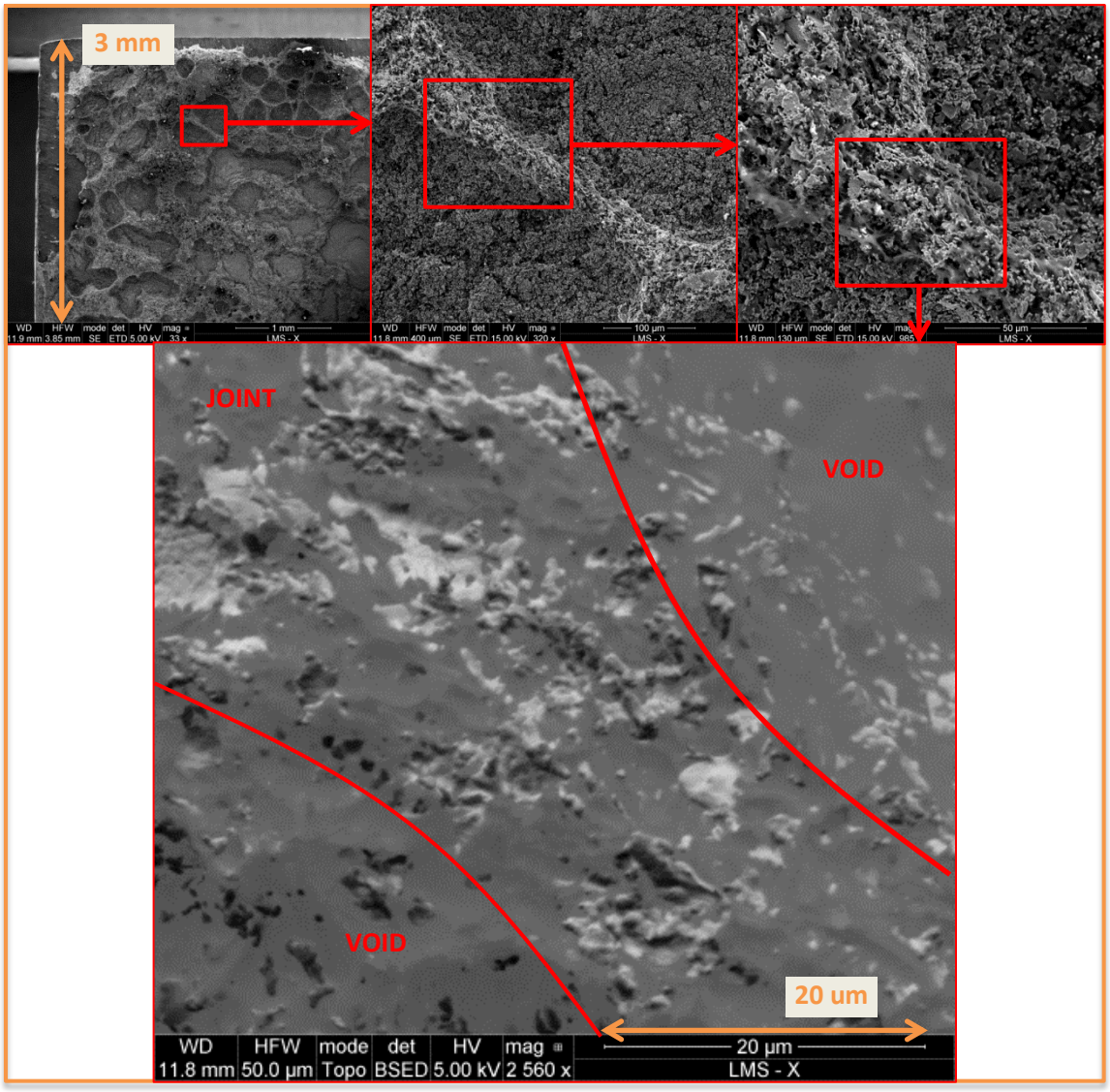
échantillons annulaires de torsion (non-utilisés pour les essais de fatigue) : la Figure 41 de la partie 2.2.2 montre bien que les bulles se forment préférentiellement loin des surfaces d'échange avec l'air ambiant. Travailler sur un schéma de dépose résultant en des cordons de dépose fins et dont les côtés restent en contact permanent avec l'extérieur pendant la cuisson devrait sensiblement augmenter la surface collée en dépit de ces espaces supplémentaires vides laissés entre les cordons. Ceci nécessite en revanche des propriétés d'écoulement de la pâte à coller optimales afin de former un cordon d'une épaisseur constante durant la dépose et qui ne dévie pas (ou peu) du schéma de départ.



(a) (b)

Figure 100 : Faciès de rupture d'un joint polyimide (a) et observation après polymérisation aux rayons X (b) : les creux du faciès de rupture correspondent exactement aux cavités post-polymérisation du joint

Comme annoncé plus haut, les mécanismes de rupture dans les zones de matière séparant deux cavités de ce joint polyimide ont aussi été étudiés. Pour cela, un zoom sur un des « ponts » entre deux cavités est effectué pour observer la surface avec le mode « topography » du détecteur d'électrons rétrodiffusés. La Figure 101 (a) décompose le zoom effectué pour atteindre un pont de matière entre deux cavités, et la partie (b) montre l'observation de la surface de rupture en mode « topography » du détecteur d'électron rétrodiffusés. Il est constaté sur le pont de matière la présence de particules affleurant la surface, en particulier les particules horizontales. La proportion de surface recouverte de matrice semble toutefois un peu plus élevée que pour le joint silicone, bien que la différence ne soit pas flagrante. Un mix de cavitation et décohésion pourrait expliquer ce faciès de rupture.



(a)

(b)

Figure 101 : (a) chemin de zoom suivi pour observer un "pont" de matière entre deux cavités du joint polyimide ; (b) observation MEB en mode "topography" de la rupture du joint

5.2.2 Ruptures adhésives

Dans le cas des joints silicone, abaisser la rugosité en dessous d'un certain seuil (typiquement en-dessous de $R_a \sim 1$ µm d'après les observations profilométriques) provoque l'apparition de ruptures adhésives au lieu de rupture cohésives. Ces ruptures apportent cette fois-ci une information sur la tenue de l'assemblage collé global et non uniquement sur le joint adhésif. Changer un ou plusieurs paramètres (géométriques ou matériaux) dans l'assemblage peut faire changer la tenue en fatigue ou même le mode de rupture. La Figure 102 montre des observations MEB du faciès de rupture adhésive déjà présenté en Figure 96. Le MEB a été paramétré avec des réglages particuliers pour cette occasion : le détecteur d'électrons secondaires a été utilisé en polarisation négative pour repousser les électrons secondaires et ne capter que les électrons rétrodiffusés (de plus haute énergie). Ainsi, la brillance moyenne d'une zone donne la densité du matériau et la position excentrée du détecteur permet d'obtenir une information

sur le relief avec des variations locales de brillance. Les deux substrats ont été observés pour obtenir le plus d'informations possible.

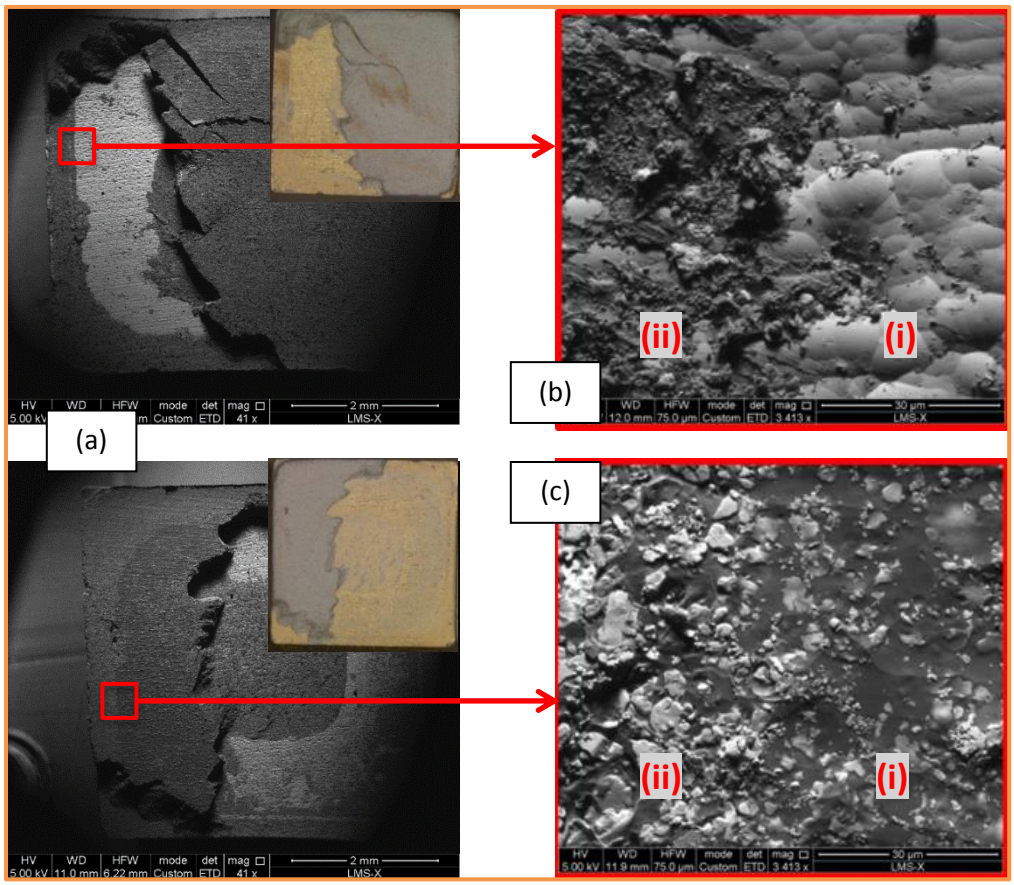


Figure 102 : Observation MEB de faciès de rupture adhésive. Le substrat semble a nu sur la partie(a), la partie (b) montre un zoom sur le substrat a nu et la partie (c) montrela zone correspondante sur le joint rompu. Les zones (i) et (ii) des images (b) et (c) étaient liées avant rupture

La partie (a) de la Figure 102 montre que les zones où le substrat paraît à l'œil nu à découvert présentent au MEB deux niveaux de gris bien distincts : clair ou très foncé (presque autant que le joint). Un zoom à une interface entre ces deux niveaux est affiché sur la partie (b) de la figure. Le substrat complètement nu dans la zone (i) claire (avec un état de surface présentant des motifs typiques de la croissance de la couche de nickel chimique) est facilement identifiable, alors qu'une fine couche de matrice et quelques charges disséminées à la surface recouvrent le substrat de la zone sombre (ii). Ces charges ne sont pas déposées les unes sur les autres mais sont toutes posées sur le substrat, indiquant que l'épaisseur de cette fine couche de joint n'excède pas l'épaisseur d'une seule lamelle d'argent, soit environ $1\ \mu m$.

La partie c) de la Figure 102 présente l'observation MEB de la zone initialement collée à la zone étudiée dans la partie (b), sur l'autre substrat. Les parties (b) et (c) correspondent donc aux deux interfaces en regard lors de la propagation de la fissure, comme le signifient les flèches bleues sur la figure. Sur l'image (c), le joint est supposé être entier puisque la fissure s'est propagée à l'interface avec l'autre substrat. Or, deux niveaux de gris distincts apparaissent également sur le joint détaché :

- La zone (i) de l'image (c) correspondant au substrat nu de l'image (b) montre des particules qui sont toutes recouvertes de matrice, et un état de surface de la matrice ressemblant à un négatif de celui du substrat nu.
- Au contraire, la zone (ii) de l'image (c) correspondant à la mince couche de matrice de l'image (b) exhibe des particules beaucoup plus brillantes car non-recouvertes de matrice. Par comparaison au point précédent, il est constaté que les lamelles d'argent ont subi de la décohésion car elles apparaissent clairement à la surface.

Ces observations montrent que le mode de rupture est plus subtil que celui initialement envisagé avec la seule observation optique. Un mix des modes cohésif et adhésif purs est plutôt à envisager. Une piste d'explication pourrait résider dans la présence d'une interphase de matrice au contact du substrat avec des propriétés mécaniques modifiées par ce contact avec le substrat. La vérification de cette hypothèse requiert de pouvoir isoler cette interphase - si tant est qu'elle existe - très fine et la tester mécaniquement de manière propre pour être ensuite la comparer à un échantillon de matrice massique non chargé. Ce travail n'a pas été abordé dans cette thèse.

Ce point aura sans doute tendance à augmenter la dispersion des résultats de fatigue du joint silicone. En effet la proportion de chacun des deux mécanismes de rupture n'est pas tout à fait identique d'un échantillon à l'autre. Il est donc probable que les phases de propagation de la fissure seront différentes selon les échantillons et induiront une variation sur le nombre de cycles total à rupture pour un même chargement. Néanmoins, la dispersion attendue devrait rester plus faible que celle induite par des cavités comme celles présentes dans le joint polyimide.

5.3 Conclusion

Nous avons détaillé dans ce chapitre deux mécanismes principaux d'endommagement et de rupture des matériaux polymères chargés : la cavitation et la décohésion. La décohésion a été distinctement constatée sur les observations faites par microscopie électronique, et ce pour toutes les orientations de particules. La proportion particulièrement élevée de charges ainsi que leur forme lamellaire allongée empêche toutefois de confirmer réellement la présence de sites d'amorce de cavitation, en raison de la proximité très forte des particules entre elles.

Comme attendu, les éventuelles cavités présentes après la polymérisation, en particulier dans les joints polyimide, constituent des sites de passage préférentiels de la fissure, qui peut ainsi se propager plus rapidement. Ces cavités étant globalement situées aux alentours du plan moyen du joint, la fissure reste cohésive et donc caractéristique du joint adhésif lui-même et non de l'assemblage. Il faut toutefois remarquer que des améliorations dans la géométrie du joint ou dans les étapes du processus de collage peuvent modifier la répartition et le volume des cavités, et donc potentiellement les mécanismes de ruptures. Les ruptures observées sont donc finalement caractéristiques du joint obtenu avec le processus de collage spécifique utilisé dans cette thèse.

La présence de ruptures adhésives a été constatée, en particulier pour le joint silicone avec des substrats polis. Ces ruptures illustrent l'importance de prendre en compte tous les paramètres géométriques ainsi que tous les matériaux de l'assemblage collé en entier dans une étude sur les joints adhésifs. Une observation plus précise montre néanmoins que ces ruptures apparemment adhésives sont en réalité plutôt mixtes, avec des zones où une couche de matrice de l'épaisseur d'une particule reste collée au substrat. La présence des deux modes de ruptures (cohésif et adhésif) pourrait augmenter la dispersion dans les résultats de fatigue à cause de la proportion changeante de chaque mécanisme d'un échantillon à l'autre.

Chapitre 6 Modélisation de la durée de vie

Ce chapitre se propose d'aborder la prédiction de la durée de vie des joints adhésifs, et l'influence du vieillissement (en particulier l'atmosphère sous laquelle vieillissement est réalisé et son confinement) sur cette prédiction. L'étude effectuée consiste donc en l'établissement de courbes de Wöhler en fonction d'une grandeur prédictive qui sera déterminée dans ce chapitre. En particulier, les variations des courbes de Wöhler avec le vieillissement du joint seront investiguées.

La première partie de ce chapitre résumera les différents modèles existants dans la littérature pour la fatigue des polymères. En seconde partie, quelques modèles simples de vieillissement de polymères seront exposés. La troisième partie fera un point sur les méthodes existantes de cumul de dommage pour des chargements d'amplitude variable. Enfin, la dernière partie présentera les résultats des essais de fatigue menés et l'identification des lois de fatigue effectuée sur la base de ces résultats.

6.1 Bibliographie des modèles de fatigue de polymères

La fatigue est le phénomène d'endommagement progressif d'un matériau sous l'effet d'un chargement cyclique, conduisant à sa ruine finale si le cycle de chargement est répété assez longtemps. Comme pour les matériaux métalliques, il est considéré que le phénomène de rupture par fatigue d'un polymère implique deux phases distinctes [104] :

- ***une phase d'amorce*** pendant laquelle des microfissures vont nucléer dans des régions du matériau initialement vierges de défauts (macroscopiques) ;
- ***une phase de propagation*** pendant laquelle les microfissures créées durant la phase d'amorce vont grandir et se propager macroscopiquement pour mener à la ruine finale du matériau (ou de la pièce structurale) étudié.

Les différents modèles de fatigue existants dans la littérature se concentrent en général sur la description précise d'une de ces deux phases, les séparant donc en deux grandes catégories :

- ***L'approche par amorce de fissure*** qui cherche à prédire le nombre de cycles au bout desquels l'amorce a eu lieu en fonction de quantités mécaniques définies à chaque point matériel de la pièce étudiée. Cette approche permet d'obtenir une cartographie complète de la durée de vie de la pièce pour un cycle de chargement défini, donc de connaître la zone préférentielle d'amorçage.
- ***L'approche par propagation de fissure*** qui cherche à décrire la vitesse d'avancée (exprimée usuellement en unité de longueur par cycle de chargement) d'une fissure initiale macroscopique de géométrie et d'emplacement connus, en fonction du taux de restitution d'énergie de la fissure (souvent appelé « énergie de déchirement » dans le cadre des élastomères).

Etant donné leur définition, une différence fondamentale entre ces deux approches réside dans l'opposition matériau/structure. En effet, l'approche par amorce entend prédire la durée de vie en tout point matériel d'une structure quelle que soit sa forme, et ne s'appuie donc que sur les grandeurs et paramètres relatifs au matériau. A l'opposé, l'approche par propagation dépend entièrement de la géométrie de la structure dont les dimensions géométriques ont une influence directe sur les lois de propagation de la fissure.

Dans le cas d'un essai de fatigue sur une structure ou un ensemble structurel tel qu'un joint adhésif, la définition exacte du stade de la rupture n'est pas automatique et requiert des choix de la part de l'expérimentateur. Skelton [105] montre pour des essais de fatigue thermomécanique sur des pièces métalliques que trois régimes peuvent être distingués. Ces régimes sont illustrés Figure 103 :

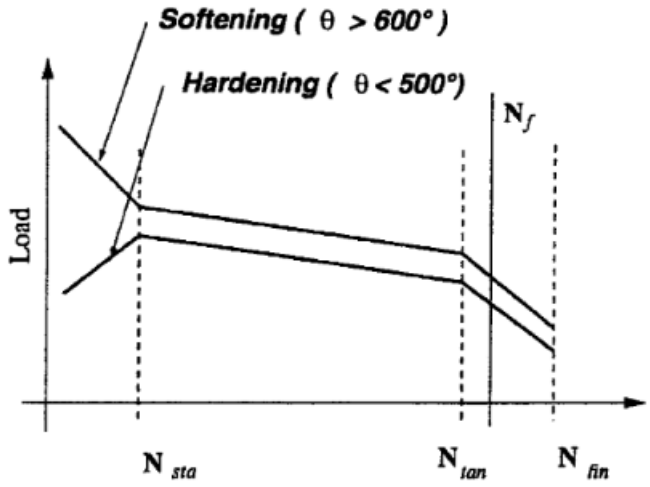


Figure 103 : évolution de la réponse en force d'une structure lors de sollicitations uniaxiales isothermes à amplitude de déformation fixe [106]

- pour $N \leq N_{sta}$, la structure présente une phase de stabilisation avec un adoucissement ou un écrouissage selon le matériau et le chargement
- pour $N_{sta} \leq N \leq N_{tan}$, le comportement matériau est stabilisé, des micros-fissures se créent et se propagent à l'échelle microscopiques sans changer véritablement la réponse globale de la structure qui reste constante ou présente un adoucissement léger et régulier
- pour $N_{tan} \leq N$, les micros-fissures atteignent une taille critique et ont nucléé pour devenir une fissure macroscopique qui influence significativement les champs mécaniques (contrainte, déformation, etc) au niveau local. La réponse globale de la structure devient maintenant dépendante de cette fissure jusqu'à sa rupture totale à N_{fin}.

Le nombre de cycles à rupture N_f peut être défini arbitrairement par l'expérimentateur, en pratique il se trouve souvent entre N_{tan} et N_{fin} en fonction de la difficulté de détection expérimentale de ces différents instants, des problématiques étudiées et des applications industrielles finales.

Les deux approches - par amorce ou par propagation - ont prouvé leur efficacité et leurs limites dans diverses situations. Dans le cadre de cette thèse sur les joints adhésifs, l'approche par amorce de fissure

correspond davantage à l'application industrielle visée où le contrôle et suivi de propagation n'est pas possible. Néanmoins les deux approches seront présentées dans les paragraphes qui suivent.

6.1.1 Approche par amorce de fissure

Cette approche définit une durée de vie en un point matériel, en fonction de l'historique des certaines quantités mécaniques (contrainte, déformation,…) vu par ce point durant la vie en service. Cette approche est souvent privilégiée car sa formulation fait intervenir des grandeurs classiques et facilement accessibles par calculs (Eléments Finis par exemple). Plusieurs régimes de fatigue ont pu être différenciés au fil des études (principalement sur les matériaux métalliques) sur le sujet :

- la fatigue à faible nombre de cycle, appelée aussi fatigue oligocyclique ou LCF (« Low Cycle Fatigue » en anglais), qui correspond aux ruptures obtenues après un nombre de cycles N relativement petit. Ce type de fatigue fait généralement intervenir des phénomènes de dissipation d'énergie à l'échelle macroscopique (plasticité, fluage, etc), et les critères classiques reposent donc en général sur des variables anélastiques.
- la fatigue à grand nombre de cycles ou HCF ((« High Cycle Fatigue » en anglais), qui étudie les ruptures obtenues pour un nombre de cycles N plus élevé que la LCF, jusqu'à typiquement 10^7 ou 10^8 cycles. La borne supérieure dépend en fait surtout de l'application finale et des moyens expérimentaux (et du temps) disponibles. Ce type de fatigue est connu, en ce qui concerne les matériaux métalliques, pour intervenir dans le domaine élastique du matériau. L'endommagement apparaît de manière microscopique mais la dissipation n'est pas forcément détectée à l'échelle macroscopique sur une courbe force-déplacement de l'échantillon. Les lois de fatigue s'appuient donc souvent sur les variables élastiques dans ce régime. Cette caractéristique est néanmoins à relativiser dans le cas des polymères, dont la viscosité induit une dissipation d'énergie macroscopique quelle que soit l'amplitude de déformation (cf Eq 13) pour une sollicitation cyclique. Marquer une distinction entre LCF et HCF pour les polymères apparaît à première vue moins pertinent que pour les métaux, les deux régimes seront donc indifférenciés dans cette thèse.

Les courbes donnant la grandeur mécanique pilotant la fatigue en fonction du nombre de cycle à rupture sont appelées courbes de Wöhler, en référence à l'ingénieur allemand du même nom qui a posé les bases de la fatigue HCF des aciers (et métaux d'une manière générale) dans les années 1860. La première étude similaire pour les polymères est celle de Cadwell [107], dans les années 1940, sur le caoutchouc naturel. Lorsque qu'une courbe de Wöhler présente (ou semble présenter) une asymptote horizontale aux très grands nombres de cycles ($N > 10^7$ typiquement) un troisième régime peut être défini : le domaine d'endurance illimitée, dans lequel le matériau ne fatigue pas et peut tenir un nombre de cycles « infini » sans jamais rompre. En pratique, ce domaine est parfois déclaré atteint quand le nombre de cycles à rupture dépasse un maximum préalablement fixé (typiquement 10^7 ou 10^8) quelle que soit la pente de la courbe de Wöhler au niveau de ce nombre de cycles maximum. Ce nombre de cycles maximum doit, dans ce cas, être du même ordre de grandeur que le nombre de cycles maximal raisonnable que la pièce verra durant sa vie en service. Ainsi, il est sûr que la pièce ne cassera pas

pendant sa vie en service suivant le mécanisme de rupture par fatigue étudié (en revanche, la pièce peut très bien casser avant suivant un autre mécanisme non pris en compte dans le dimensionnement).

Plusieurs quantités mécaniques ont pu être utilisées comme indicateur de fatigue. Les travaux historiques de fatigue métallique ont montré que la contrainte était un indicateur efficace. En particulier, deux variables ont une influence sur la tenue en fatigue des métaux : la contrainte moyenne σ_m et l'amplitude de contrainte $\Delta\sigma$ sur un cycle de chargement, donnant naissance au diagramme de Haigh (courbes d'iso-durées de vie dans l'espace $(\sigma_m, \Delta\sigma)$). Des modélisations de ces courbes d'iso-durée de vie ont été proposées par Gerber, Goodman ou encore Soderberg, chaque modèle n'étant valable que pour certains types de métaux (ductiles, fragiles, alliages…). Ces courbes permettent par exemple de définir une amplitude de contrainte équivalente $\Delta\sigma_{eq}$ à contrainte moyenne nulle pour laquelle le couple $\left(0, \Delta\sigma_{eq}\right)$ donne la même durée de vie que $(\sigma_m, \Delta\sigma)$. Dans le cas triaxial, la définition de ces concepts de contrainte moyenne et d'amplitude de contrainte n'est pas forcément triviale. Dans les travaux de Crossland et Sines, par exemple, la contrainte moyenne σ_m est définie à partir de la contrainte hydrostatique σ_h (son maximum ou sa valeur médiane sur un cycle, par exemple) et l'amplitude de contrainte s'exprime avec l'amplitude de la norme du déviateur des contraintes (contrainte équivalente au sens de Von Mises). Une quantité régulièrement utilisée est le rapport de charge R défini comme le rapport de la contrainte minimum sur la contrainte maximum :

$$R = \frac{\sigma_{min}}{\sigma_{max}} = \frac{\sigma_m - \sigma_a}{\sigma_m + \sigma_a}$$

Le critère de fatigue utilise ensuite une formule plus ou moins complexe reliant la durée de vie (nombre de cycles de chargement à rupture) N_f à l'indicateur choisi, par exemple $\Delta\sigma_{eq}$. La loi la plus connue dans le domaine HCF est la loi puissance de Basquin :

$$N_f\left(\Delta\sigma_{eq}\right)^k = B$$

Cette loi donne une courbe de Wöhler linéaire dans un diagramme log-log $\left(N_f, \Delta\sigma_{eq}\right)$. D'autres lois ont été proposées pour tenir compte de l'inflexion des données vis-à-vis de cette loi aux deux extrémités du domaine HCF : soit à la limite avec la fatigue LCF, soit pour prendre en compte une limite d'endurance illimitée. Le lecteur peut se référer à l'étude [108] pour une liste exhaustive des lois existantes.

La fatigue par amorce de fissure des élastomères (en particulier le caoutchouc naturel et synthétique, chargé ou non) a mis en valeur au fil des études les indicateurs suivants :

<u>L'élongation principale maximale</u> λ_1 [107] (avec la convention de classement des élongations principales $\lambda_1 > \lambda_2 > \lambda_3$). En particulier, il a été constaté que les ruptures de caoutchouc s'amorçaient d'une manière générale dans un plan perpendiculaire au maximum de λ_1 sur le cycle de chargement, appelé plan critique. Bien que les résultats obtenus pour des sollicitations uniaxiales soient raisonnables, cet indicateur trouve ses limites quand des tests uniaxiaux et équibiaxiaux sont comparés : en effet un chargement de traction équibiaxiale endommage davantage le matériau car la durée de vie obtenue est sensiblement plus courte que pour un chargement de traction uniaxiale pour une même valeur d'élongation [109] [110].

Pour un joint adhésif soumis à un glissement simple γ, l'élongation principale maximale λ_1 est la racine de la plus grande valeur propre de $C = {}^tF \cdot F$ (cf. rappels de MMC du paragraphe 1.1) avec

$$F = \begin{bmatrix} 1 & 0 & \gamma \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad \text{soit} \quad \lambda_1 = \sqrt{1 + \frac{\gamma^2}{2}\left(1 + \sqrt{1 + \left(\frac{2}{\gamma}\right)^2}\right)} \sim 1 + \frac{\gamma}{2} \quad \text{pour} \quad |\gamma| \ll 1$$

Etant donné les glissements raisonnables mis en jeu dans les essais de fatigue (jusqu'à $30\,\%$ environ pour les joints silicones, $25\,\%$ pour les joints polyimides), l'erreur de l'approximation linéaire $\lambda_1 \sim 1 + \gamma/2$ reste en dessous de $1\,\%$, l'indicateur γ sera donc utilisé dans cette étude à la place de λ_1. Il est également intéressant de noter la rotation des directions principales de chargement en grandes transformations pour une sollicitation de glissement simple, puisque l'angle θ_1 de la direction du vecteur propre associé à λ_1 par rapport au vecteur de base $\underline{e}_1$ illustré Figure 104 vaut

$$\theta_1(\gamma) = \tan^{-1}\left(\frac{2}{\sqrt{\gamma^2 + 4} - \gamma}\right) \sim 45° + \frac{\gamma}{4} \quad \text{pour} \quad |\gamma| \ll 1$$

Le plan matériel critique dont la normale $\underline{n}$ en configuration déformée correspond à la direction θ_1 a pour normale dans la configuration initiale $\underline{N} = {}^tF \cdot \underline{n} / \left\| {}^tF \cdot \underline{n} \right\|$ [111]. Cette normale $\underline{N}$ forme un angle θ_{Nc} illustré Figure 104 par rapport au vecteur de base $\underline{e}_1$

$$\theta_{Nc} = \tan^{-1}\left(\frac{\sqrt{\gamma^2 + 4} + 3\gamma}{2}\right) \sim 45° + \frac{3\gamma}{4} \quad \text{pour} \quad |\gamma| \ll 1$$

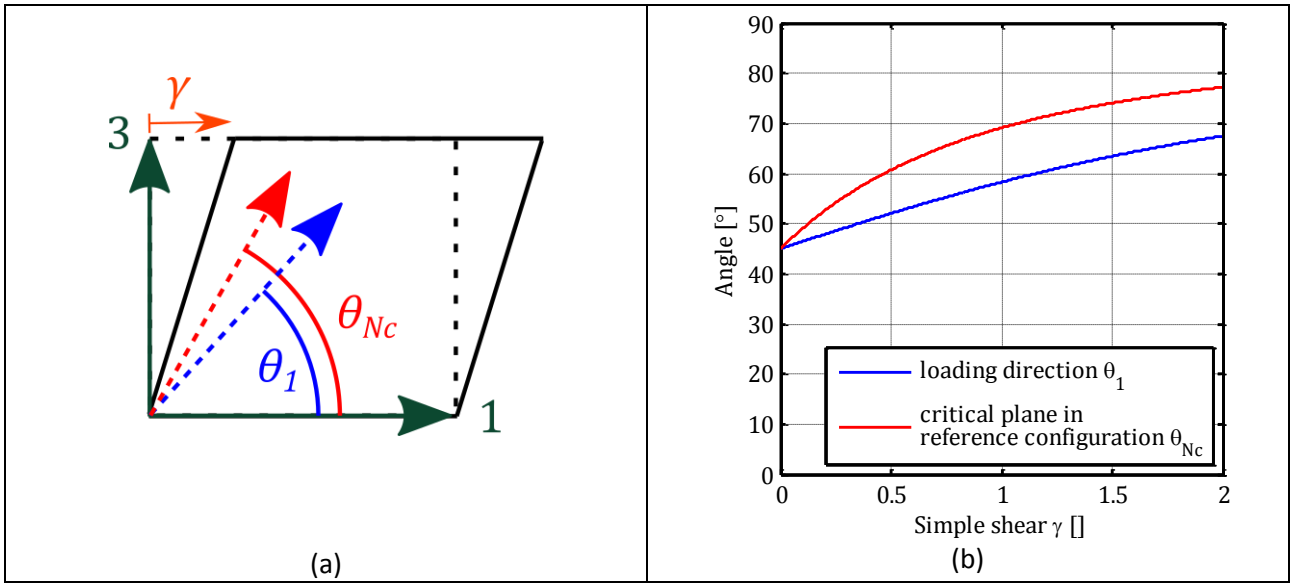


Figure 104 : (a) schéma de la direction principale du chargement θ_1 et de la normale au plan critique en configuration de référence θ_{Nc} ; (b) évolution de θ_1 et θ_{Nc} avec le glissement simple γ

Ainsi, le plan critique devient de plus en plus horizontal (sa normale s'approche de la verticale) quand le glissement simple γ augmente. Néanmoins, pour un glissement raisonnable de $\gamma = 30\,\%$, les angles définis ci-dessus valent respectivement $\theta_1 = 49{,}25°$ et $\theta_{Nc} = 55{,}60°$. Ces valeurs sont relativement

proches de celle prédite en petite déformation $\theta_1 = \theta_{Nc} = 45°$, puisque les écarts entre les deux restent dans la dispersion des mesures d'orientation de fissures reportées dans les travaux [89] et [49]. Enfin, dans le cadre de la fatigue des joints adhésifs, le plan d'amorce et propagation de la fissure est « en moyenne » horizontal car délimité géométriquement par les deux interfaces joints-substrats séparées d'une distance h très faible devant les dimensions des interfaces. La discussion sur l'orientation du plan critique reste donc auxiliaire.

La contrainte principale maximale σ_1 [112] (avec la convention de classement des contraintes principales $\sigma_1 > \sigma_2 > \sigma_3$ de manière similaire aux élongations). Pour un matériau hyperélastique « classique », la contrainte augmente de manière monotone avec l'élongation donc les contrainte et élongation principales maximales ont la même direction. Le maximum de σ_1 au cours du cycle de chargement permet donc, au même titre que l'élongation, de prédire l'orientation des fissures, ce qui a été vérifié avec des essais de traction et de torsion [49] [111] pendant lesquels le repère des contraintes principales tourne au cours du cycle de chargement. Ces auteurs ont aussi vérifié que la compression n'engendrait pas significativement de fatigue dans le matériau, c'est donc la partie positive $\langle\sigma_1\rangle = (\sigma_1 + |\sigma_1|)/2$ qui importerait de manière effective. D'autre part, la loi de comportement donne des contraintes principales plus élevées pour un chargement équibiaxial vis-à-vis d'un chargement uniaxial à élongation maximale identique. Néanmoins, cet aspect ne suffit pas à unifier entièrement les données d'essais uniaxiaux et équibiaxiaux. Enfin, ce critère a été investigué au départ par André [112] pour prendre en compte le phénomène de cristallisation sous contrainte du caoutchouc naturel qui renforce le matériau à amplitude de contrainte égale quand la contrainte minimale reste positive (pour garder la fissure ouverte lors de sa propagation). En effet la pointe de fissure peut cristalliser sous l'effet du gradient des contraintes élevées prédites par la mécanique de la rupture tant qu'elle reste ouverte pendant tout le cycle de chargement (d'où $\min \sigma_1 > 0$). Mais ce phénomène de renforcement à $\min \sigma_1 > 0$ a également été observé [113] pour des élastomères amorphes, quel que soit le niveau de déformation. Cette caractéristique implique que les diagrammes de Haigh des élastomères sont bien différents de ceux des métaux. Le critère de fatigue dépend donc du rapport de charge R, puisque l'effet de renforcement n'est présent que pour $R > 0$.

Pour un joint adhésif soumis à un cisaillement τ, la contrainte principale maximale vaut à l'ordre 1 simplement $|\tau|$.

La densité d'énergie de déformation élastique W [114]. Cet indicateur provient, à l'origine, des études de fatigue par propagation de fissure. En effet, sous certaines hypothèses, le taux de restitution d'énergie de la fissure se trouve être en effet proportionnel à la densité d'énergie élastique W, d'où son utilisation naturelle en tant qu'indicateur de fatigue dans le cadre de l'approche par amorce de fissure. Cet indicateur souffre en revanche de plusieurs limitations par rapport aux deux présentés précédemment. Tout d'abord, c'est une grandeur scalaire, ne donnant donc pas d'information sur le plan privilégié d'amorce de la fissure. D'autre part, dans le cas de chargement triaxiaux, l'énergie élastique peut n'être qu'en partie utilisable pour la croissance du défaut (c'est-à-dire de la fissure). Par exemple la portion de l'énergie élastique due à une contrainte normale de traction parallèle à la fissure ne sert pas à l'avancée de la fissure (elle aurait même d'ailleurs tendance à la refermer). Un certain facteur doit donc être calculé pour tenir uniquement compte de la partie de la densité d'énergie disponible pour l'avancée

de la fissure [109]. Ce facteur explique pourquoi les données de fatigue uniaxiale et équibiaxiale ne sont pas non plus unifiées avec cet indicateur.

Pour un joint adhésif soumis à un cisaillement (γ, τ), la densité d'énergie peut être approximée en petites déformations par $(1/2) \times \gamma\tau$. Dans le cas d'un matériau hyperélastique néo-hookéen ou de type Mooney-Rivlin soumis à un glissement simple γ, les deux premiers invariants valent $I_1 = I_2 = \gamma^2 + 3$, d'où

$$W = C_{10}(I_1 - 3) + C_{01}(I_2 - 3) = (C_{10} + C_{01})\gamma^2 = (1/2)\gamma\tau \quad \text{avec} \quad \tau = 2(C_{10} + C_{01})\gamma$$

La densité d'énergie de fissuration « Cracking energy density » W_c [115]. Conscient des limitations associées à la densité d'énergie W, Mars propose en 2002 un indicateur représentant la partie de l'énergie W restituable lors de l'avancée de la fissure perpendiculairement à une direction n avec une formulation incrémentale, à intégrer donc sur l'ensemble du cycle de chargement :

$$\mathrm{d}W_c = (n \cdot \sigma)(\mathrm{d}\varepsilon \cdot n)$$

où σ est ici le vecteur de traction sur le plan de normale n et $\mathrm{d}\varepsilon$ l'incrément de déformation sur ce plan. Le plan d'amorce de la fissure sera celui qui maximise cette énergie W_c.

Dans le cadre de la fatigue des joints adhésifs, le plan d'amorce et propagation de la fissure est macroscopiquement horizontal car délimité par les deux interfaces joints-substrats séparées d'une distance h très faible devant les dimensions des interfaces. Pour un chargement en cisaillement, le vecteur traction sur le plan horizontal est nul et le calcul donne automatiquement $W_c = 0$. Cet indicateur n'est en fait pas adapté pour des fissures sollicitées en mode de cisaillement (II ou III), et ne sera donc pas retenu pour la suite de l'étude.

La contrainte configurationnelle principale minimale Σ_3 [116] (avec la convention de classement $\Sigma_1 > \Sigma_2 > \Sigma_3$). Cet indicateur se base sur la mécanique configurationnelle, opérant dans l'espace matériel et non l'espace physique. La mécanique configurationnelle a été introduite par Eshelby [117] pour l'étude de la force associée au mouvement d'un défaut (de type inclusion, inhomogénéité, fissure, etc.) dans un volume matériel. Elle débouche sur la définition du tenseur des contraintes configurationnelles Σ dont la composante Σ_{ij} représente la variation de la densité d'énergie élastique due à une translation matérielle unitaire dans la direction i d'une surface unitaire de normale de direction j. Le tenseur Σ peut s'exprimer à partir des grandeurs de la mécanique des milieux continus classique :

$$\Sigma = WI - {}^tFP = WI - CS$$

avec F le gradient de la transformation, $C = {}^tFF$ le tenseur des dilatations (cf. rappels du paragraphe 1.1), $P = J\sigma\ {}^tF^{-1}$ le premier tenseur de Piola-Kirchoff et $S = JF^{-1}\sigma\ {}^tF^{-1}$ le second tenseur de Piola-Kirchoff ($J = \det F = 1$ pour un matériau incompressible). Σ vérifie la symétrie $\Sigma C = C\ {}^t\Sigma$ et, dans le cas de matériaux isotropiques (où C et S sont coaxiaux et commutent), Σ devient symétrique. L'utilité de cette théorie pour répondre à la question de la fatigue d'élastomères chargés réside dans le fait que la décohésion peut être vue comme des mouvements d'interfaces matrice-substrat dans l'espace matériel.

La cavitation peut d'ailleurs être considérée comme un mouvement de l'interface matrice-vide (si la création irréversible de surface est prise en compte en plus de l'instabilité élastique pure). Ces mouvements sont donc nécessairement reliés au tenseur Σ. Si une des valeurs propres de Σ est négative, il devient énergétiquement favorable que le défaut croisse perpendiculairement à la direction associée avec cette valeur propre. Si, au contraire, toutes les valeurs sont positives alors le défaut initial n'évolue pas (cet effet est similaire au phénomène de fermeture de fissure en mécanique de la rupture). Sachant l'ordre de classement des valeurs propres de Σ, l'indicateur le plus pertinent est donc Σ_3 ou plus exactement l'opposé de sa partie négative $(|\Sigma_3| - \Sigma_3)/2$, comme expliqué dans [116]. La direction associée à cette plus petite valeur propre peut être assimilée à la normale au plan de propagation macroscopique de la fissure.

Pour un joint adhésif soumis à un glissement simple γ donnant lieu à une contrainte de cisaillement τ, si l'énergie élastique W est approximée par $(1/2)\gamma\tau$, les valeurs propres de Σ sont

$$[(\gamma/2 + 1)\tau\,;\gamma\tau/2\,;\,(\gamma/2 - 1)\tau]$$

classées dans cet ordre si γ et τ sont positifs, dans l'ordre opposé si γ et τ sont négatifs. L'indicateur devient donc simplement une combinaison linéaire de $|\tau| = \sigma_1$ et $(1/2)\gamma\tau = W$ présentés précédemment : $\Sigma = \langle|\tau| - W\rangle$. A noter qu'en grandes transformations avec une loi hyperélastique néo-hookéenne, l'indicateur lors d'un glissement simple vaut

$$\Sigma = |\tau|\sqrt{1 + (\gamma/4)^2} \quad \text{avec} \quad \tau = 2C_{10}\gamma$$

Enfin, un dernier indicateur étudié originellement pour les matériaux viscoplastiques (les pièces métalliques assez chaudes par exemple) : la densité d'énergie dissipée par cycle W_d [118]. Dans ce cadre, ce critère arrive, entre autres, à unifier des données de fatigue LCF isotherme et anisotherme. Il n'est pas retrouvé dans la bibliographie de la fatigue des élastomères puisqu'il est habituellement considéré dans ces études que leur comportement est hyperélastique non-dissipatif, ou peu dissipatif. Néanmoins, dans le cadre de la viscoélasticité des joints adhésifs étudiée au Chapitre 3, ce critère peut être appliqué et sera donc investigué.

6.1.2 Approche par propagation de fissure

Une fois la fissure macroscopique amorcée dans le matériau, certains auteurs se sont intéressés à décrire la phase de propagation de cette fissure dans la structure. Les études de la littérature sont basées sur les travaux de Griffith [119] en 1920. Dans le cadre des élastomères, le terme « énergie de déchirement » T est souvent utilisé à la place du taux de restitution d'énergie, bien que les deux quantités soient tout à fait identiques :

$$T = -\frac{dU}{dA} \quad \text{avec} \quad \begin{cases} U & \text{l'énergie mécanique stockée} \\ A & \text{la surface libre de rupture} \end{cases}$$

Pour certaines géométriques spécifiques et sous certaines hypothèses (en particulier propagation auto-similaire, traction uniaxiale perpendiculaire au plan de fissure), l'énergie de déchirabilité T s'avère

proportionnelle à la densité d'énergie élastique W, les coefficients de proportionnalité dépendant des dimensions de l'éprouvette de test.

Rivlin et Thomas [120] montrent d'abord que la propagation de fissure sous chargement statique de traction uniaxiale ou traction plane (aussi appelé cisaillement pur) s'effectue quand l'énergie de déchirement T dépasse un certain seuil T_c caractéristique du matériau. Puis Thomas [121] constate que la vitesse de propagation d'une entaille de longueur a sous chargement cyclique (avec $R = 0$) dépend du maximum de T atteint au cours du cycle de chargement. Plus précisément, Lake et Lindley [122] identifient quatre régimes de propagation différents selon la valeur du pic de d'énergie de déchirement T illustrés Figure 105 :

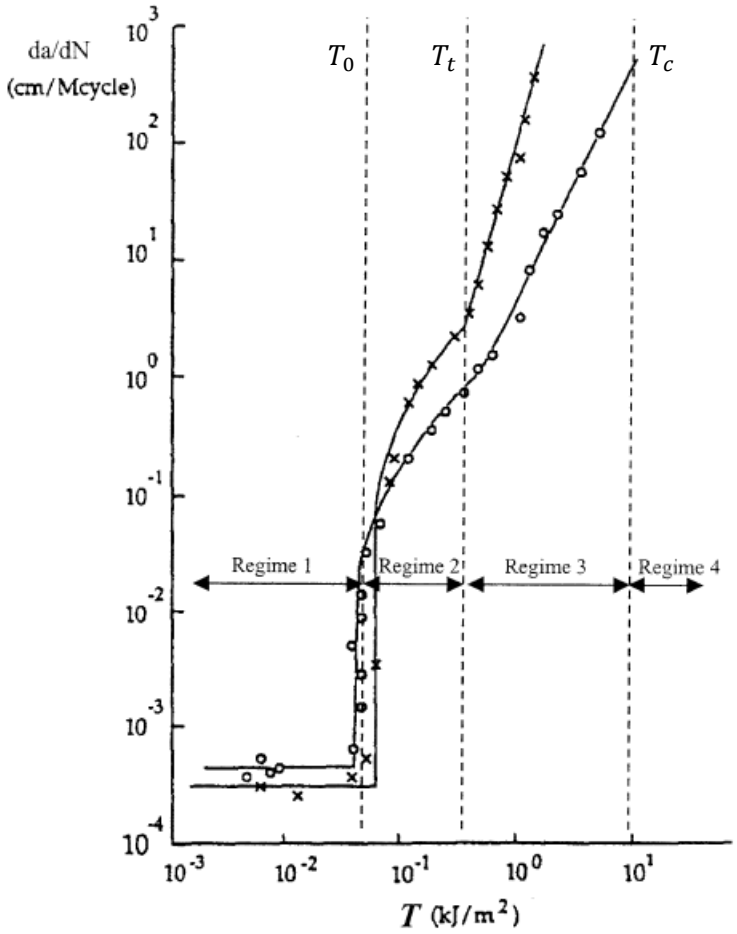


Figure 105 : identification des quatre régimes de propagation de fissure dans un caoutchouc non chargé. Les croix (x) correspondent au caoutchouc naturel (NR) et les ronds (o) correspondent au caoutchouc synthétique (SBR) [122].

- Le premier régime pour T en dessous d'un certain seuil T_0, pour lequel la vitesse de propagation ne dépend pas de T. La propagation de la fissure n'est due qu'à des réactions chimiques avec des substances présentes dans l'atmosphère.

$$\frac{da}{dN} = r$$

- Le deuxième régime pour $T_0 \leq T \leq T_t$, pour lequel la vitesse de propagation évolue de manière affine avec T.

$$\frac{da}{dN} = r + b(T - T_0)$$

- Ce deuxième régime transitoire débouche sur le troisième régime de propagation pour $T_t \leq T \leq T_c$, pour lequel la vitesse de propagation évolue en loi puissance avec T. Ce régime correspond à la loi de Paris connue pour les matériaux métalliques.

$$\frac{da}{dN} = KT^k$$

- Au-delà de T_c, la propagation devient instable et peut être modélisée dans le cadre de l'étude de la propagation sous chargement statique.

A l'instar des matériaux métalliques, certains modèles ont été proposés pour prédire l'ensemble des régimes présentés ci-dessus. Le lecteur pourra entre autres se référer aux articles [123] et [124] pour plus d'informations à ce sujet.

Bien que l'approche par propagation ne soit pas utilisée ci-dessous, il est intéressant de voir que les approches par amorce et propagation peuvent se rejoindre si l'amorçage de fissure est vu comme la propagation d'un micro-défaut initial (ou micro-fissure). Si l'amorçage est défini comme l'apparition d'une fissure de taille donnée a_f, en notant a_0 la taille du défaut initial et en supposant pour simplifier le régime 3 de loi-puissance valide en permanence, la durée de vie N_f est déduite de l'expression intégrale suivante :

$$N_f = \int_{a_0}^{a_f} \frac{\mathrm{d}a}{(\mathrm{d}a/\mathrm{d}N)} = \int_{a_0}^{a_f} \frac{\mathrm{d}a}{KT^k}$$

Dans le cas d'une éprouvette présentant une entaille de longueur a sur un bord chargée en traction uniaxiale perpendiculairement à l'entaille, l'énergie de déchirement s'écrit $T = 2\beta W a$ [104], d'où

$$N_f = \int_{a_0}^{a_f} \frac{\mathrm{d}a}{K(2\beta W a)^k} = \frac{1}{K(k-1)(2\beta W)^k}\left(\frac{1}{a_0^{k-1}} - \frac{1}{a_f^{k-1}}\right)$$

Si le défaut initial est « assez petit » devant la longueur critique a_f (généralement de l'ordre de la fissure visible à l'œil nu donc au moins du millimètre), l'expression devient

$$N_f = \frac{1}{K(k-1)(2\beta W)^k a_0^{k-1}} = BW^{-k} \quad \text{avec} \quad B = \frac{1}{K(k-1)(2\beta)^k a_0^{k-1}}$$

Ou encore $N_f W^k = B$. Une loi de Basquin est ici obtenue, avec la densité d'énergie élastique comme indicateur de fatigue. Des essais par Lake [125] ont montré que cette loi conduisait à une longueur a_0 du défaut initial cohérente (de l'ordre de grandeur des bavures de découpe sur les bords des éprouvettes) pour des essais uniaxiaux. Pour les joints adhésifs de notre étude qui casseraient par rupture cohésive,

les défauts de surfaces libres auraient pour ordre de grandeur la taille typique d'une particule d'argent, c'est-à-dire la dizaine de microns. Néanmoins, les limites de W comme indicateur de fatigue par amorce de fissure ont déjà été évoquées dans le paragraphe précédent. D'autre part l'étude de Lake repose sur la théorie de la mécanique de la rupture d'une fissure chargée en mode d'ouverture alors que le joint adhésif est chargé en cisaillement.

6.2 Bibliographie des modèles de vieillissement des polymères

La question de l'évolution des polymères pendant leur vieillissement est devenue d'actualité en même temps que celle de leur tenue en fatigue, suite à leur utilisation de plus en plus intensive dans des pièces structurelles. En effet, à cause de leur nature organique, certains polymères peuvent avoir une sensibilité accrue à certaines expositions environnementales. Les paramètres de vieillissement suivants sont connus pour avoir une influence non-négligeable sur les polymères :

- la température ;
- l'oxygène ;
- l'ozone ;
- l'humidité ;
- les radiations ;
- les produits chimiques ;
- les huiles ;
- les chargements mécaniques.

Dans le cas d'un vieillissement avec plusieurs paramètres combinés, des couplages peuvent bien sûr se produire. Ceux-ci accélèrent ou retardent la dégradation du polymère par rapport à un vieillissement où les différents paramètres seraient appliqués les uns après les autres.

On peut classer de manière générale les vieillissements en trois grandes catégories :

- les vieillissements physiques, réversibles, qui peuvent être dus à une relaxation, une recristallisation, etc. Ils peuvent souvent être annulés après chauffage du matériau (typiquement au-dessus de sa T_g).
- la fatigue mécanique, irréversible, par amorce puis propagation de fissure suite à des chargements cycliques répétés (voir paragraphe 6.1 précédent).
- les vieillissements chimiques, irréversibles également, par scission de chaine moléculaire et réticulation secondaire.

Dans la suite, uniquement le vieillissement chimique et son influence sur la tenue en fatigue sera abordé. En effet, la réversibilité du vieillissement physique l'exclut du cadre de l'étude.

6.2.1 Vieillissement chimique des polymères

Ce paragraphe ne prétend pas explorer de manière exhaustive tout le travail reporté dans la littérature. Il s'intéresse uniquement à un modèle simple prenant en compte les phénomènes de réticulation et de scission afin de modéliser le vieillissement chimique. Johlitz [126] constate que le caoutchouc naturel se rigidifie après un vieillissement thermique à l'air libre (thermo-oxydatif). La Figure 106 (a) illustre ce phénomène pour une température de vieillissement de $100°C$: la pente des courbes de traction augmente progressivement avec la durée du vieillissement thermo-oxydatif, prouvant la rigidification du matériau. Cette rigidification est accompagnée d'une fragilisation puisque la déformation maximale à rupture est réduite à $45\ \%$ après 3 jours et descend même à $25\ \%$ après 6 jours de vieillissement. Cette fragilisation est reliée à l'oxydation d'une couche surfacique de l'éprouvette. Cette rigidification atteste du développement de nouveaux points de réticulation dans le réseau polymère pendant le vieillissement. En parallèle, un essai de relaxation longue durée à différentes températures montre un adoucissement progressif du matériau en fonction du temps, comme illustré Figure 106 (b) :

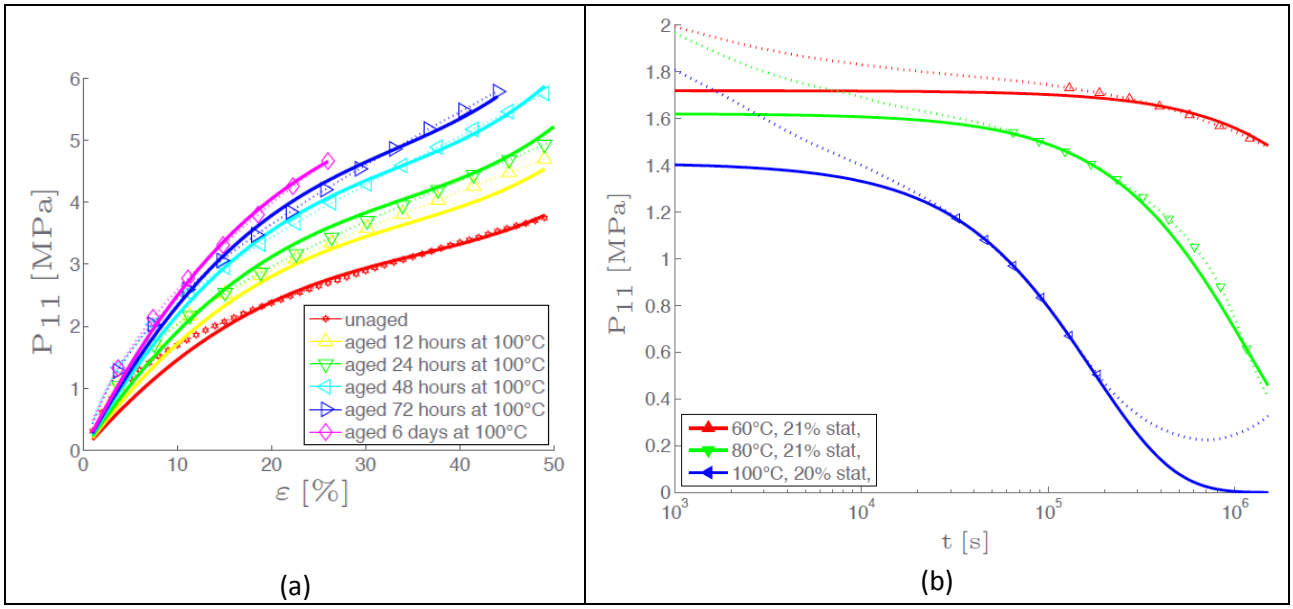


Figure 106 : (a) Courbes contrainte-déformation en traction uniaxiale d'un caoutchouc naturel vieilli pendant différentes durées à $100°C$ [126] ; (b) Relaxation de contrainte en fonction du temps pour différentes températures durant un essai de relaxation [126]

Cet adoucissement durant l'essai de relaxation, qui peut finir par déboucher sur une contrainte finale nulle, prouve la dégradation du réseau polymère initial. Un des mécanismes proposés pour expliquer cette dégradation est la scission des chaînes du réseau polymère. Dans cet essai de relaxation, la scission des chaînes provoquant l'adoucissement n'est pas compensée par la création de nouveaux points de réticulation car ceux-ci se font dans un état libre de contrainte, donc dans la configuration déformée. Ainsi, quand la contrainte durant l'essai de relaxation arrive finalement à zéro, le réseau initial de chaînes est entièrement rompu et les nouveaux points de réticulation se sont créés dans la configuration déformée libre de contrainte.

Ces deux phénomènes de scission de chaîne et de création de point de réticulation peuvent être modélisés [127] par deux variables internes q et p. Dans le cadre uniaxial en petites déformations, ces variables peuvent dépendre de la température T et de la déformation γ :

$$\begin{cases} \dot{p}(t) = f_p(t, T, \gamma, p, q) \\ \dot{q}(t) = f_q(t, T, \gamma, p, q) \end{cases} \text{ avec } \; p(0) = q(0) = 0$$

Pour un polymère élastique soumis à une déformation γ, la contrainte τ qui en résulte est la somme du réseau initial (dégradé si $p > 0$) et du nouveau réseau formé par les nouveaux points de réticulation :

$$\tau = \tau_p + \tau_q \;\; \text{avec} \;\; \begin{cases} \tau_p = G(1-p)\gamma \\ \dot{\tau}_q = G_\infty q \dot{\gamma} \end{cases}$$

Ainsi, pour un polymère neuf (non-vieilli), $p = q = 0$ et la loi de comportement s'écrit $\tau = G\gamma$; tandis que pour un polymère complètement vieilli, $p = q = 1$ et la loi de comportement s'écrit $\tau = G_\infty \gamma$. La loi de comportement pour le nouveau réseau $\dot{\tau}_q = G_\infty q \dot{\gamma}$ est formulée en termes de dérivée temporelle pour tenir compte de la formation du réseau dans un état libre de contrainte.

Une loi d'évolution de type Arrhenius est proposée dans [126] pour les variables internes p et q s'appuyant sur des énergies d'activation :

$$\begin{cases} \dot{p}(t, T) = a_p \exp\left(-\dfrac{E_p}{RT}\right)\big(1 - p(t)\big) \\ \dot{q}(t, T) = a_q \exp\left(-\dfrac{E_q}{RT}\right)\big(1 - q(t)\big) \end{cases} \text{ avec } \; p(0) = q(0) = 0$$

Soit, pour un vieillissement isotherme

$$\begin{cases} p(t) = 1 - e^{-t/\lambda_p} \\ q(t) = 1 - e^{-t/\lambda_q} \end{cases} \text{ avec } \begin{cases} \lambda_p = \left(a_p e^{-E_p/RT}\right)^{-1} \\ \lambda_q = \left(a_q e^{-E_q/RT}\right)^{-1} \end{cases}$$

Pour un essai de relaxation, $\gamma = \gamma_0$ et $\dot{\gamma}(t > 0) = 0$, la réponse du modèle est simplement $\tau = \left(e^{-t/\lambda_p}\right) G\gamma_0$, la contrainte présente une décroissance exponentielle pour converger vers 0.

Pour un essai de fluage $\tau = \tau_0$, la réponse peut s'écrire en supposant $\lambda_p = \lambda_q = \lambda$:

$$\gamma(t) = \frac{\tau_0}{G} \exp\left(\frac{1}{\lambda} \int_0^t \frac{\mathrm{d}x}{1 + G_\infty / G(e^{x/\lambda} - 1)}\right)$$

La réponse normalisée $G\gamma/\tau_0$ est tracée Figure 107 en fonction de t/λ pour trois contrastes G_∞/G entre le réseau final et le réseau initial.

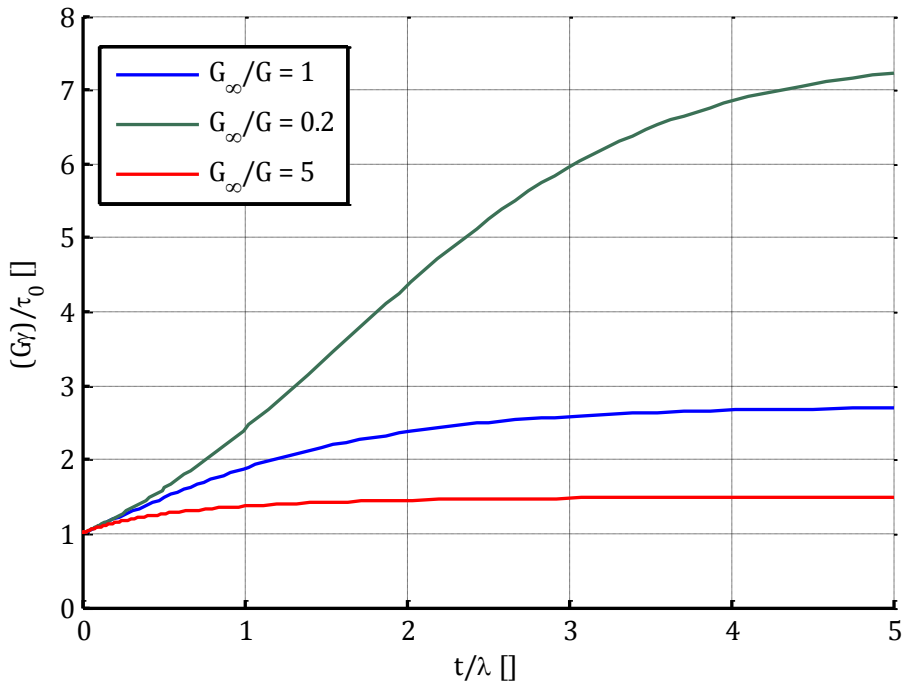


Figure 107 : Réponse normalisée en déformation lors d'un essai de fluage pour trois contrastes G_∞/G différents entre le réseau final et le réseau initial

L'échelle de temps sur laquelle s'opère le fluage peut évoluer de λ quand le réseau final est bien plus rigide que le réseau initial à des durées plus élevées quand le réseau final est moins rigide : typiquement 4λ pour $G_\infty/G = 0{,}2$.

Ce modèle simple et respectant la thermodynamique permet de bien sentir l'effet du vieillissement thermique sur les polymères. Néanmoins, l'adaptation de ce modèle à des polymères viscoélastiques n'est pas immédiate à cause des formulations temporelles utilisées. En particulier, le principe de correspondance décrit au paragraphe 4.1.3 ne s'applique plus pour des matériaux viscoélastiques vieillissants. Une approche numérique telle qu'employée par Masson [128] serait sans doute meilleure, mais une définition des raideurs initiales G_i et finales $G_{i\infty}$ de chaque élément de Maxwell respectant la thermodynamique n'est pas forcément triviale.

6.2.2 Tenue en fatigue de polymères chimiquement vieillis

Le modèle du paragraphe précédent nous donne une loi de comportement évoluant au fil du vieillissement du matériau. Certains auteurs ont également regardé l'évolution de la tenue en fatigue en fonction du vieillissement chimique préalable du caoutchouc naturel [129]. L'indicateur de fatigue utilisé dans leur étude est l'amplitude du déplacement en traction, qui peut donc être reliée à l'amplitude de déformation $\Delta\varepsilon$. Il faut bien noter ici qu'une amplitude de déformation $\Delta\varepsilon$ appliquée à une éprouvette en caoutchouc vieilli engendrera une amplitude de contrainte $\Delta\sigma$ plus élevée que pour du caoutchouc neuf car le matériau s'est rigidifié avec le vieillissement comme illustré sur la Figure 106 (a). La Figure 108 montre l'évolution des courbes de Wöhler du matériau, tracées en termes d'amplitude de

déplacement avec la durée du vieillissement préalable à 100°C subies par les éprouvettes de fatigue (les graphes pour d'autres températures de vieillissements sont disponibles dans [129] et présentent le même comportement) :

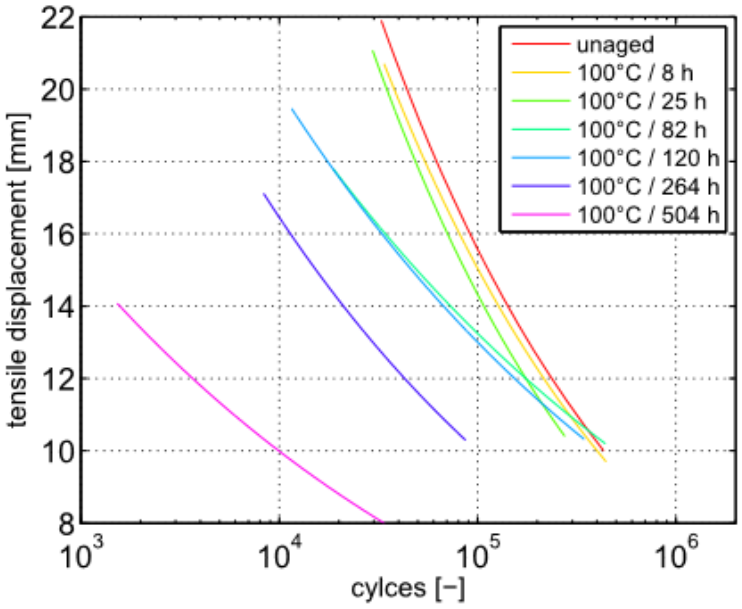


Figure 108 : évolution des courbes de Wöhler du caoutchouc naturel pour différentes durées de vieillissement à 100°C [129]. Les essais de fatigue sont effectués à température ambiante

D'une part, les courbes de Wöhler sont globalement translatées sur la gauche avec le vieillissement qui raccourcit donc la durée de vie du matériau comparé au même matériau neuf ; d'autre part, les pentes des courbes diminuent, ce qui implique une incidence encore plus marquée des chargements à amplitude élevée sur la durée de vie de l'éprouvette. Ici encore, il faut garder à l'esprit que l'augmentation de la rigidité du matériau peut compenser la diminution de la pente des courbes de Wöhler, si bien que des courbes tracées en termes d'amplitude de contrainte ou amplitude d'énergie pourraient avoir des pentes similaires et présenter des translations sur la gauche du diagramme moins marquées. Elles n'ont pas été tracées dans l'article.

Les auteurs ont également étudié l'influence de la température à laquelle sont effectués les tests de fatigue. Dans le cas d'échantillons neufs, les courbes obtenues par les auteurs à température ambiante T_{amb}, 70°C, 85°C et 100°C sont affichées Figure 109 : les courbes sont translatées vers la gauche mais gardent cette fois-ci grossièrement la même pente. Cette évolution des courbes de Wöhler traduisant une diminution de la durée quand la température augmente est à rapprocher de l'évolution de la contrainte à rupture mesurée par Buch [27] pour un epoxy avec la température : ce dernier a en effet constaté que la contrainte à rupture (ou encore limite de fatigue pour $N_f = 1$ cycle) a une évolution très similaire à la rigidité du matériau, et présente donc en particulier une chute brutale au niveau de la T_g, comme présenté Figure 110. Néanmoins, il faut noter ici que les températures explorées par [129] pour les essais de fatigue sur le caoutchouc naturel sont toutes bien au-dessus de la T_g contrairement aux essais de rupture de [27] sur l'adhésif epoxy qui sont effectués aux alentours de la T_g.

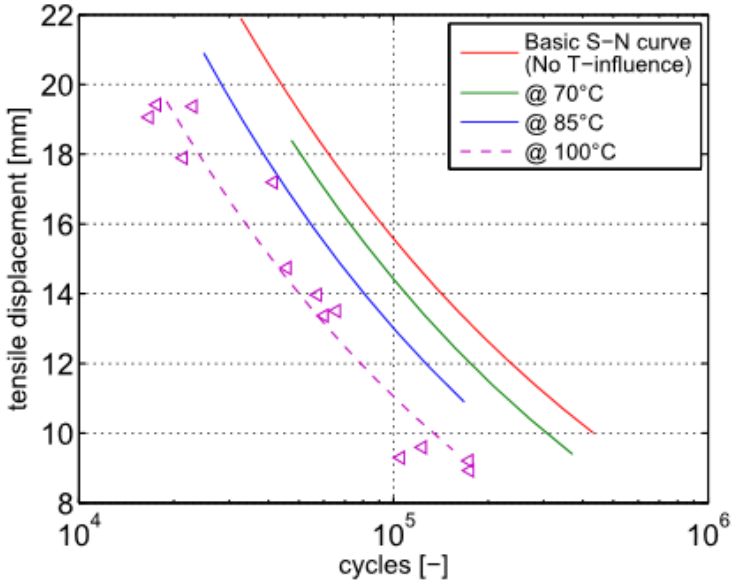


Figure 109 : influence de la température des tests de fatigue sur la prédiction de la durée de vie du matériau [129]

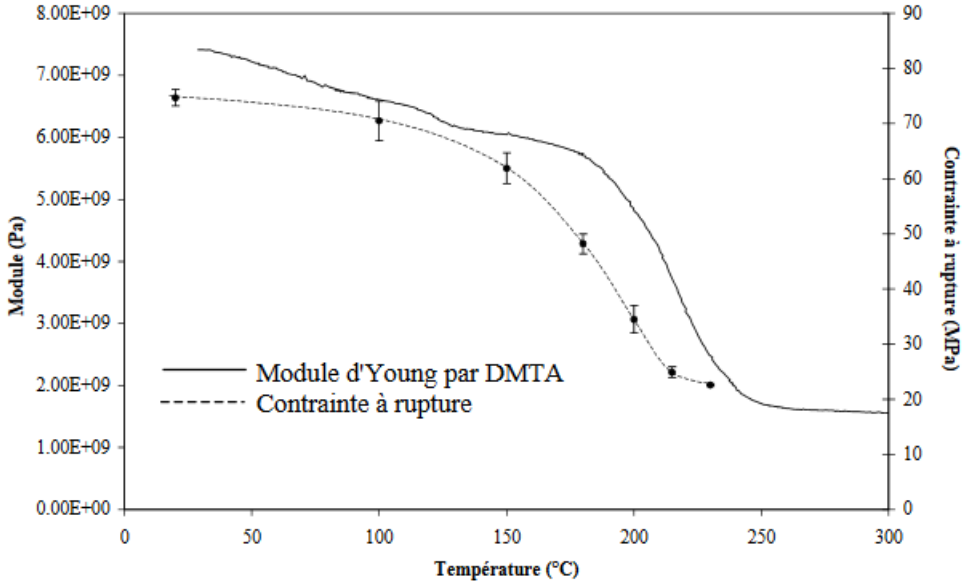


Figure 110 : Evolution de la rigidité et de la contrainte à rupture avec la température d'un adhésif epoxy étudié dans [27]

Des essais combinant vieillissement thermique et tests en fatigue à température ont également été effectués dans [129] pour élaborer un modèle. Pendant ces essais, il a été considéré que le vieillissement thermique de l'échantillon pendant l'essai de fatigue en température est négligeable par rapport à celui déjà subi par l'échantillon avant les cycles mécaniques. En notant T_a la température du vieillissement et t_a sa durée, T la température de l'essai de fatigue (si effectué à chaud, c'est-à-dire plus haut que la température ambiante T_{amb}), $N(T_a, t_a, T)$ la durée de vie d'un échantillon vieilli pendant une durée t_a à une température T_a puis testé en fatigue à une température T, la loi proposée s'écrit :

$$\frac{N(T_a, t_a, T)}{N(T_a = 0, t_a = 0, T = T_{amb})} = \exp\left(-\frac{t_a}{\lambda_a}\right) \times A(T_a, t_a, T)$$

$$\text{avec} \quad \begin{cases} A(T_a, t_a, T) = \begin{cases} 1 & \text{si } T \leq T_0 \\ 1 + \left(K_0 + \dfrac{t_a}{\lambda_{0a}}\right)\left(\dfrac{T - T_0}{T_0}\right)^2 & \text{sinon} \end{cases} \\ \lambda_a = \left(a_a e^{-E_a/RT_a}\right)^{-1} \\ \lambda_{0a} = \left(a_0 e^{-E_0/RT_a}\right)^{-1} \end{cases}$$

Les paramètres à identifier sont les énergies d'activation E_a et E_0, les préfacteurs a_a et a_0, la constante K_0 et la température T_0. La signification physique de ces paramètres est la suivante :

- T_0 est une température seuil en-dessous de laquelle la température T du test de fatigue n'influe pas sur la durée de vie du matériau, neuf ou agé.
- K_0 caractérise la dépendance de la durée de vie du matériau neuf à la température $T > T_0$ du test de fatigue.
- E_a et a_a sont les deux paramètres définissant la constante de temps d'Ahrrenius λ_a qui caractérise l'influence du vieillissement sur la durée de vie fatigue.
- E_0 et a_0 caractérisent la correction apportée au coefficient K_0 (par l'intermédiaire de λ_{0a}) sur la durée de vie du matériau vieilli à T_a puis testé en fatigue à $T > T_0$.

Ce modèle permet de prendre en compte la température (de vieillissement et d'essai en fatigue) avec un nombre raisonnablement limité de paramètres. Le nombre de tests de fatigue à effectuer pour les identifier de manière fiable restant tout de même assez impressionnant, ce travail n'a pas été effectué dans cette thèse. Le lecteur est invité à se référer à l'étude [129] pour plus d'informations sur le sujet.

6.3 Cumul de dommage pour un chargement aléatoire proportionnel

Tous les travaux cités jusqu'à présent dans les parties bibliographiques de ce chapitre ainsi que les résultats qui y seront présentés considèrent uniquement un chargement périodique (généralement sinusoïdal) d'amplitude et moyenne constante. Cette affirmation est exacte pour la quantité mécanique pilotée (généralement force ou déplacement). Pour les quantités mécaniques mesurées au cours du test de fatigue il est supposé que l'amplitude et la moyenne mesurées à mi-vie sont représentatives de celles vues par l'éprouvette tout au long du cycle. Lors d'une utilisation industrielle, les chargements sont habituellement complexes. Leur décomposition en cycles élémentaires d'amplitude et moyenne bien définies et le cumul de leur dommage nécessitent des procédures particulières. Les chargements d'amplitude variables n'ont pas encore suscité de réelles études approfondies pour les matériaux polymères. Dans ce domaine, les travaux d'Ayoub [130] basés sur la mécanique de l'endommagement de Lemaitre et Caboche [131] se distinguent toutefois. Ses études ont pour but initial l'étude de la fatigue mais la formulation de la loi de fatigue obtenue permet finalement de prendre en compte des chargements d'amplitude variable. Cette partie exposera d'abord son approche, puis les deux méthodes

proposées établies ces dernières années dans le cadre plus classique de la fatigue les matériaux métalliques : l'approche temporelle et l'approche fréquentielle.

6.3.1 Prédiction de durée de vie par la mécanique de l'endommagement

Initialement, Wang [132] pense à utiliser la mécanique de l'endommagement de Lemaitre et Caboche [131] pour traiter le problème de l'amorçage en fatigue. La mécanique de l'endommagement introduit une variable scalaire D représentant l'endommagement. Un chargement macroscopique est appliqué à un matériau endommagé : la contrainte effective σ_0 subie par la partie encore non-endommagée du matériau contribuant à la transmission de la contrainte peut s'exprimer à partir de la contrainte σ qui aurait été générée dans le matériau sain par le chargement macroscopique :

$$\sigma_0 = \frac{\sigma}{1-D}$$

La thermodynamique définit un potentiel de dissipation φ^* et sa force thermodynamique associée y tels que [131]

$$\dot{D} = -\frac{\partial \varphi^*}{\partial y}$$

La relation proposée [132] entre φ^* et y est de la forme

$$\varphi^* = \frac{A}{a+1}\left(-\frac{y}{A}\right)^{a+1}$$

d'où

$$\dot{D} = \left(-\frac{y}{A}\right)^{a}$$

La force thermodynamique y peut s'écrire

$$-y = \frac{\partial W}{\partial D}$$

Ayoub [130] montre que la dérivée $\partial W / \partial D$ peut s'exprimer sous la forme

$$\frac{\partial W}{\partial D} = \frac{\sigma_{eq}}{1-D}$$

avec σ_{eq} une grandeur homogène à une contrainte, qui servira dans la suite d'indicateur de fatigue. Son expression se déduit directement de W, mais Ayoub a testé d'autres grandeurs énergétiques à la place de W : uniquement la partie correspondant à l'élongation principale maximale, ou encore l'énergie de fissuration W_c définie par Mars [115].

L'équation d'évolution du dommage devient

$$\dot{D} = \left(\frac{\sigma_{eq}}{A(1-D)}\right)^a$$

Dans le cadre de l'étude du comportement en fatigue, l'expression précédente devient

$$\frac{dD}{dN} = \left(\frac{\sigma_{eq}}{A(1-D)}\right)^a$$

ce qui implique une redéfinition du paramètre A faisant intervenir la fréquence de l'essai de fatigue.

Enfin, il est obtenu après intégration

$$D = 1 - \left(1 - (a+1)N\left(\frac{\sigma_{eq}}{A}\right)^a\right)^{1/(a+1)}$$

Le nombre de cycle à rupture N_f peut être déduit de cette équation quand le dommage D atteint sa valeur critique D_c (≤ 1) :

$$N_f = \left(\frac{A}{\sigma_{eq}}\right)^a \frac{1-(1-D_c)^{a+1}}{a+1} = \frac{1}{a+1}\left(\frac{A}{\sigma_{eq}}\right)^a \quad \text{pour} \quad D_c = 1$$

Dans le cas de chargements avec n blocs où chaque bloc est défini par son amplitude $\sigma_{eq,i}$ et son nombre de cycles N_i, le dommage à la fin du $i$ème bloc D_i s'obtient par récurrence :

$$D_i = 1 - \left((1-D_{i-1})^{a+1} - (a+1)N_i\left(\frac{\sigma_{eq}}{A}\right)^a\right)^{1/(a+1)}$$

Cette expression permet de voir que l'ordre d'application des blocs importe pour la valeur finale du dommage après les n blocs. La Figure 111 montre l'évolution de D pour un chargement comprenant 2 blocs : l'ordre des chargements est opposé entre les deux parties (a) (faible puis élevée) et (b) (élevée puis faible). L'influence de l'ordre de ces deux blocs sur l'évolution de l'endommagement est graphiquement bien visible.

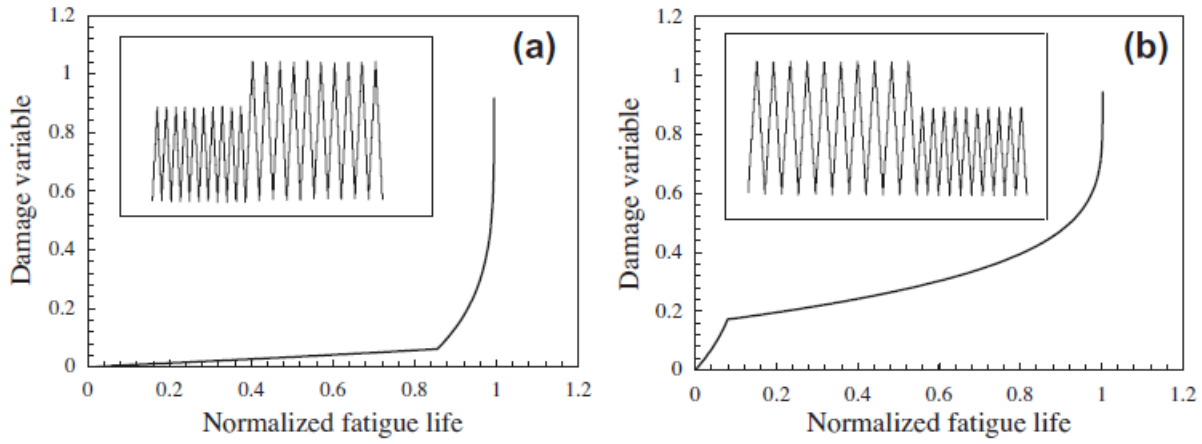


Figure 111 : évolution de la variable d'endommagement pour un chargement à deux blocs : (a) faible-élevé et (b) élevé-faible [130]

6.3.2 Cumul de dommage des métaux par l'approche temporelle

Dans cette approche, la donnée d'entrée est un enregistrement temporel de la sollicitation d'une durée Δt, réputé représentatif du chargement que verra le matériau ou la pièce durant sa vie en service. Si le critère de fatigue porte sur l'amplitude de contrainte (éventuellement corrigée par sa moyenne), l'objectif est donc d'obtenir le signal de la contrainte subie par le matériau/la pièce en fonction du temps $\sigma(t)$. Dans la pratique, le signal de contrainte est rarement accessible directement, les tests de pièces industrielles étant plus souvent suivis avec des accéléromètres qui donnent l'accélération mesurée en un point de la pièce $\ddot{x}(t)$. Des méthodes comme les spectres de réponse au choc permettent de remonter à la contrainte vue par la pièce en fonction de l'accélération mesurée, au prix de la définition de la fréquence propre f_0 de la pièce et celle parfois arbitraire de son facteur d'amortissement ξ.

Une fois le signal $\sigma(t)$ obtenu, il est « découpé » en cycles élémentaires d'amplitude $\Delta\sigma$ et moyenne σ_m connue grâce à une méthode de comptage. Une des méthodes les plus utilisées aujourd'hui est la méthode « rainflow » définie en particulier par la norme AFNOR A03-406. Cette méthode isole les cycles élémentaires du signal mais sans garder en mémoire l'ordre dans lequel les cycles ont été vus.

Le dommage élémentaire δD subi par la pièce pour chaque cycle identifié par la méthode de comptage est ensuite calculé par la loi de fatigue identifiée expérimentalement. Ces dommages élémentaires ensuite sont cumulés sur toute la durée de l'enregistrement suivant une règle de cumul pour obtenir le dommage $D_{\Delta t}$ subi par la pièce pendant l'enregistrement du signal. Enfin, l'extrapolation de l'évolution du dommage $D_{\Delta T}$ sur une durée quelconque ΔT requiert également une règle de cumul (souvent la même que celle utilisée pour le cumul sur la durée de l'enregistrement) du dommage calculé sur l'enregistrement. La durée de vie finale est définie par ΔT_f telle que

$$D_{\Delta T_f} = 1$$

La règle de cumul classique la plus connue est celle du cumul linéaire de Miner : pour chaque cycle $(\sigma_m, \Delta\sigma)$, le nombre de cycles à rupture obtenu par la loi de fatigue est noté N_i. Le dommage élémentaire engendré par ce cycle vaut $\delta D_i = 1/N_i$. Si l'enregistrement comporte q cycles sur sa durée, le dommage subi par la pièce quand la sollicitation enregistrée lui est appliquée vaut

$$D_{\Delta t} = \sum_{i=0}^{q} \delta D_i = \sum_{i=0}^{q} \frac{1}{N_i}$$

Le cumul linéaire pour une durée quelconque ΔT (de préférence $\gg \Delta t$) donne simplement

$$D_{\Delta T} = \frac{\Delta T}{\Delta t} D_{\Delta t} \quad \text{puis} \quad \Delta T_f = \frac{\Delta t}{D_{\Delta t}}$$

Le cumul linéaire implique nécessairement que l'ordre d'application des cycles de chargement n'importe pas dans le calcul final de l'endommagement. Or, il est unanimement admis dans la littérature que lors d'un chargement avec deux blocs d'amplitude distincts $\Delta\sigma_1$ puis $\Delta\sigma_2$:

- si $\Delta\sigma_1 > \Delta\sigma_2$, le cumul linéaire donne des prévisions trop optimistes sur la durée de vie (l'échantillon casse avant la prédiction) ;
- si $\Delta\sigma_1 < \Delta\sigma_2$, le cumul linéaire donne des prévisions trop conservatives sur la durée de vie (l'échantillon casse après la prédiction).

Les règles de cumul non linéaires ont donc été développées pour corriger les points évoqués ci-dessus. Le lecteur peut se référer à l'étude [133] qui détaille trois modèles non-linéaires :

- Une courbe de dommage (Damage Curve Approach) avec deux paramètres $\alpha \geq 0$ et $N_{ref} \geq 1$, comme illustré sur la Figure 112 (a). La courbe de dommage est linéaire pour $N_f = N_{ref}$ et devient de plus en plus non-linéaire pour les grands nombres de cycles à rupture N_f.
- la règle de cumul double-linéaire (Double Linear Damage Rule) illustrée Figure 112 (b) avec deux segments linéaires se rejoignant en un point à déterminer expérimentalement.
- Un modèle combinant les deux précédents (Double Damage Curve Approach) illustré Figure 112 (c) avec une première partie linéaire et une seconde partie en loi puissance.

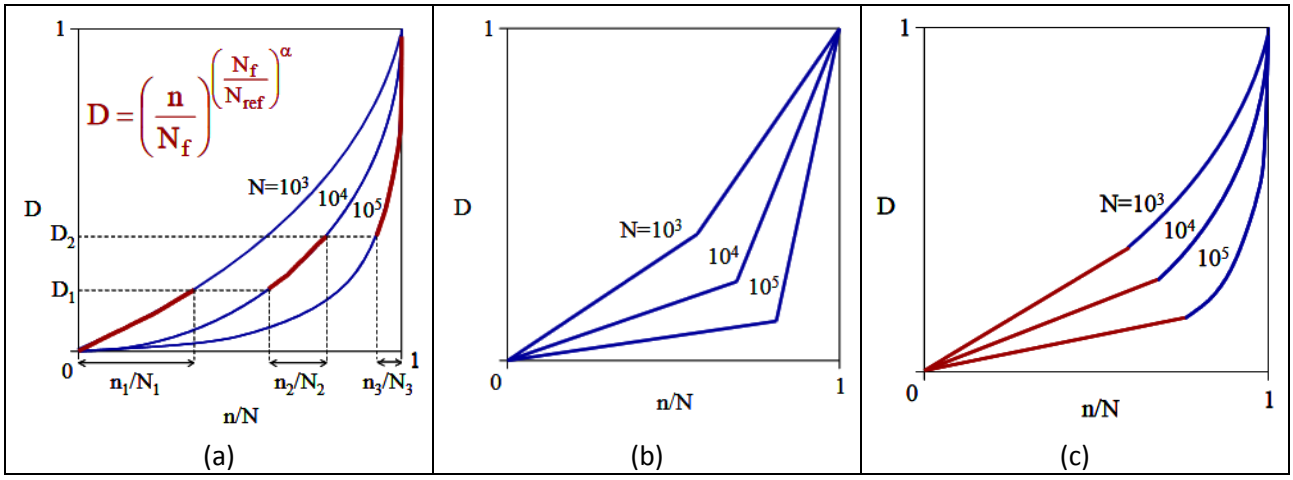


Figure 112 : illustration de trois règles de cumul non-liénaire : (a) Damage Curve Approach, (b) Double Linear Damage Rule ; (c) Double Damage Curve Approach

L'application de ces modèles avec un chargement en trois blocs est illustrée avec $\Delta\sigma_1 > \Delta\sigma_2 > \Delta\sigma_3$ sur la Figure 112 (a). Il peut être graphiquement déduit que $\sum n_i/N_i < 1$ quand la rupture est atteinte, donc que le cumul linéaire est trop optimiste. A l'inverse, pour $\Delta\sigma_1 < \Delta\sigma_2 < \Delta\sigma_3$, le cumul linéaire $\sum n_i/N_i$ aurait été plus grand que 1 à la rupture, c'est-à-dire conservatif. La forme convexe des courbes permet donc de corriger le caractère optimiste ou conservatif de la règle de cumul linéaire de Miner. Néanmoins, il est nécessaire pour ces approches de cumul non-linéaire d'utiliser une méthode de comptage permettant de décomposer un signal complexe en cycles élémentaires en gardant l'information temporelle sur l'instant d'application des cycles élémentaires, ce que ne permet pas la méthode « rainflow ». D'autres lois de cumul non-linéaires existent également : le lecteur peut se référer à l'étude [108] pour une liste plus exhaustive.

6.3.3 Cumul de dommage des métaux par l'approche fréquentielle

Pour des sollicitations vibratoires de nature stationnaire gaussienne et ergodique, il est plus aisé de représenter la sollicitation non pas par un enregistrement temporel mais par sa densité spectrale de puissance (PSD = Power Spectral Density). La densité spectrale de puissance du signal est, du point de vue théorique, la transformée de Fourier de sa fonction d'autocorrélation. En pratique, quand un enregistrement de durée ΔT est à disposition, il est possible de calculer la transformée de Fourier rapide $FFT(f)$ pour les fréquences discrètes f multiples de $1/\Delta T$. Les coefficients de la PSD discrète valent ensuite simplement $PSD(f) = |FFT(f)|^2/\Delta T$.

L'approche fréquentielle grâce à la PSD du cumul de dommage est exposée en détail dans [134]. Les principales étapes sont résumées ci-dessous. Il est utile de souligner que la seule donnée d'une PSD n'apporte pas d'information sur un quelconque ordre d'application des niveaux de sollicitation. En conséquence, un cumul linéaire est forcément utilisé dans cette approche.

La PSD du signal permet de définir les différents moments spectraux m_i :

$$m_i = \int_{-\infty}^{+\infty} |\omega|^i PSD(\omega) \mathrm{d}\omega = (2\pi)^i \int_{-\infty}^{+\infty} |f|^i PSD(f) \mathrm{d}f$$

La fréquence moyenne du signal vaut

$$f_m = \frac{m_1}{m_0}\sqrt{\frac{m_2}{m_4}}$$

La fréquence de passage du signal par le niveau σ avec une pente positive vaut

$$f_\sigma^+ = \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{m_2}{m_0}}\exp\left(-\frac{\sigma}{2m_0}\right)$$

La fréquence des maxima locaux du signal vaut

$$f_M = \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{m_4}{m_2}}$$

On définit le facteur d'irrégularité

$$\gamma = \frac{f_{\sigma=0}^+}{f_M} = \frac{m_2}{\sqrt{m_0 m_4}} \quad \text{et} \quad \varepsilon^2 = 1 - \gamma^2$$

Quand $\gamma \to 1$, il y a autant de maxima que de passages par le niveau $\sigma = 0$ donc le signal est régulier (la bande fréquentielle est étroite). Au contraire quand $\gamma \to 0$ ($\varepsilon \to 1$), il y a bien plus de maxima que de passages par 0 donc le signal est irrégulier (la bande fréquentielle est large).

La probabilité des maxima du signal de niveau σ est donnée par la somme de deux contributions :

$$P(\sigma) = \frac{\varepsilon}{\sqrt{2\pi m_0}} \exp\left(-\frac{\sigma^2}{2\varepsilon^2 m_0}\right) + \gamma F\left(\frac{\gamma\sigma}{\varepsilon\sqrt{m_0}}\right)\frac{\sigma}{m_0}\exp\left(-\frac{\sigma^2}{2m_0}\right)$$

$$\text{avec } F(u) = \int_{-\infty}^{u} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{x^2}{2}\right) \mathrm{d}x$$

Le premier terme prédomine quand l'excitation est à large bande ($\varepsilon \to 1$) et donne une probabilité gaussienne des maxima du signal. Quand l'excitation est à bande étroite ($\gamma \to 1$), le second terme prédomine et la probabilité des maxima du signal est de type Rayleigh.

Le dommage élémentaire par unité de temps $\delta D(\sigma)$ dû aux maxima de niveau σ est donné par la loi de fatigue. Dans la suite, pour simplifier, une loi de Basquin classique de type $N\sigma^k = B$ et une règle de cumul linéaire sont utilisées, d'où

$$\delta D(\sigma) = \frac{\sigma^k}{B} \times f_M P(\sigma)$$

Le dommage cumulé par unité de temps pour tous les maxima s'écrit

$$D = \int_0^{+\infty} \delta D(\sigma)\mathrm{d}\sigma = \frac{f_M}{B}\int_0^{+\infty} \sigma^k P(\sigma)\mathrm{d}\sigma$$

L'intégration commence à $\sigma = 0$ car il est en général considéré que les maxima négatifs ne contribuent pas au dommage. L'expression précédente montre d'ailleurs que la contrainte moyenne σ_m n'est pas définie dans cette approche fréquentielle. Le résultat de l'intégration n'est pas analytique dans le cas général. Plusieurs méthodes existent pour approximer numériquement cette intégrale :

- l'approximation de bande étroite (Rayleigh) $\gamma = 1$. Dans ce cas le dommage a pour expression

$$D_{Rayleigh} = \frac{2^{k/2}}{2\pi B}\Gamma\left(1+\frac{k}{2}\right) m_0^{(k-1)/2}\sqrt{m_2}$$

- des corrections à l'approximation de Rayleigh, proposées pour des bandes fréquentielles plus larges : $D = \eta D_{Rayleigh}$ avec

$$\eta = a(k) + \big(1 - a(k)\big)(1-\varepsilon)^{b(k)} \text{ et } \begin{cases} a(k) = 0{,}926 - 0{,}033k \\ b(k) = -2{,}323 + 1{,}587k \end{cases}$$

ou encore

$$\eta = \frac{\delta^k}{\gamma} \text{ et } \delta = \sqrt{\frac{m_2 m_{2/k}}{m_0 m_{2+2/k}}}$$

- la méthode du « single moment », qui permet de calculer D avec le calcul d'un seul moment spectral sans utiliser l'approximation de Rayleigh :

$$D = \frac{2^{k/2}}{2\pi B}\Gamma\left(1+\frac{k}{2}\right)\left(m_{2/k}\right)^{k/2}$$

Enfin, le dommage cumulé sur une durée sollicitation ΔT vaut simplement $D_{\Delta T} = \Delta T \times D$.

Parmi les trois méthodes exposées ci-dessus, celle du single-moment est sans doute la plus prometteuse, tant du point de vue des prédictions que du point de vue du temps de calcul (un seul moment spectral à calculer).

Une autre méthode efficace a été développée par Dirlik [135] pour récupérer directement le nombre de cycles effectués à une amplitude $\Delta\sigma$ à partir d'une PSD :

$$N(\Delta\sigma) = \Delta T \times f_M P(\Delta\sigma)$$

où $P(\Delta\sigma)$ est déterminé par la formule suivante :

$$P(\Delta\sigma) = \frac{1}{2\sqrt{m_0}}\left(\frac{D_1}{Q}\exp\left(-\frac{Z}{Q}\right) + \frac{D_2 Z}{R^2}\exp\left(-\frac{Z^2}{2R^2}\right) + D_3 Z\exp\left(-\frac{Z^2}{2}\right)\right)$$

$$\text{avec } \begin{cases} Z = \dfrac{\Delta\sigma}{2\sqrt{m_0}} \\ D_1 = \dfrac{2(f_m - \gamma^2)}{1+\gamma^2} \\ R = \dfrac{\gamma - f_m - D_1^2}{1-\gamma-D_1+D_1^2} \\ D_2 = \dfrac{1-\gamma-D_1+D_1^2}{1-R} \\ D_3 = 1 - D_1 - D_2 \end{cases}$$

Enfin, les étapes finales consistent à discrétiser les niveaux de contrainte $\Delta\sigma$ et à cumuler linéairement les dommages élémentaires comme plus haut.

6.4 Résultats des essais de fatigue et proposition de loi de fatigue

La définition exacte de l'amorce de fissure varie selon les études : un critère possible pour décréter l'amorce d'une fissure est la détection d'une fissure supérieure à une certaine taille limite [112]. Dans le cas d'éprouvettes massiques où les contraintes maximales se situent à cœur, il peut être délicat de venir mesurer la taille des fissures qui se développeront en premier à cœur de l'éprouvette. Un autre critère consiste à suivre la rigidité de l'éprouvette au cours de l'essai de fatigue. L'amorce sera décrétée quand la rigidité aura diminué en-dessous d'un seuil limite [106], ou que son évolution temporelle s'éloigne d'une certaine loi (prenant en compte la relaxation visqueuse [49], par exemple). Ce seuil doit être

cohérent avec l'application finale du matériau (ou de la pièce) étudié. Dans le cas particulier de joints adhésifs utilisés pour des applications électroniques, le joint doit avoir :

- une rigidité strictement non-nulle pour supporter le composant électrique ;
- une conductivité électrique minimale afin d'alimenter le composant électronique quand nécessaire.

Or, il a été évoqué dans l'introduction du Chapitre 5 que la mesure de conduction électrique durant un essai reste constante, y compris après rupture totale du joint, tant que les deux surfaces de rupture sont maintenues en contact. La durée de vie du joint sera donc définie dans cette étude comme le nombre de cycles avant rupture totale du joint (noté N_{fin} sur la Figure 103). Ce choix implique que les deux phases d'amorce et de propagation sont en fait englobées dans la durée de vie du joint. Par conséquent, les résultats obtenus dépendront de la taille des joints testés puisque la phase de propagation sera plus ou moins longue en fonction de leurs dimensions. Il est donc nécessaire d'effectuer ces essais de fatigue avec une géométrie identique, et cohérente avec les dimensions de l'application industrielle. La section carrée de $5 \times 5\ \mathrm{mm}^2$ des assemblages collés testés en fatigue est apparue comme une géométrie pertinente, typique d'une puce électronique.

L'étude du comportement en fatigue des joints adhésifs a été effectuée avec la machine de traction BOSE ElectroForce 3330 series II (cf paragraphe 2.2.1 pour plus de précisions). Les paramètres expérimentaux ont été fixés comme suivant :

- La température est celle de la pièce d'essai (ambiante), variant donc de environ 20℃ à 25℃ selon les conditions extérieures. L'influence de la température du test de fatigue évoquée au paragraphe 6.2.2 n'a donc pu être testée dans cette thèse.
- Le niveau d'humidité n'a pas pu être imposé durant les tests, mais la climatisation de la pièce garde une humidité comprise entre 40 % et 50 % RH en permanence.
- Le contrôle de la machine est en force et non en déplacement. Les essais seront donc considérés à amplitude de contrainte de cisaillement $\Delta\tau$ constante, bien que cette hypothèse ne soit plus entièrement valide lors de la phase de propagation où la surface effective de matériau sain diminue, engendrant une augmentation de la contrainte effective à force imposée. Ce choix de pilotage en force a été effectué sur la base de la bibliographie présentée précédemment, qui montrait que les critères en contrainte (σ_1, Σ) seraient sans doute plus pertinents que les critères en déformation. Les autres grandeurs mécaniques du cycle « stabilisé » telles que l'amplitude de déformation $\Delta\gamma$, l'énergie élastique W ou l'énergie dissipée W_c sont calculées à mi-vie du joint. D'autre part, les essais ont été menés à sollicitation alternée ($R = -1$), c'est-à-dire à contrainte de cisaillement moyenne τ_m nulle.
- La pression hydrostatique p n'est pas contrôlable et est donc égale à la pression atmosphérique négligeable par rapport aux contraintes de cisaillement τ appliquées durant les essais. Il sera donc considéré que le chargement des joints consiste en du glissement simple sans pression hydrostatique ($p = 0$).
- Les vieillissements ont été réalisés à une température constante de 220℃ pendant quatre mois, soit à l'air libre (dans une étuve ventilée), soit confiné sous argon selon le dispositif expérimental

détaillé en Annexe A. Dans le premier cas, les joints peuvent potentiellement être oxydés par l'oxygène de l'air (vieillissement thermo-oxydatif) mais le dégazage des joints est évacuée par la ventilation donc n'interagit pas avec le joint. Dans le deuxième cas, les joints sont dans une enceinte étanche sous atmosphère inerte (argon) donc protégés de l'oxygène de l'air ; en revanche le dégazage des joints reste bloqué dans l'enceinte étanche et peut interagir avec les joints. En particulier, il est connu que le silicone dégaze de l'humidité en vieillissant et se dégrade progressivement au contact de l'humidité. Un joint silicone confiné peut donc être dégradé par l'humidité qu'il dégaze lui-même.

- La fréquence de test a été fixée à 10 Hz afin d'accélérer les tests. 10^7 cycles sont effectués en une douzaine de jours à cette fréquence. Les essais sur pièces polymères massiques sont habituellement menés à des fréquences inférieures pour limiter le phénomène d'auto-échauffement de la pièce dû à la dissipation d'énergie W_d, qui peut facilement atteindre une vingtaine de degrés [49]. Dans le cadre des joints adhésifs, le volume de polymère est bien moindre que pour une pièce massique grâce à sa faible épaisseur et à sa grande surface d'échange avec les substrats aluminium, très bon conducteur thermique qui permet d'évacuer facilement la chaleur émise par le joint. Les calculs analytiques et numériques en Annexe B montrent que l'élévation de température due à l'auto-échauffement reste de l'ordre de grandeur de 1°C à cette fréquence, pour une énergie dissipée par cycle égale au maximum mesuré sur les essais de fatigue. Des mesures par thermocouple à la surface libre du joint ont confirmé ce résultat.

6.4.1 Résultats des tests et identification d'une loi pour les joints adhésifs silicone

Les résultats obtenus dans cette thèse ont été tracés suivant les indicateurs listés dans la partie bibliographique de ce chapitre et définis comme suit :

- l'amplitude de déformation $\Delta\gamma = (\gamma_{max} - \gamma_{min})/2$;
- l'amplitude de contrainte $\Delta\tau = (\tau_{max} - \tau_{min})/2$;
- l'amplitude d'énergie élastique $\Delta W = W_{max} - W_{min}$;
- l'énergie dissipée par cycle W_d ;
- l'amplitude de contrainte configurationnelle $\Delta\Sigma = \Delta\sigma - \Delta W$;
- l'amplitude d'un indicateur optimisé $\Delta\Sigma_{opt} = \Delta\sigma + b_{opt}\Delta W$ où le coefficient b_{opt} a été ajusté vis-à-vis d'un modèle explicité dans le paragraphe suivant. Le coefficient b_{opt} a été introduit pour optimiser la combinaison linéaire que constitue initialement l'indicateur $\Delta\Sigma$, son interprétation physique n'est pas claire à ce stade.

Dans la suite de la discussion, les indicateurs sont séparés par commodité en deux classes distinctes :

Classe 1	Classe 2
$\Delta\gamma$, ΔW et W_d	$\Delta\tau$, $\Delta\Sigma$ et $\Delta\Sigma_{opt}$

Les graphes qui suivent montrent les résultats obtenus pour le joint silicone. Les essais ont été arrêtés après $N = 10^7$ cycles et les échantillons encore intacts à cet instant-là ont été déclarés « survivants ». Les données affichées sont celles de 12 joints neufs (en bleu sur les graphes) et de 9 joints vieillis à l'air libre (en rouge sur les graphes). En effet, les 14 joints vieillis sous argon confiné ont tous cassé à l'interface joint-substrat avant même les lancements des tests de fatigue cycliques. La dégradation de l'interface due au vieillissement appliqué était trop forte pour conserver l'intégrité de ces joints. Une étude avec des temps de vieillissement plus courts permettraient de caractériser plus finement la vitesse de dégradation de ces joints sous atmosphère confinée.

La Figure 113 montre les résultats des essais de fatigue selon les indicateurs $\Delta\tau$ et $\Delta\gamma$. La Figure 114 utilise les indicateurs énergétiques ΔW et W_d et la Figure 115 illustre les indicateurs $\Delta\Sigma$ et $\Delta\Sigma_{opt}$.

Les tests cycliques ayant été pilotés à amplitude de force (donc de contrainte) constante, une dispersion réduite de la classe 2 vis-à-vis de la classe 1 est attendue. Or, concernant les joints neufs (illustrés par les marqueurs bleus sur les graphes), les résultats tracés selon les indicateurs de classe 2 présentent une dispersion plus élevée que ceux tracés selon les indicateurs de classe 1. Ce constat n'est pas expliqué à ce stade. Par ailleurs, la comparaison sur la Figure 113 (a) et (b) des résultats neufs (en bleu) et vieilli (en rouge) en fonction de $\Delta\tau$ et $\Delta\gamma$ permet de souligner la rigidification du matériau après vieillissement puisque les amplitudes de contrainte $\Delta\tau$ choisies pour les tests des joints vieillis sont dans l'ensemble plus élevées que celles des joints neufs alors que les amplitudes de déformation $\Delta\gamma$ mesurées pour les joints vieillis sont plus faibles que celles obtenues pour les joints neufs.

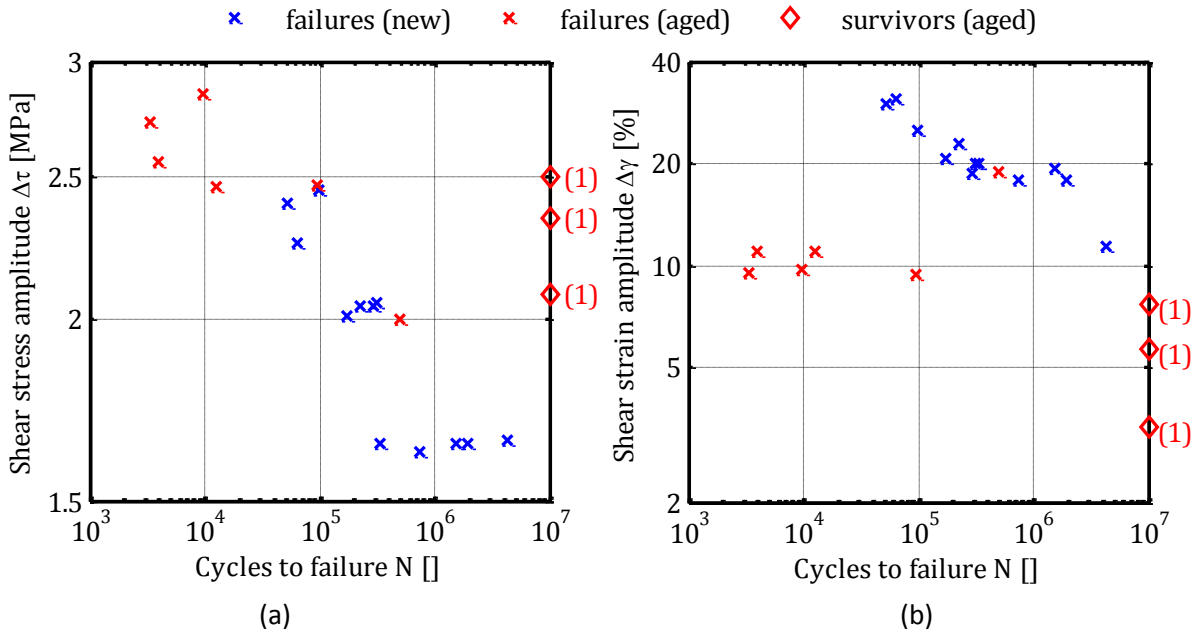


Figure 113 : résultats de fatigue du joint silicone neuf et vieilli à l'air libre vis-à-vis de l'amplitude de contrainte $\Delta\tau$ (a) et de déformation $\Delta\gamma$ (b)

De plus, les ruptures des joints vieillis obtenues sur la Figure 113 (b) sont situées à des amplitudes de déformation $\Delta\gamma$ plus faibles que celles mesurées pour les joints neufs, ce qui est cohérent avec les résultats de [129] exposés dans le paragraphe 6.2.2.

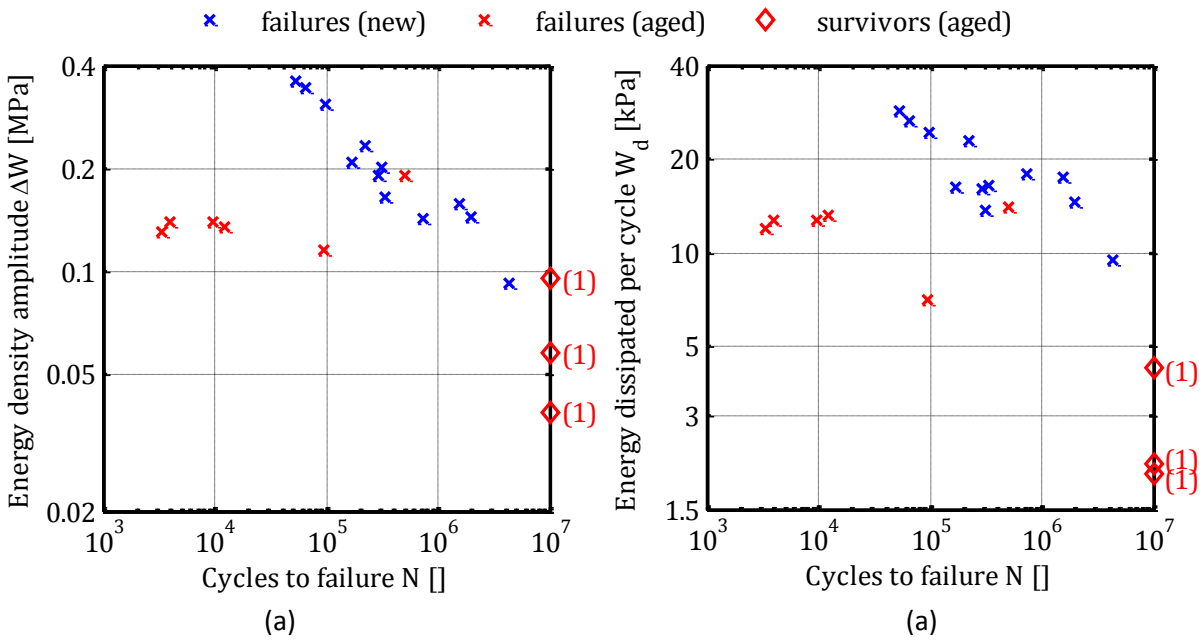


Figure 114 : résultats de fatigue du joint silicone neuf et vieilli à l'air libre vis-à-vis de l'amplitude d'énergie élastique ΔW (a) et de l'énergie dissipée par cycle W_d (b)

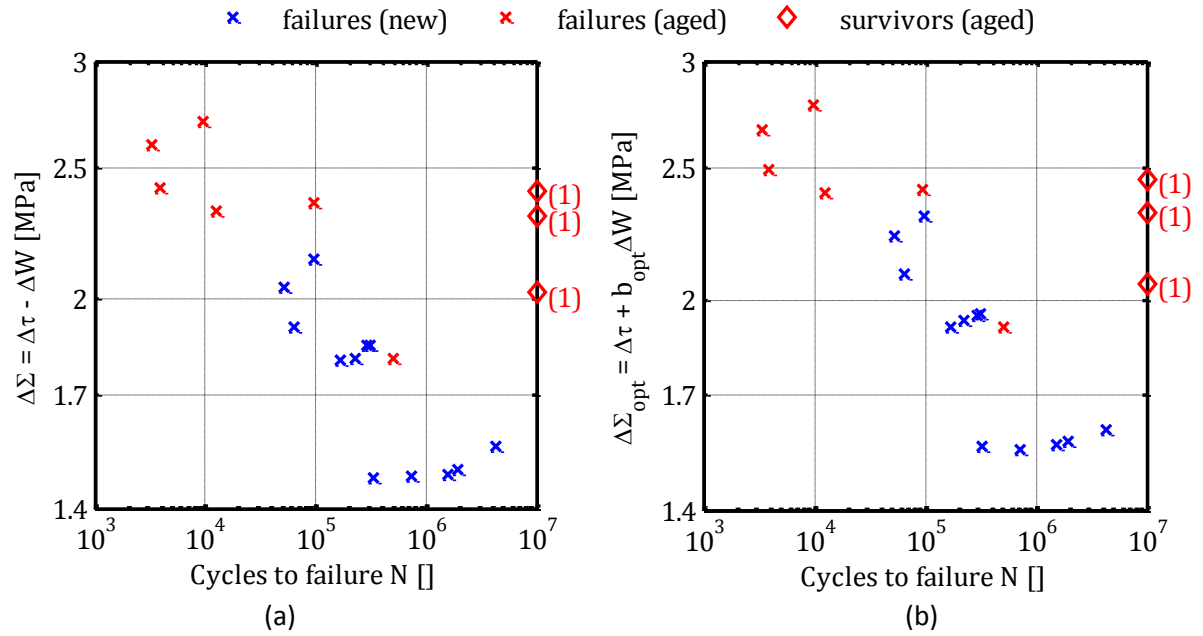


Figure 115 : résultats de fatigue du joint silicone neuf et vieilli à l'air libre vis-à-vis de l'amplitude de contrainte configurationnelle $\Delta\Sigma$ (a) et de $\Delta\Sigma_{opt}$ (b)

Pour les résultats des joints vieillis, il est clair que les indicateurs de classe 1 (Figure 113 (b), Figure 114 (a) et (b)) permettent d'expliquer la présence des trois survivants obtenus en tant que valeurs minimales mesurées pour ces indicateurs (joints neufs et vieillis confondus). En revanche, la dispersion des ruptures des joints vieillis sur ces indicateurs de classe 1 ne permet pas réellement d'imaginer une courbe de Wöhler sur ces résultats, à moins de la tracer horizontale (c'est-à-dire de définir un seuil). Il devient donc difficile de quantifier la variation de la courbe de Wöhler avec le vieillissement du joint pour les

indicateurs de cette classe. Au contraire, sur les graphes des indicateurs de classe 2, les ruptures des joints neufs comme des joints vieillis semblent se situer graphiquement sur une même courbe de Wöhler. L'alignement des ruptures de joints neufs et vieillis est encore légèrement amélioré en utilisant l'indicateur $\Delta\Sigma$ (Figure 115 (a)) plutôt que l'amplitude de contrainte $\Delta\tau$ (Figure 113 (a)).

Seuls les survivants ne sont pas bien expliqués par les indicateurs de classe 2 car ils sont obtenus pour des valeurs bien supérieures à celles de certaines ruptures. Les courbes d'évolution de la rigidité du joint $|G^*|$ et de son angle de perte δ durant l'essai de fatigue permettent en revanche de bien différencier un joint qui présente une rupture à la fin de l'essai d'un joint survivant. Ces courbes ont été obtenues par transformée de Fourier des signaux de force et déplacement de la machine de traction en utilisant les abaques de la Figure 39 du Chapitre 2. La transformée de Fourier permet de filtrer les signaux obtenus pour en garder uniquement la composante à la fréquence du test, donc de s'affranchir des éventuelles non-linéarités du matériau qui feraient dévier la réponse d'une sinusoïde pure. Néanmoins, il faut bien garder à l'esprit que le comportement peut être non-linéaire. La notation $|G^*|$ provenant de la viscoélasticité linéaire - potentiellement abusive en grandes transformations - sera gardée par commodité. La grandeur mesurée ici est, quoi qu'il en soit, une fonction monotone croissante de la rigidité du joint. Elle permet donc de visualiser son éventuel assouplissement durant l'essai de fatigue.

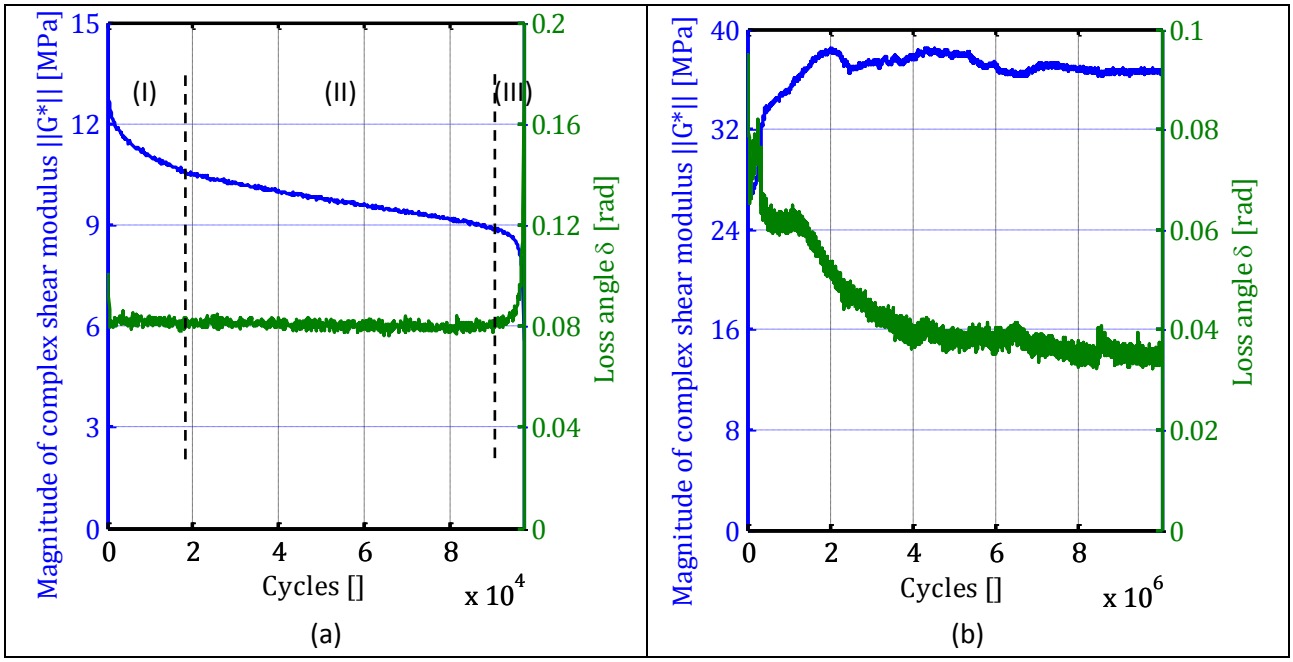


Figure 116 : évolution de la rigidité et de l'angle de perte d'un joint lors d'un essai débouchant sur une rupture (a) ou un survivant (b)

La Figure 116 (a) et (b) montre l'évolution de la rigidité et de l'angle de perte d'un joint suivant que l'essai de fatigue aboutisse à une rupture ou non. Dans le cas de la rupture (Figure 116 (a)), trois régimes (notés I, II et III sur la figure) de comportement du joint sont clairement distingués de manière analogue aux essais thermomécaniques étudiés par Skelton dont le modèle est rappelé Figure 103 :

- un premier régime où la rigidité baisse rapidement, le déphasage δ étant constant :
- un deuxième régime où la décroissance est linéaire stable, δ toujours constant ;

- un troisième régime où la rigidité baisse à nouveau de manière catastrophique pour atteindre 0, pendant que l'angle de perte δ augmente. Ce régime correspond sans doute à la phase de propagation de fissure. Il est d'ailleurs visible ici que cette phase est assez courte comparée à la phase d'amorce.

Dans le cas d'un joint survivant (Figure 116 (b)), après une phase d'adaptation assez longue en terme de nombre de cycles, la rigidité n'évolue plus de manière significative et l'angle de perte est également stabilisé (à une valeur plus faible que celle de la Figure 116 (a)). Les trois régimes de l'analyse de Skelton ne sont plus aussi clairement identifiables que lors d'un essai conduisant à une rupture.

Cette différence marquée entre les deux comportements permet de conclure que l'endommagement par fatigue du matériau peut être identifié par le suivi de la rigidité du joint pendant l'essai, ou par la valeur (stabilisée) de son angle de perte. En revanche, un essai de fatigue couplé à un vieillissement ne permettrait pas de conclure car l'assouplissement éventuel du matériau dû à l'endommagement serait compensé par sa rigidification due au vieillissement. L'angle de perte (donc l'énergie dissipée) ne souffre pas de ce défaut, comme les Figure 116 et Figure 114 (b) le montrent.

Etant donné les différents éléments relevés suite à l'analyse des résultats, une loi de fatigue combinant deux indicateurs de deux classes différentes est donc recherchée avec les caractéristiques suivantes :

- une loi de Basquin sur un indicateur de classe 2 ;
- sous réserve qu'un indicateur de classe 1 soit supérieur à un certain seuil défini.

L'amélioration apportée par $\Delta\Sigma$ vis-à-vis de $\Delta\tau$ encourage à introduire le paramètre b_{opt} présenté ci-dessus pour définir l'indicateur $\Delta\Sigma_{opt} = \Delta\sigma + b_{opt}\Delta W$. Le coefficient b_{opt} est simplement déterminé par une régression linéaire (méthode des moindres carrés) minimisant la dispersion des ruptures vis-à-vis d'une loi de Basquin. La loi de fatigue proposée s'écrit finalement :

$$N\left(\frac{\sigma_{eq}}{\sigma_0}\right)^k = 1 \quad \text{avec} \quad \sigma_{eq} = \begin{cases} \Delta\Sigma_{opt} = \langle \Delta\tau + b_{opt}\Delta W \rangle & \text{si} \quad W_d > W_s \\ 0 \quad \text{si} \quad W_d \leq W_s \end{cases}$$

La Figure 117 (a) et (b) ci-dessous montre l'identification graphique des coefficients $\sigma_0 = 6{,}86\ \text{MPa}$, $k = 9{,}65$, $W_s = 5{,}0\ \text{kPa}$, et $b_{opt} = -0{,}47$. La dispersion des résultats vis-à-vis des prédictions de la loi proposée est illustrée Figure 117 (c). Les prédictions sont cohérentes avec les résultats expérimentaux à un facteur 5 près. Ce facteur n'est pas négligeable et peut s'expliquer de plusieurs manières :

- Il est illusoire d'espérer une dispersion faible avec une loi de formulation aussi simple et 4 décades d'identification (de 10^3 cycles à 10^7 cycles).
- D'une manière générale, la dispersion augmente avec le nombre de cycles à rupture. Ce phénomène est d'ailleurs observable pour les joint adhésifs silicone neufs (en bleu sur les figures de résultats). Or, les essais de fatigue sur matériaux polymères classiques s'arrêtent souvent à 10^6 cycles. En effet, l'auto-échauffement des pièces massiques oblige à limiter la fréquence de test, habituellement fixée aux alentours de 2 à 3 Hz. Augmenter la borne supérieure à 10^7 au lieu de 10^6 renforce donc la dispersion au moins aux grands nombres de cycles.

- Comme évoqué dans le Chapitre 5 précédent, les deux mécanismes de ruptures (cohésif et adhésif) sont présents pour les joints silicone (neufs comme vieillis) et non un seul. Cette double possibilité de propagation de fissure augmente forcément la dispersion finale sur les résultats en fonction du mécanisme prédominant pour chacun des joints.

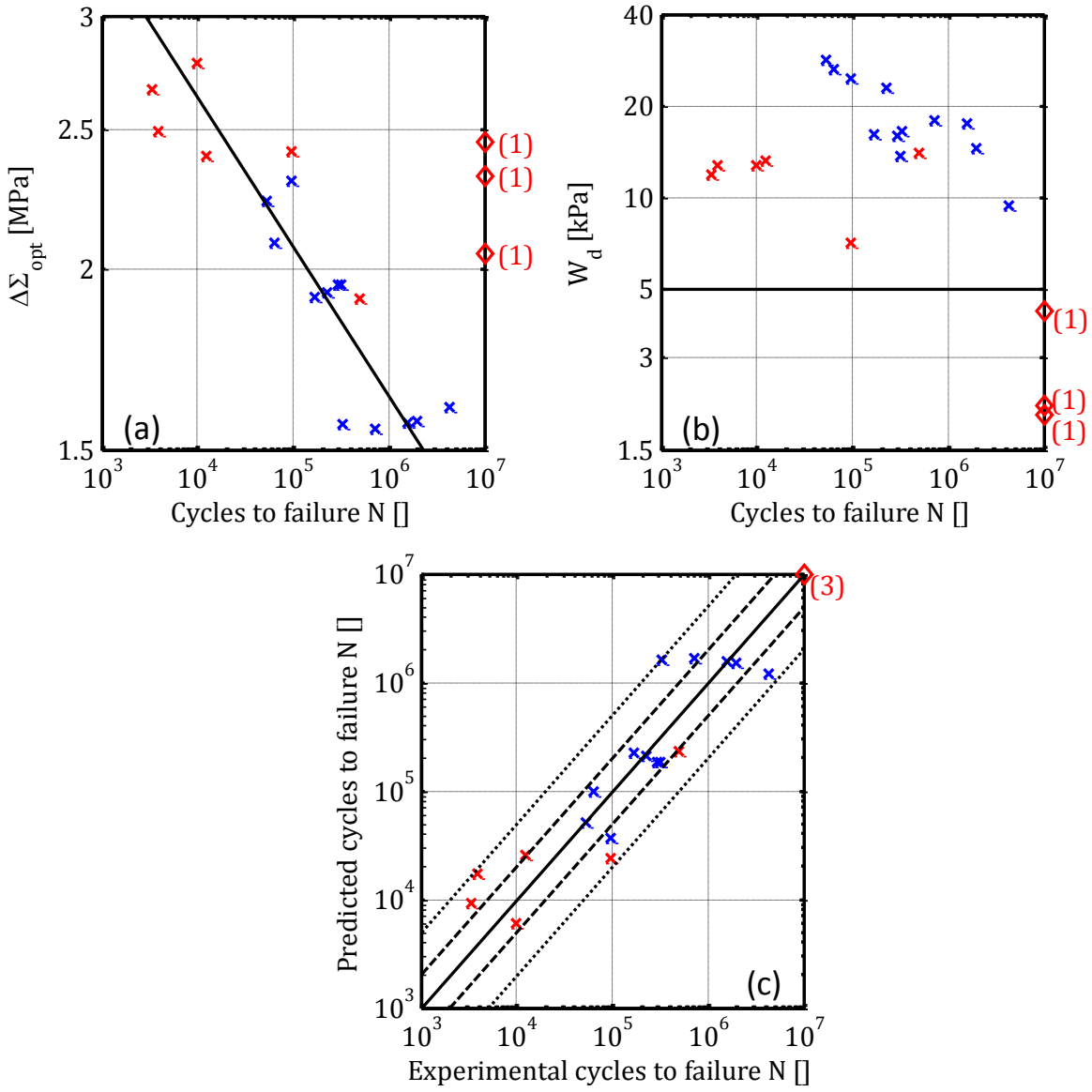


Figure 117 : loi de fatigue pour le joint silicone neuf et vieilli à l'air libre combinant les indicateurs $\Delta\Sigma_{opt}$ (a) et W_d (b) ; (c) tracé de la durée de vie prédite contre la durée de vie mesurée

Néanmoins, l'identification reste raisonnablement satisfaisante étant donné le nombre relativement faible d'assemblages collés (12 joints neufs et 9 joints vieillis).

L'obtention d'un critère identique pour des joints neufs et des joints vieillis à l'air libre implique que le vieillissement à l'air libre n'a pas d'impact sur la prédiction de la durée de vie de ces joints silicone, bien qu'il en ait un assez fort sur le comportement puisque le joint vieilli est environ quatre fois plus rigide que le joint neuf (cf Figure 116). Là encore, il faut rappeler que les mécanismes de rupture constatés par

observations MEB et présentés au Chapitre 5 sont les mêmes pour les joints neufs et vieillis, et caractérisent davantage la tenue de l'interface joint-substrat que le joint lui-même.

Cette loi a été identifiée uniquement sur des essais de cisaillement alterné $\Delta\tau$. L'influence de la contrainte moyenne τ_m et de la pression hydrostatique p n'a donc pu être étudiée. Sur la base de la littérature qui suggère que les contraintes de compression n'endommagent pas le matériau, sachant que la contrainte principale maximale d'un joint sous cisaillement $\tau = \tau_m + \Delta\tau$ et pression hydrostatique p vaut $\sigma_1 = |\Delta\tau| + (|\tau_m| - p)$, cette influence est modélisée en introduisant un terme supplémentaire simple dans la définition de l'indicateur de fatigue :

$$\sigma_{eq} = \begin{cases} \langle \Delta\tau + c(|\tau_m| - p) + b_{opt}\Delta W \rangle & \text{si} \quad W_d > W_s \\ 0 \text{ si} \quad W_d \leq W_s \end{cases}$$

avec un paramètre c à identifier. Un ordre de grandeur de la valeur de ce paramètre peut être obtenu en remarquant qu'un essai de fatigue de torsion simple $(0, \theta)$ d'une éprouvette en caoutchouc naturel dure deux fois plus longtemps qu'un essai de torsion alternée $(-\theta, \theta)$ d'après [49] et [89]. Cette remarque peut être transposée aux joints adhésifs en écrivant

$$N_{(0,\tau)} = 2N_{(-\tau,\tau)}$$

soit en supposant que $\Delta W \sim (\Delta\tau)^2$

$$\langle \frac{\Delta\tau}{2} + c\frac{\Delta\tau}{2} + b_{opt}\frac{\Delta W}{4} \rangle^{-k} = 2\langle \Delta\tau + b_{opt}\Delta W \rangle^{-k}$$

d'où en négligeant ΔW :

$$c \sim 2^{1-1/k} - 1 = 0{,}861 \quad \text{pour} \quad k = 9{,}65$$

Cette valeur doit être confrontée à des essais expérimentaux pour validation. En particulier, le fait que $|\tau_m|$ et $-p$ jouent le même rôle dans la tenue en fatigue doit être validé expérimentalement. Dans le cas contraire, deux coefficients différents peuvent être introduits dans le terme supplémentaire :

$$\sigma_{eq} = \begin{cases} \langle \Delta\tau + c_1|\tau_m| + c_2 p + b_{opt}\Delta W \rangle & \text{si} \quad W_d > W_s \\ 0 \text{ si} \quad W_d \leq W_s \end{cases}$$

6.4.2 Résultats des tests et identification d'une loi pour les joints adhésifs polyimides

L'étude de la tenue en fatigue des joints polyimide a été menée de manière identique à celle des joints silicone, les mêmes indicateurs de fatigue ont donc été investigués. La Figure 118 montre les résultats de fatigue obtenus tracés en fonction de $\Delta\tau$ et $\Delta\gamma$. La Figure 120 présente les résultats vis-à-vis des indicateurs énergétiques ΔW et W_d, et la Figure 121 (a) montre les résultats pour l'indicateur $\Delta\Sigma = \Delta\tau - \Delta W$.

Douze joints polyimide vieillis à l'air libre sur les 17 testés ont cassé lors de leur montage dans le set-up de test de cisaillement dans la machine de traction, soit $70\,\%$ de ruptures avant même le début des

tests. Pour ces joints, il est attribué une contrainte $\Delta\tau$ correspondant au poids d'un des mors-adaptateurs en acier du set-up (cf paragraphe 2.2.1 ci-dessus) valant donc $0{,}18$ MPa. Ces joints sont donc représentés par la croix rouge de la Figure 118 (a) au niveau $0{,}18$ MPa pour $N_f = 1$. Il est difficile d'attribuer une quelconque valeur aux autres indicateurs pour ces joints rompus avant le début de l'essai puisqu'aucune déformation $\Delta\gamma$ n'a pu être mesurée. Il sera considéré que la tenue à la fatigue de ces joints vieillis à l'air libre est statistiquement nulle. Les cinq joints qui ont tenu lors de leur montage et ont donc pu être testés sont tout de même illustrés en rouge sur les différentes figures de résultats pour information. Ici, des durées de vieillissements à l'air libre plus courtes auraient permis une meilleure évaluation de l'évolution de la tenue en fatigue.

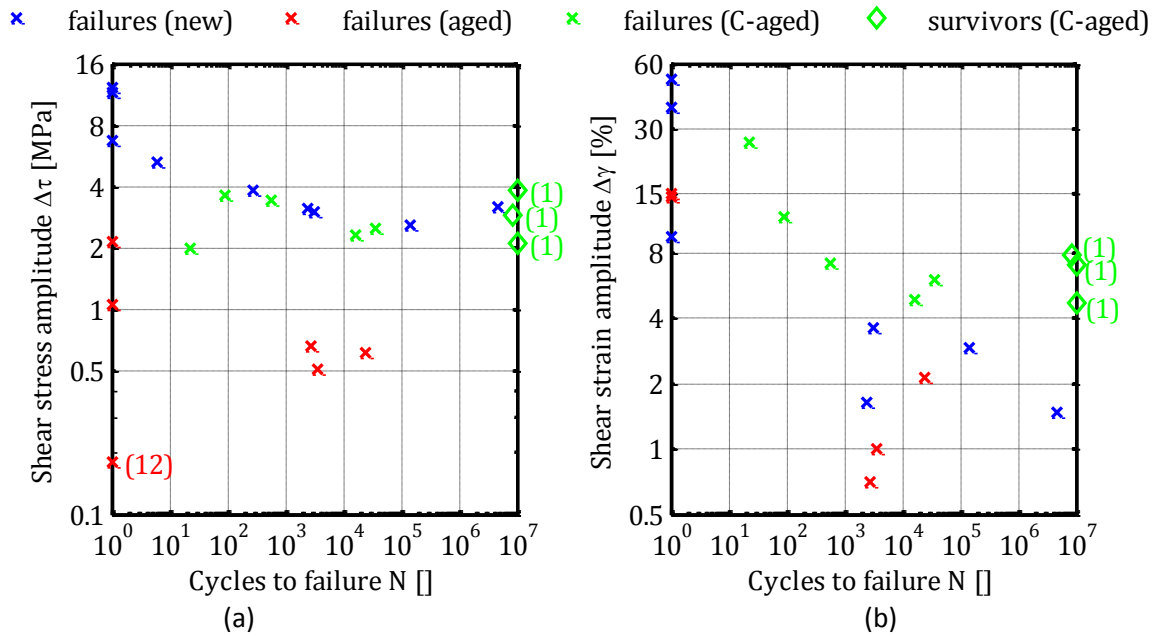


Figure 118 : résultats de fatigue du joint polyimide neuf (new), vieilli à l'air libre (aged) et vieilli en atmosphère inerte confinée (C-aged) vis-à-vis de l'amplitude de contrainte $\Delta\sigma$ (a) et de déformation $\Delta\gamma$ (b)

Plusieurs joints ont cassé lors de la première montée du premier cycle, soit par volonté (test monotone), soit à cause d'une franche surestimation de leur durée de vie. Pour ces joints, l'énergie dissipée par cycle n'a pas pu être calculée sachant que le cycle n'était pas complet. Pour les autres indicateurs, il a été attribué à ces joints la durée de vie $N_f = 1$.

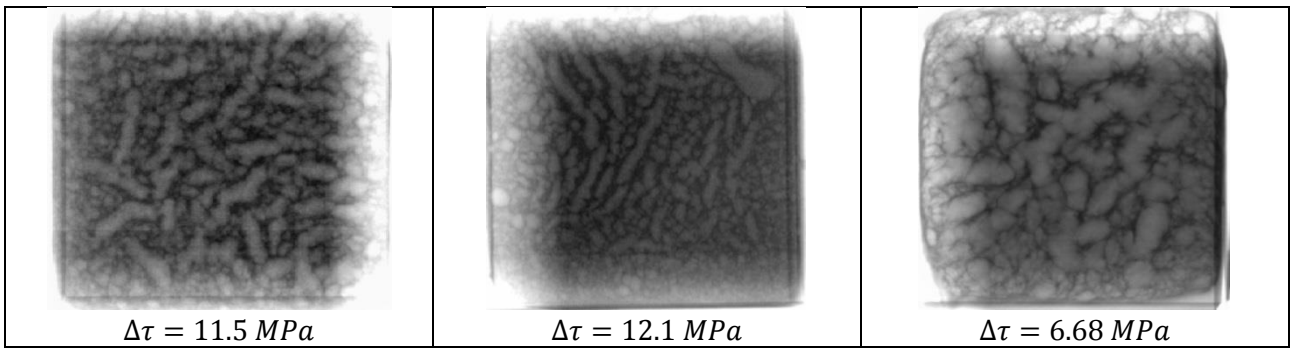


Figure 119 : Cliché au rayons X après polymérisation des joints testés en cisaillement monotone et valeur de la contrainte à rupture. La contrainte à rupture est plus faible quand les cavités initiales sont plus grosses.

Les trois joints neufs testés en cisaillement monotone ($N_f = 1$) ont cassé à des valeurs de contrainte relativement différentes : 12,1 MPa, 11,5 MPa et 6,68 MPa. Les deux valeurs les plus hautes ont été obtenues avec des joints contenant des cavités particulièrement plus petites que tous les autres joints, comme illustré Figure 119.

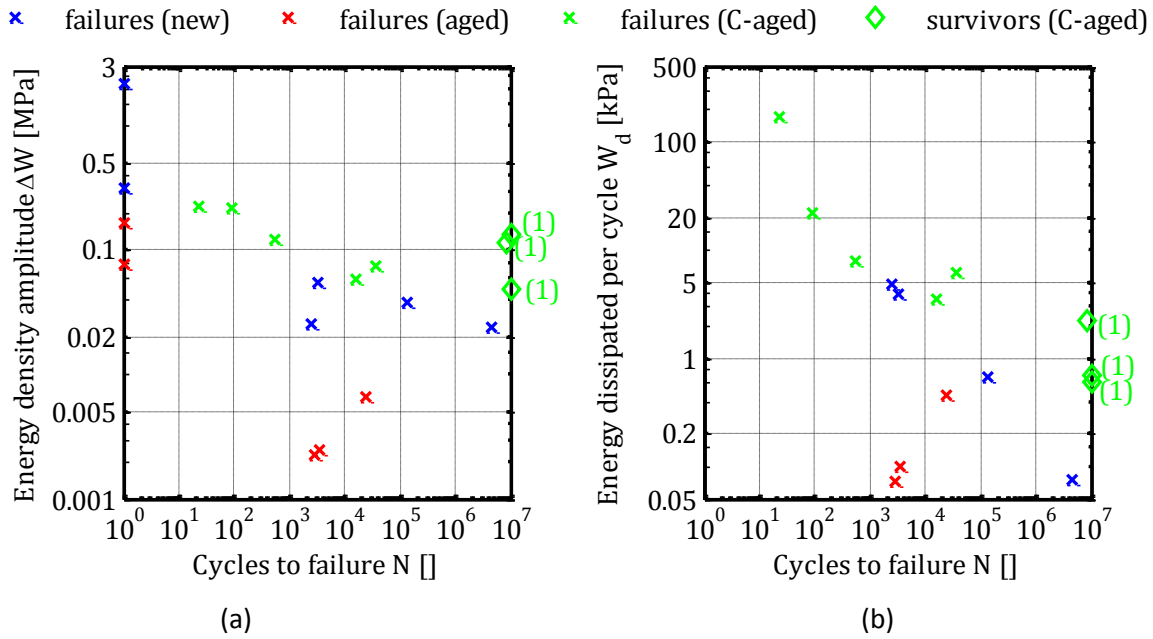


Figure 120 : résultats de fatigue du joint polyimide neuf (new), vieilli à l'air libre (aged) et vieilli en atmosphère inerte confinée (C-aged) vis-à-vis de l'amplitude d'énergie élastique ΔW (a) et de l'énergie dissipée par cycle W_d (b)

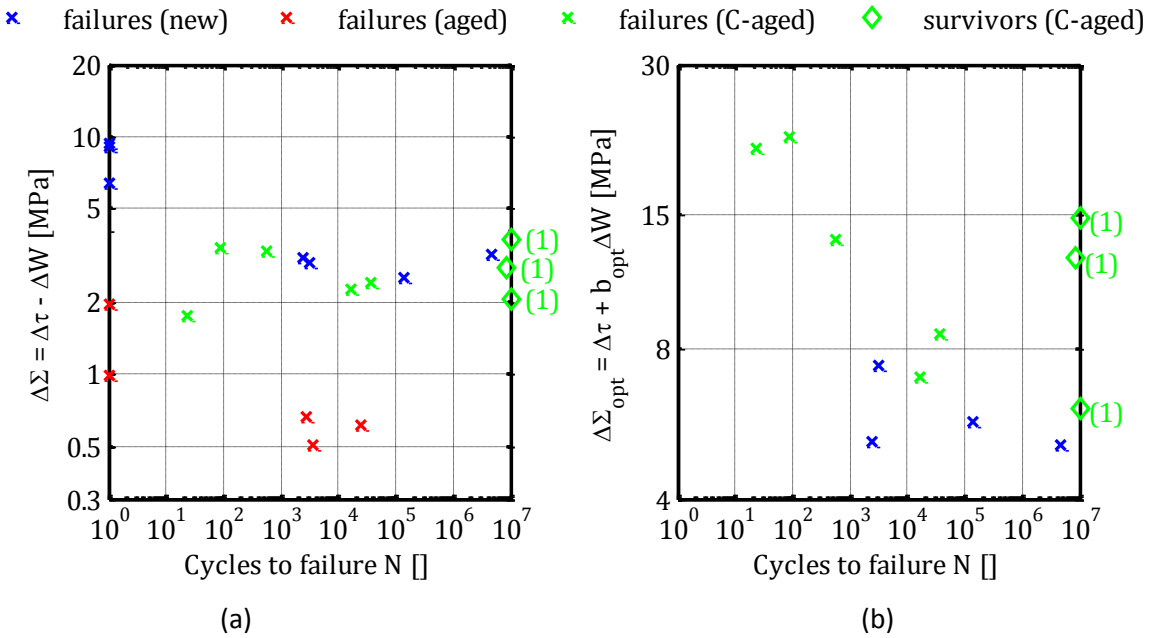


Figure 121 : résultats de fatigue du joint polyimide neuf (new), vieilli à l'air libre (aged) et vieilli en atmosphère inerte confinée (C-aged) vis-à-vis de l'amplitude de contrainte configurationnelle $\Delta\Sigma$ (a) et de $\Delta\Sigma_{opt}$ (b)

Deux autres joints neufs ont cassé après respectivement $N = 6$ et $N = 280$ cycles de chargement (cf Figure 118 (a)). Pour ces deux joints, l'amplitude de contrainte $\Delta\tau$ était constante puisque les essais sont

pilotés en force, mais les autres indicateurs n'ont pas eu le temps de stabiliser si bien qu'aucune valeur fiable n'a pu être extraite pour ces deux essais. Pour ces autres indicateurs, il n'y a donc au final que quatre résultats de joints neufs avec $N_f > 1$.

Concernant les joints polyimides neufs (en bleu sur les graphes de résultats) et vieillis sous argon confiné (en vert sur les graphes), la comparaison de la Figure 118 (a) et (b) permet de noter que le vieillissement a assoupli les joints, puisque les amplitudes de déformation $\Delta\gamma$ des ruptures de joints vieillis sont plus grandes que celles des joints neufs, alors que les amplitudes de contrainte $\Delta\tau$ sont du même ordre de grandeur. L'évolution du comportement de ces joints polyimide sous atmosphère inerte confinée est donc contraire à celle des joints silicone à l'air libre, qui présentent une rigidification. En conséquence les quantités énergétiques calculées ΔW et W_d (proportionnelles au produit $\Delta\gamma \times \Delta\tau$) sont plus élevées pour les joints vieillis que pour les joints neufs. Il n'est cependant pas évident à ce stade que cet assouplissement soit forcément le témoin d'un endommagement du joint.

Les indicateurs de fatigue exposés dans la Figure 118, la Figure 120 et la Figure 121 montrent tous une dispersion très élevée comparé aux résultats des joints silicone exposés dans le paragraphe 6.4.1 précédent. Cette dispersion élevée est attribuée aux cavités initialement présentes dans les joints neufs après polymérisation. En effet, ces cavités et leur répartition peuvent accélérer plus ou moins la propagation de la fissure par affaiblissement d'une zone locale du joint.

Sur la base des choix effectués pour modéliser la fatigue des joints silicone, l'indicateur $\Delta\Sigma_{opt} = \Delta\tau + b_{opt}\Delta W$ a été investigué en ajustant la valeur du paramètre b_{opt}, de sorte que les ruptures des joints neufs et celles des joints vieillis en atmosphère inerte confinée présentent une dispersion minimale. Par ailleurs, le seul indicateur justifiants les survivants parmi les joints vieillis du fait de valeurs plus faibles que celles obtenues pour les ruptures est l'énergie dissipée par cycle W_d.

La loi de fatigue initialement proposée, basée sur celle obtenue pour les joints silicone, s'écrit :

$$N\left(\frac{\sigma_{eq}}{\sigma_0}\right)^k = 1 \quad \text{avec} \quad \sigma_{eq} = \begin{cases} \Delta\Sigma_{opt} = \langle \Delta\tau + b_{opt}\Delta W \rangle & \text{si} \quad W_d > W_s \\ 0 \text{ si} \quad W_d \leq W_s \end{cases}$$

$$\text{et} \quad W_s = W_s(t_a, T_a) = W_{s0} + \Delta W_s \exp\left(-\frac{t_a}{\lambda_a(T_a)}\right) \quad \text{avec} \quad \lambda_a = \left(a_a e^{-E_a/RT_a}\right)^{-1}$$

Une méthode pour déterminer l'énergie d'activation E_a est présentée dans l'Annexe C, basée sur la cinétique perte de masse.

La Figure 122 (a) et (b) illustre cette loi sur les résultats obtenus, avec l'indentification suivante pour les paramètres : $k = 5{,}62$, $\sigma_0 = 41{,}6\ \text{MPa}$, $W_{s0} = 0{,}05\ \text{kPa} \sim 0\ \text{kPa}$ et $\Delta W_s = 2{,}6\ \text{kPa}$ (avec l'hypothèse $t_a = 4\ \text{mois} \gg \lambda_a$). Le paramètre b_{opt} vaut ici $81{,}3$, ce qui indique la part prédominante de l'énergie élastique ΔW dans la définition de l'indicateur $\Delta\Sigma_{opt}$. La Figure 122 (c) montre les difficultés de ce modèle à prédire raisonnablement les bonnes durées de vie des joints, à cause de la grande dispersion des données.

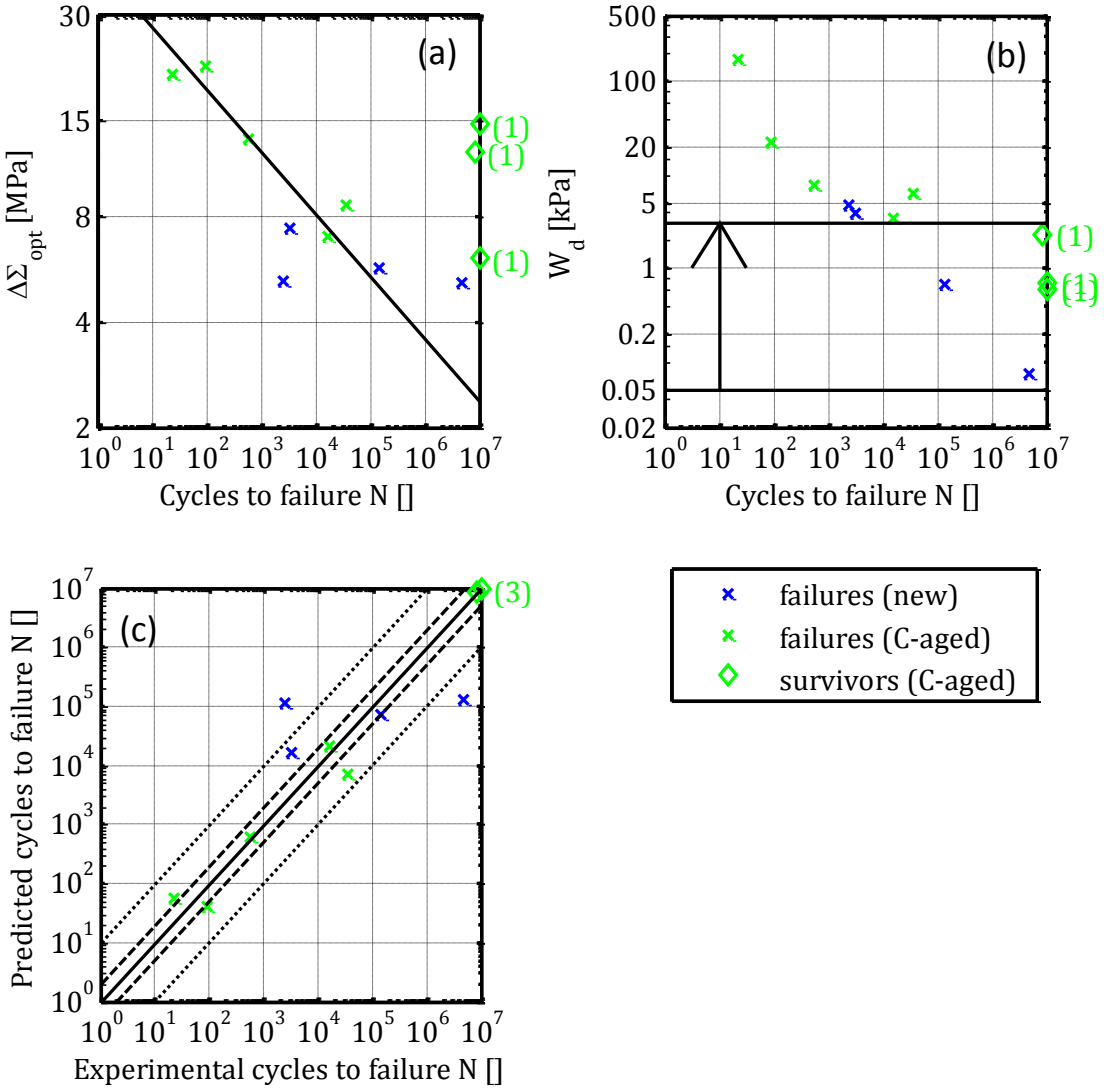


Figure 122 : loi de fatigue pour le joint polyimide neuf et vieilli sous atmosphère inerte confinée combinant les indicateurs $\Delta\Sigma_{opt}$ (a) et W_d (b) ; (c) tracé de la durée de vie prédite contre la durée de vie mesurée

Deux constats peuvent néanmoins être faits : d'une part, l'indicateur $\Delta\Sigma_{opt}$ utilisé ici est principalement dépendant de l'amplitude de densité d'énergie ΔW. D'autre part, l'indicateur présentant la dispersion la plus faible est l'énergie dissipée par cycle W_d. Les grandeurs énergétiques semblent donc jouer un rôle encore plus important pour les joints polyimide que pour les joints silicone. Partant de ces considérations, une deuxième loi de fatigue est maintenant proposée, uniquement basée sur l'indicateur W_d :

$$N\left(\frac{W_{eq}}{W_0}\right)^k = 1 \quad \text{avec} \quad W_{eq} = \langle W_d - W_s(t_a, T_a)\rangle$$

$$\text{et} \quad W_s(t_a, T_a) = W_{s0} + \Delta W_s \exp\left(-\frac{t_a}{\lambda_a(T_a)}\right) \quad \text{avec} \quad \lambda_a = \left(a_a e^{-E_a/RT_a}\right)^{-1}$$

La Figure 123 (a) montre l'identification du modèle avec les paramètres $k = 1{,}67$, $W_0 = 748$ kPa. Les paramètres W_{s0} et ΔW_s restent inchangés par rapport à la loi précédente basée sur $\Delta\Sigma_{opt}$.

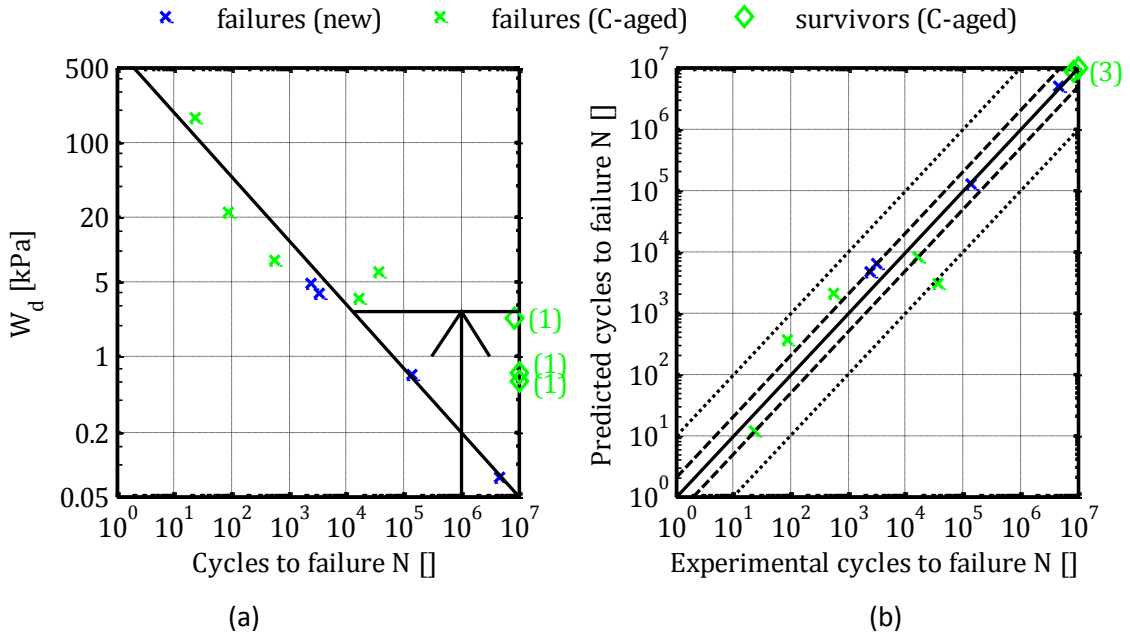


Figure 123 : loi de fatigue pour le joint polyimide neuf et vieilli sous atmosphère inerte confinée basée uniquement sur l'indicateur W_d (a) ; (b) tracé de la durée de vie prédite contre la durée de vie mesurée

La Figure 123 (b) montre l'amélioration sensible de la capacité à prédire la durée de vie expérimentalement obtenue par l'introduction de cette nouvelle loi, par comparaison à la Figure 122 (c).

La discussion de la prise en compte de τ_m et p dans la prédiction de la durée de vie est identique à celle du paragraphe précédent pour le joint silicone : l'indicateur peut être modifié avec l'introduction d'un terme supplémentaire [136] nécessitant l'identification d'un paramètre c tel que

$$W_{eq} = \langle W_d + c(|\tau_m| - p) - W_s(t_a, T_a) \rangle$$

ou deux paramètres c_1 et c_2 tels que

$$W_{eq} = \langle W_d + c_1|\tau_m| + c_2 p - W_s(t_a, T_a) \rangle$$

6.5 Conclusion

Dans ce chapitre, la tenue en fatigue des joints adhésifs silicone et polyimide à état neuf et état vieilli a été évaluée. Le but initial est d'appréhender l'influence du type de vieillissement (atmosphère et confinement) sur cette tenue en fatigue. Deux vieillissements différant par leur atmosphère et leur confinement ont été choisis suivant les applications industrielles visées par Schlumberger :

- un vieillissement à l'air libre ventilé (non confiné) ;
- un vieillissement sous atmosphère inerte (argon) confinée.

Leur température et leur durée sont identiques afin de véritablement caractériser les variations du comportement en fatigue dues à l'atmosphère et au confinement.

Les résultats obtenus prouvent une influence drastique du type de vieillissement :

- Les joints silicone montrent une tenue en fatigue similaire à l'état neuf et à l'état vieilli à l'air libre. La loi de fatigue identifiée, basée sur les indicateurs utilisés dans la littérature, est identique dans la formulation et les valeurs des paramètres pour les neufs et vieillis. Elle implique que la tenue en fatigue de ces joints n'évolue pas pendant ce vieillissement bien que son comportement change puisqu'on observe une rigidification du joint. En revanche, le vieillissement confiné sous atmosphère inerte engendre une dégradation catastrophique des joints, au point que le joint ne transmet plus aucune force significative (les joints se cassent pendant leur montage dans le set-up de test de fatigue en traction utilisé). Ici le confinement plus que l'atmosphère est mis en cause pour cette dégradation drastique, puisque l'humidité dégazée naturellement par le silicone peut ensuite le dégrader si le confinement empêche de l'évacuer.
- A l'opposé, les joints polyimide montrent une dégradation prononcée après vieillissement à l'air libre : $70\ \%$ des joints vieillis de cette manière ont cassé pendant leur montage dans le set-up de test quand les joints soumis au vieillissement confiné ont montré une tenue en fatigue globalement comparable aux joints neufs, bien que leur rigidité ait en moyenne diminué après le vieillissement. Deux lois de fatigue ont été proposées pour ces joints neufs et vieillis en atmosphère confinée : la première se base sur la formulation de la loi obtenue pour les joints silicone mais un des paramètres (le seuil d'énergie dissipée) évolue pendant le vieillissement. La deuxième proposition de loi fait intervenir uniquement l'énergie dissipée comme indicateur, en gardant le seuil variable avec le vieillissement, comme pour la première loi. L'influence du vieillissement confiné sur la tenue en fatigue des joints polyimide pourrait donc être résumée à la variation de ce paramètre seuil. Le faible nombre d'éprouvettes testées et la forte dispersion obtenue sur les résultats fait néanmoins relativiser la robustesse de ces conclusions. D'autres essais devraient être menés pour étoffer les courbes de fatigue obtenues et confirmer ou non la loi de fatigue proposée.

Pour les deux types de joints (silicone et polyimide), l'énergie dissipée par cycle joue un rôle important dans la prédiction de la durée de vie. Ceci illustre la nécessité d'une modélisation fine de la viscoélasticité des joints afin de pouvoir prédire de manière quantitative la valeur de l'angle de perte du matériau, auquel l'énergie dissipée par cycle est directement proportionnelle.

Dans cette étude, l'influence de plusieurs variables importantes pour la tenue en fatigue des joints adhésifs n'a pu être abordée :

- le rapport de charge (c'est-à-dire d'une contrainte de cisaillement moyenne τ_m) ;
- la pression hydrostatique ;
- la température.

La littérature permet de proposer des modèles simples pour prendre en compte ces variables. Les paramètres supplémentaires introduits nécessitent des campagnes d'essais supplémentaires pour être identifiés de manière fiable.

Enfin, le cumul de dommage sous chargement d'amplitude variable n'a pas été étudié expérimentalement pendant cette thèse. A l'heure actuelle, l'essentiel des méthodes existantes à ce propos dans la littérature proviennent des études sur matériaux métalliques, à l'exception notable d'un modèle initié par Wang et récemment développé par Ayoub sur la base de la mécanique de l'endommagement de Lemaitre et Caboche.

Conclusion générale

Ce travail de thèse a porté sur la prédiction de la durée de joints adhésifs utilisés dans des applications industrielles électroniques, et sur l'influence du vieillissement (en particulier l'atmosphère dans laquelle ce vieillissement est réalisé et éventuellement son confinement) sur cette prédiction. Les colles choisies pour cette étude sont deux colles commerciales utilisées par l'entreprise Schlumberger dans le cadre de sollicitations hautes pressions, et basses et (très) hautes températures. Leur comportement à température ambiante est radicalement différent car l'une est composée de silicone caoutchoutique et l'autre de polyimide vitreux. Deux paramètres de chargement des joints adhésifs ont été retenus dans cette étude : le cisaillement hors-plan et la pression hydrostatique par l'intermédiaire de la contrainte normale hors-plan du joint. Ce choix permet de modéliser le comportement du joint de manière unixiale en cisaillement, la compressibilité du joint étant le plus souvent négligée.

Un premier travail exposé au Chapitre 2 sur les méthodes de test des joints adhésifs en cisaillement a d'abord été effectué pour saisir toutes les subtilités et difficultés expérimentales lors de tests d'assemblages collés : chargement du joint non-homogène, état de triaxialité particulièrement élevé au regard d'un test de cisaillement, singularités de contrainte possibles aux interfaces avec le substrat. Ce travail principalement bibliographique a consisté à comparer les géométries de test les plus utilisées dans la littérature pour conduire à la proposition d'une géométrie hybride respectant deux critères : se rapprocher le plus possible d'un état de cisaillement homogène pur sans singularités dans le joint et être compatible avec les exigences matérielles de tests en fatigue nécessitant un nombre d'échantillons élevés à des fins statistiques. Deux géométries différentes ont été finalement sélectionnées :

- une géométrie annulaire pour des tests de caractérisation avec un rhéomètre en torsion ;
- une géométrie parallélépipède rectangle pour les tests de fatigue avec une machine de traction.

Etant donné la plage de température de l'application industrielle, la viscosité des colles étudiées ne peut être négligée. Il a donc été choisi d'effectuer une caractérisation viscoélastique détaillée dans le Chapitre 3. Les tests effectués avec le rhéomètre ont d'abord abouti à l'obtention de courbes maîtresses dans le cadre de la viscoélasticité linéaire. Une identification sur la base d'un modèle de Maxwell généralisé discret et d'un modèle à spectre des temps de relaxation continu a été menée. Les limites du régime linéaire ont ensuite été explorées vis-à-vis des deux paramètres de chargement : l'amplitude du cisaillement et la pression hydrostatique. L'influence de l'amplitude du cisaillement (appelée « effet Payne ») a été prise en compte à travers un modèle de la littérature qui introduit des échelles de temps intrinsèques au matériau à raison d'un paramètre supplémentaire par élément du modèle de Maxwell généralisé. La réponse du modèle reste satisfaisante par rapport aux données expérimentales mais des essais supplémentaires (nombreux) sont requis pour identifier de manière plus robuste tous les

paramètres du modèle. La pression hydrostatique a montré avoir une influence sur la rigidité en cisaillement du joint silicone avec une variation quasi-linéaire de cette rigidité avec la pression. Son influence sur le comportement du joint polyimide reste en revanche négligeable dans le domaine de pression investigué durant les tests.

Le caractère foncièrement hétérogène des joints adhésifs dû à leur chargement extrême en charges argent conductrices (supérieur à $50\ \%$ en volume) a donné lieu à l'étude d'homogénéisation menée au Chapitre 4. Cette étude a surtout un caractère qualitatif vu les approximations et les hypothèses de modélisation effectuées au regard de la complexité du problème réel : forme lamellaire des particules approximées par des formes ellipsoïdales aplaties, pas de prise en compte des interphases et interfaces matrice-particule parfaite (sans décohésion ni glissement). Néanmoins, les calculs menés ont abouti à plusieurs constats : l'ordre d'alignement local constaté par microscopie électronique implique des variations locales de rigidité du joint, donnant lieu à des concentrations de contrainte lors de la sollicitation du joint adhésif en cisaillement. Le comportement du VER en cisaillement a montré une dépendance à la pression hydrostatique dans le cas d'une matrice hyperélastique, alors que l'influence de la pression est restée négligeable pour une matrice linéaire élastique. Enfin, la distribution des contraintes dans la matrice a été étudiée en fonction de divers paramètres mécaniques pertinents dans le cadre de l'étude des joints adhésifs.

Le Chapitre 5 décrit les mécanismes de rupture obtenus expérimentalement après les tests de fatigue des joints adhésifs. Le mécanisme de décohésion s'est révélé être le mécanisme prédominant d'après les observations faites par microscopie électronique, où les particules apparaissent clairement à nu sur les facies de rupture. Néanmoins, comme évoqué dans la partie bibliographique de ce chapitre, la cavitation est intimement couplée à la décohésion, en particulier pour des fractions volumiques aussi élevées. Elle ne peut pas vraiment être mise de côté, d'autant que les sites de cavitation sont en moyenne plus difficiles à distinguer que ceux de décohésion. Le rôle des cavités issues de la polymérisation du joint lors de la propagation de fissure a été mis en évidence, conformément aux attentes intuitives. Enfin, le rôle de la rugosité des substrats a été démontré avec l'étude des ruptures de joints silicone : un substrat rugueux entraîne une rupture cohésive, alors que polir le substrat déplace la fissure vers l'interface joint-substrat pour obtenir une rupture adhésive. Toutefois, une observation plus poussée de ces ruptures adhésives montre le caractère mixte, avec certaines parties plus cohésives où une mince couche de silicone de l'ordre du micron reste accrochée au substrat. Le vieillissement n'a pas impliqué de modification visible sur les mécanismes de ruptures des joints.

Enfin, le Chapitre 6 aborde la tenue en fatigue des joints adhésifs silicone et polyimide. Cette tenue a été étudiée à température ambiante, pour un chargement de cisaillement alterné (pas de contrainte de cisaillement moyenne ni de pression hydrostatique). Les différents indicateurs de la littérature pour les élastomères ont été investigués : amplitude de déformation, amplitude de contrainte, amplitude

d'énergie élastique, énergie dissipée, amplitude de contrainte configurationnelle. Pour des raisons matérielles et temporelles, il a été testé en fatigue un nombre de joints adhésifs assez réduit au regard des courbes de fatigue habituelles exposées dans la littérature. Ces tests permettent néanmoins de confirmer véritablement les tendances observées déjà par Schlumberger avant le début de ce travail de thèse sur la question de l'influence du type de vieillissement sur la tenue en fatigue des joints adhésifs :

- Le vieillissement à l'air libre des joints silicone engendre une rigidification de ces derniers mais pas de modification du critère de fatigue trouvé pour les joints neufs. En revanche, le vieillissement confiné entraine une dégradation catastrophique des joints, au point que le vieillissement appliqué dans cette thèse est trop fort (en durée et/ou en température) pour pouvoir étudier convenablement le comportement mécanique.
- à l'inverse, le vieillissement confiné des joints polyimide semble rester relativement neutre vis-à-vis de ces derniers avec un léger assouplissement des joints et la variation du paramètre seuil de la loi de fatigue avec le vieillissement. Le vieillissement à l'air libre est plus agressif avec les joints polyimide puisque $70\ \%$ d'entre eux ont été suffisamment dégradés pour casser avant même le début des tests de fatigue.

Afin d'approfondir les résultats obtenus, des essais supplémentaires avec davantage d'éprouvettes pour chaque niveau de contrainte et plusieurs durées et/ou températures de vieillissement sont nécessaires. Ils permettraient de confirmer ou d'infirmer les constats expérimentaux et les lois de fatigue tirées de ces résultats. En particulier, les vieillissements agressifs pour chaque polymère doivent être effectués avec des durées intermédiaires par rapport à celle choisie dans cette thèse pour obtenir une évolution progressive du comportement et de la tenue en fatigue. Nous pouvons néanmoins conclure que le choix du joint adhésif pour l'application électronique industrielle doit obligatoirement prendre en compte le type de vieillissement (son atmosphère et son confinement) afin d'éviter les ruptures précoces dans la vie de l'outil.

Bibliographie

[1] J. Salençon, Mécanique des milieux continus: Concepts généraux, Editions Ecole Polytechnique, 2005.

[2] P. Le Tallec, Modélisation et calculs des milieux continus, Editions Ecole Polytechnique, 2009.

[3] R. Penta et A. Gerisch, «The asymptotic homogenization elasticity tensor properties for composites with material discontinuities,» *Continuum Mechanics and Thermodynamics,* vol. 29, n° %11, pp. 187-206, 2017.

[4] A. N. Gent, Engineering with rubber: how to design rubber components, 2012.

[5] M. Mooney, «A theory of large elastic deformation,» *Journal of applied physics,* vol. 11, n° %19, pp. 582-592, 1940.

[6] E. M. Arruda et M. C. Boyce, «A three-dimensional constitutive model for the large stretch behavior of rubber elastic materials,» *Journal of the Mechanics and Physics of Solids,* vol. 41, n° %12, pp. 389-412, 1993.

[7] L. J. Hart-Smith, «Elasticity parameters for finite deformations of rubber-like materials,» *Zeitschrift für Angewandte Mathematik und Physik (ZAMP),* vol. 17, n° %15, pp. 608-626, 1966.

[8] R. W. Ogden, «Recent advances in the phenomenological theory of rubber elasticity,» *Rubber Chemistry and Technology,* vol. 59, n° %13, pp. 361-383, 1986.

[9] J.-L. Halary, F. Lauprêtre et L. Monnerie, Mécanique des matériaux polymères, Belin, Éd., 2015.

[10] A. Jouan et A. Constantinescu, «A critical comparison of shear tests for adhesive joints,» *International Journal of Adhesion and Adhesives,* To be published.

[11] R. D. Adams, J. Comyn et W. C. Wake, Structural adhesive joints in engineering, Springer Science & Business Media, 1997.

[12] E. Jarry et R. A. Shenoi, «Performance of butt strap joints for marine applications,» *International journal of adhesion and adhesives,* vol. 26, n° %13, pp. 162-176, 2006.

[13] M. J. Cowling, «A review of adhesive bonding for offshore structures,» Health and Safety Executive, 1997.

[14] L. Li et J. E. Morris, «Reliability and failure mechanism of isotropically conductive adhesive joints,»

chez *Electronic components and technology conference*, 1995.

[15] O. Rusannen et J. Lenkkeri, «Thermal stress induced failures in adhesive flip chip joints,» *International journal of microcircuits and electronic packaging,* vol. 22, n° %14, pp. 363-369, 1999.

[16] R. Dudek, H. Berek, T. Fritsch et B. Michel, «Reliability investigations on conductive adhesive joints with emphasis on the mechanics of the conduction mechanism,» *IEEE Transactions on components and packaging technologies,* vol. 23, n° %13, pp. 462-469, 2000.

[17] R. D. Adams, J. Coppendale et N. A. Peppiatt, «Stress analysis of axisymmetric butt joints loaded in torsion and tension,» *The Journal of Strain Analysis for Engineering Design,* vol. 13, n° %11, pp. 1-10, 1978.

[18] Q. D. Yang, M. D. Thouless et S. M. Ward, «Elastic-plastic mode-II fracture of adhesive joints,» *International Journal of Solids and Structures,* vol. 38, n° %118, pp. 3251-3262, 2001.

[19] J.-Y. Cognard, R. Creac'Hcadec et J. Maurice, «Numerical analysis of the stress distribution in single-lap shear tests under elastic assumption - Application to the optimisation of the mechanical bahevior,» *International journal of adhesion and adhesives,* pp. 715-724, 2011.

[20] S. K. Parida et A. K. Pradan, «Influence of curvature geometry of laminated FRP composite panels on delamination damage in adhesively bonded lap shear joints,» *International Journal of Adhesion and Adhesives,* vol. 54, pp. 57-66, 2014.

[21] Y. Boutar, S. Naimi, S. Mezlini et M. Ali, «Effect of surface treatment on the shear strength of aluminium adhesive single-lap joints for automotive applications,» *International Journal of Adhesion and Adhesives,* vol. 67, pp. 38-43, 2016.

[22] U. T. Carvalho et R. D. S. G. Campilho, «Validation of pure tensile and shear cohesive laws obtained by the direct method with single-lap joints,» *International Journal of Adhesion and Adhesives,* vol. 77, pp. 41-50, 2017.

[23] J.-Y. Cognard, R. Creac'Hcadec, L. Sohier et P. Davies, «Analysis of the non-linear bahevior of adhesives in bonded assemblies - Comparison of TAST and ARCAN tests,» *International journal of adhesion and adhesives,* vol. 28, n° %18, pp. 393-404, 2008.

[24] A. B. de Morais, A. B. Pereira, J. P. Teixeira et N. C. Cavaleiro, «Strength of epoxy adhesive-bonded stainless-steel joints,» *International Journal of Adhesion and Adhesives,* vol. 27, n° %18, pp. 679-686, 2007.

[25] J.-Y. Cognard, P. Davies, B. Gineste et L. Sohier, «Development of an improved adhesive test method for composite assembly design,» *Composites science and technology,* pp. 359-368, 2005.

[26] R. R. de Sousa Jr, J. R. Gouveia, N. M. Ito et D. J. dos Santos, «Failure prediction of hybrid composite using Arcan's device and Drucker-Prager model,» vol. 58, pp. 256-261, 2017.

[27] X. Buch, Degradation thermique et fluage d'un adhesif structural epoxyde, 2000.

[28] A. M. Pinto, A. G. Magalhaes, R. D. Campilho, L. F. Silva, J. A. Chousal et A. P. Baptista, «Shear modulus and strength of an acrylic adhesive by the notched plate shear method (ARCAN) and the tick adherent shear test (TAST),» *Materials Science Forum;,* Vols. %1 sur %2636-637, 2010.

[29] J. Deng, «Test methods for mechanical properties of structural adhesives,» *Advanced Material Research,* vol. 97, pp. 814-817, 2010.

[30] G. D. Dean, B. C. Duncan, R. D. Adams, R. Thomas et L. Vaughn, «Comparison of bulk and joint specimen tests for determining the shear properties of adhesives,» 1996.

[31] A. Constantinescu et A. M. Korsunsky, Elasticity with Mathematica, Cambridge University Press, 2007.

[32] R. W. Soutas-Little, Elasticity, Courier corporation, 1999.

[33] M. L. Williams, «Stress singularities resulting from various boundary conditions in angular corners of plates in extension,» *Journal of applied mechanics,* vol. 19, n° %14, pp. 526-528, 1952.

[34] D. Leguillon et E. Sanchez-Palencia, Computation of singular solutions in elleptic problems and elasticity, John Wiley & Sons, 1987.

[35] J.-Y. Cognard, R. Creac'Hcadec, L. Sohier et D. Leguillon, «Influence of adhesive thickness on the behavior of bonded assemblies under shear loadings using a modifiest TAST fixture,» *International journal of adhesion and adhesives,* pp. 257-266, 2010.

[36] W. G. Knauss, «Viscoelasticity and the Time-Dependent Fracture in Polymers,» *Comprehensive structural integrity,* vol. 2, n° %17, pp. 383-428, 2003.

[37] W. G. Knauss, I. Emri et H. Lu, «Mechanics of polymers: viscoelasticity,» chez *Springer handbook of experimental solid mechanics*, 2008, pp. 49-96.

[38] J. C. Maxwell, «The Bakerian lecture: on the viscosity or internal friction of air and other gases},» *Philosophical Transactions of the Royal Society of London,* vol. 156, pp. 249-268, 1866.

[39] J. C. Simo et T. J. Hughes, Computational inelasticity, vol. 7, 2006.

[40] F. Kohlrausch, «Über die elastische Nachwirkung bei der Torsion,» *Annalen der Physik,* vol. 195, n° %17, pp. 337-368, 1863.

[41] M. Baumgaertel et H. H. Winter, «Determination of discrete relaxation and retardation time spectra from dynamic mechanical data,» *Rheologica Acta,* vol. 28, n° %16, pp. 511-519, 1989.

[42] J. D. Ferry, Viscoelastic properties of polymers, John Wiley & Sons, 1980.

[43] M. Baumgaertel et H. H. Winter, «Interrelation between continuous and discrete relaxation time spectra,» *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics,* vol. 44, pp. 15-36, 1992.

[44] F. Schwartz et A. J. Staverman, «Time-temperature dependence of linear viscoelastic behavior,» *Journal of Applied Physics,* vol. 23, n° %18, pp. 838-843, 1952.

[45] M. L. Williams, R. F. Landel et J. D. Ferry, «The temperature dependence of relaxation mechanisms in amorphous polymers and other glass-forming liquids,» *Journal of the American Chemical society,* vol. 77, n° %114, pp. 3701-3707, 1955.

[46] L. Mullins, «Softening of rubber by deformation,» *Rubber chemistry and technology,* vol. 42, n° %11, pp. 339-362, 1969.

[47] J. Diani, M. Brieu et J.-M. Vacherand, «A damage directional constitutive model for Mullins effect with permanent set and induced anisotropy,» *European Journal of Mechanics of Solids,* vol. 25, n° %13, pp. 483-496, 2006.

[48] Y. Merckel, J. Diani, M. Brieu et J. Caillard, «Constitutive modeling of the anisotropic behavior of Mullins softened filled rubbers,» *Mechanics of Materials,* vol. 57, pp. 30-41, 2013.

[49] I. Raoult, «Structures élastomères sous chargement cyclique: comportement, fatigue, durée de vie,» 2005.

[50] J. Diani, B. Fayolle et P. Gilormini, «A review on the Mullins effect,» *European Polymer Journal,* vol. 45, n° %131, pp. 601-6012, 2009.

[51] A. R. Payne, «The dynamic properties of carbon black-loaded natural rubber vulcanizates,» *Journal of applied polymer science,* vol. 6, n° %119, pp. 53-63, 1962.

[52] G. Kraus, «Mechanical losses in carbon-black-filled rubbers,» 1984.

[53] P. Höfer et A. Lion, «Modelling of frequency-and amplitude-dependent material properties of filler-reinforced rubber,» *Journal of the Mechanics and Physics of Solids,* vol. 57, n° %13, pp. 500-520, 2009.

[54] A. Lion et C. Kardelky, «The Payne effect in finite viscoelasticity: constitutive modelling based on fractional derivatives and intrinsic time scales,» *International Journal of Plasticity,* vol. 20, n° %17, pp. 1313-1345, 2004.

[55] R. W. Fillers et N. W. Tschoegl, «The effect of pressure on the mechanical properties of polymers,» *Transactions of the Society of Rheology,* vol. 21, n° %11, pp. 51-100, 1977.

[56] W. K. Moonan et N. W. Tschoegl, «Effect of pressure on the mechanical properties of polymers. 2. Expansivity and compressibility measurements,» *Macromolecules,* vol. 16, n° %11, pp. 55-59, 1983.

[57] W. K. Moonan et N. W. Tschoegl, «Effect of pressure on the mechanical properties of polymers. 3. Substitution of the glassy parameters for those of the occupied volume,» *International Journal of Polymeric Materials,* vol. 10, n° %13, pp. 199-211, 1984.

[58] W. K. Moonan et N. W. Tschoegl, «The effect of pressure on the mechanical properties of polymers. 4. Measurements in torsion,» *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics,* vol. 23, n° %14, pp. 623-651, 1985.

[59] D. Wollscheid et A. Lion, «Predeformation-and frequency-dependent material behaviour of filler-reinforced rubber: Experiments, constitutive modelling and parameter identification,» *International Journal of Solids and Structures,* vol. 50, n° %19, pp. 1217-1225, 2013.

[60] D. Jalocha, A. Constantinescu et R. Neviere, «Prestrain-dependent viscosity of a highly filled elastomer: experiments and modeling,» *Mechanics of Time-Dependent Materials,* vol. 19, n° %13, pp. 243-262, 2015.

[61] C. L. Bauer et R. J. Farris, «Determination of poisson's ratio for polyimide films,» *Polymer Engineering & Science,* vol. 29, n° %116, pp. 1107-1110, 1989.

[62] S. Torquato, Random heterogeneous materials: microstructure and macroscopic properties, vol. 16, S. S. &. B. Media, Éd., 2013.

[63] A. A. Gusev, «Controlled accuracy finite element estimates for the effective stiffness of composites with spherical inclusions,» *International Journal of Solids and Structures,* vol. 80, pp. 227-236, 2016.

[64] J. Eshelby, «The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems,» chez *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 1957.

[65] J. Eshelby, «The elastic field outside an ellipsoidal inclusion,» chez *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 1959.

[66] Y. Xu, «Approche multi-échelle pour l'étude du comportement des systèmes polyphasiques : : application aux milieux poreux non saturés,» 2004.

[67] T. Mori et K. Tanaka, «Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions,» *Acta Metallurgica,* vol. 21, n° %15, pp. 571-574, 1973.

[68] M. Bornert, T. Bretheau et P. Gilormini, «Homogénéisation des milieux aléatoires : bornes et estimations,» chez *Homogénéisation en mécanique des matériaux, Tome 1: Matériaux aléatoires élastiques et milieux périodiques*, 2001, pp. 133-222.

[69] W. Ponte-Castaneda et J. R. Willis, «The effet of spatial distribution on the effeffect behavior of composite mmaterial and cracked media,» *Journal of the Mechanics and Physics of Solids,* vol. 43, n° %112, pp. 1919-1951, 1995.

[70] P. Suquet, «Une méthode simplifiée pour le calcul des propriétés élastiques de matériaux hétérogènes à structure périodique,» chez *Comptes rendus de l'Acadé}mie des sciences. Série 2, Mécanique, Physique, Chimie, Sciences de l'univers, Sciences de la Terre*, 1990.

[71] G. K. Hu et G. J. Weng, «Some reflections on the Mori-Tanaka and Ponte Castaneda-Willis methods with randomly oriented ellipsoidal inclusions,» *Acta Mechanica,* vol. 140, n° %11, pp. 31-40, 2000.

[72] R. Hill, «A self-consistent mechanics of composite materials,» *Journal of the Mechanics and Physics of Solids,* vol. 13, n° %14, pp. 213-222, 1965.

[73] R. N. Christensen et K. H. Lo, «Solutions for effective shear properties in three phase sphere and cylinder models,» *Journal of the Mechanics and Physics of Solids,* vol. 27, n° %14, pp. 315-330, 1979.

[74] R. McLaughlin, «A study of the differential scheme for composite materials,» *International Journal of Engineering Science,* vol. 15, n° %14, pp. 237-244, 1977.

[75] J. R. Willis, «Bounds and self-consistent estimates for the overall properties of anisotropic composites,» *Journal of the Mechanics and Physics of Solids,* vol. 25, n° %13, pp. 185-202, 1977.

[76] P. Suquet, «Elements of homogenization for inelastic solid mechanics,» chez *Homogenization techniques for composite media*, 1987, pp. 193-278.

[77] J. M. Guedes et N. Kikuchi, «Preprocessing and postprocessing for materials based on the homogenization method with adaptive finite element methods,» *Computer methods in applied mechanics and engineering,* vol. 83, n° %12, pp. 143-198, 1990.

[78] O. Lopez-Pamies, T. Goudarzi et K. Danas, «The nonlinear elastic response of suspensions of rigid inclusions in rubber: II—a simple explicit approximation for finite-concentration suspensions,» *Journal of the Mechanics and Physics of Solids,* vol. 61, n° %11, pp. 19-37, 2013.

[79] H. Moulinec et P. Suquet, «A fast numerical method for computing the linear and nonlinear mechanical properties of composites,» *Comptes rendus de l'Académie des sciences. Série II, Mécanique, physique, chimie, astronomie,* vol. 318, n° %111, pp. 1417-1423, 1994.

[80] H. Moulinec et P. Suquet, «A numerical method for computing the overall response of nonlinear composites with complex microstructure,» *Computer methods in applied mechanics and engineering,* vol. 157, pp. 69-94, 1998.

[81] P. Suquet, «Une méthode simplifiée pour le calcul des propriétés élastiques de matériaux hétérogènes à structure périodique,» *Comptes rendus de l'Académie des sciences. Série 2, Mécanique, Physique, Chimie, Sciences de l'univers, Sciences de la Terre,* vol. 311, n° %17, pp. 769-774, 1990.

[82] J.-M. Ricaud et R. Masson, «Effective properties of linear viscoelastic heterogeneous media: Internal variables formulation and extension to ageing behaviours},» *International Journal of Solids and Structures,* vol. 46, n° %17, pp. 1599-1606, 2009.

[83] Q. H. Vu, R. Brenner, O. Castelnau et H. Moulinec, «Effective behaviour of viscoelastic polycrystals and associated local fields inferred from homogenization: incremental collocation approach,» *Procedia Engineering,* vol. 10, pp. 177-182, 2011.

[84] R. Guinovart-Diaz, J. Bravo-Castillero, R. Rodriguez-Ramos et F. J. Sabina, «Closed-form expressions for the effective coefficients of fibre-reinforced composite with transversely isotropic constituents. I: Elastic and hexagonal symmetry,» *Journal of the Mechanics and Physics of Solids,* vol. 49, n° %17, pp. 1445-1462, 2001.

[85] K. L. Johnson, K. Kendall et A. D. Roberts, «Surface energy and the contact of elastic solids,» chez *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 1971.

[86] K. N. Fuller et D. F. Tabor, «The effect of surface roughness on the adhesion of elastic solids,» chez *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 1975.

[87] B. V. Derjaguin, V. M. Muller et Y. P. Toporov, «Effect of contact deformations on the adhesion of particles,» *Journal of Colloid and interface science,* vol. 53, n° %12, pp. 314-326, 1975.

[88] D. Tabor, «Surface forces and surface interactions,» *Journal of colloid and interface science,* vol. 58, n° %11, pp. 2-13, 1977.

[89] N. Saintier, «Fatigue multiaxiale dans un élastomère de type NR chargé : mécanismes d'endommagement et critère local d'amorçage de fissure,» 2001.

[90] A. Bennani, «Elaboration, comportement et durée de vie en fatigue du caoutchouc naturel renforcé de silice,» 2006.

[91] A. N. Gent, «Detachment of an elastic matrix from a rigid spherical inclusion,» *Journal of Materials*

Science, vol. 15, n° %111, pp. 2884-2888, 1980.

[92] A. N. Gent et B. Park, «Failure processes in elastomers at or near a rigid spherical inclusion,» *Journal of Materials Science,* vol. 19, n° %16, pp. 1947-1956, 1984.

[93] A. N. Gent et P. B. Lindley, «Internal rupture of bonded rubber cylinders in tension,» chez *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 1959.

[94] J. M. Ball, «Discontinuous equilibrium solutions and cavitation in nonlinear elasticity,» *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences,* vol. 306, n° %11496, pp. 557-611, 1982.

[95] V. Lefèvre et O. Lopez-Pamies, «The overall elastic dielectric properties of a suspension of spherical particles in rubber: An exact explicit solution in the small-deformation limit,» *Journal of Applied Physics,* vol. 192, n° %11, pp. 1-23, 2015.

[96] H.-S. Hou et R. Abeyaratne, «Cavitation in elastic and elastic-plastic solids,» *Journal of the Mechanics and Physics of Solids,* vol. 40, n° %13, pp. 571-592, 1992.

[97] O. Lopez-Pamies, M. I. Idiart et T. Nakamura, «Cavitation in elastomeric solids: I—A defect-growth theory,» *Journal of the Mechanics and Physics of Solids,* vol. 59, n° %18, pp. 1464-1487, 2011.

[98] M. L. Williams et R. A. Schapery, «Spherical flaw instability in hydrostatic tension,» *International Journal of Fracture,* vol. 1, n° %11, pp. 64-72, 1965.

[99] A. N. Gent et D. A. Tompkins, «Surface energy effects for small holes or particles in elastomers,» *Journal of Polymer Science Part B: Polymer Physics,* vol. 7, n° %19, pp. 1483-1487, 1969.

[100] X. Poulain, V. Lefèvre, O. Lopez-Pamies et K. Ravi-Chandar, «Damage in elastomers: nucleation and growth of cavities, micro-cracks, and macro-cracks,» vol. 205, n° %11, pp. 1-21, 2017.

[101] J. N. Goodier, «Concentration of stress around spherical and cylindrical inclusions and flaws,» *TASME,* vol. 55, n° %139, 1933.

[102] J.-B. Le Cam, B. Huneau, E. Verron et L. Gornet, «Mechanism of fatigue crack growth in carbon black filled natural rubber,» *Macromolecules,* vol. 37, n° %113, pp. 5011-5017, 2004.

[103] V. I. Mossakovskii et M. T. Rybka, «Generalization of the grippith-sneddon criterion for the case of a nonhomogeneous body,» *Journal of Applied Mathematics and Mechanics,* vol. 28, n° %16, pp. 1277-1286, 1964.

[104] W. V. Mars et A. Fatemi, «A literature survey on fatigue analysis approaches for rubber,»

International Journal of Fatigue, vol. 24, n° %19, pp. 949-961, 2002.

[105] R. P. Skelton, «Cyclic hardening, softening, and crack growth during high temperature fatigue,» *Materials science and technology,* vol. 9, n° %111, pp. 1001-1008, 1993.

[106] A. Constantinescu, E. Charkaluk, G. Lederer et L. Verger, «A computational approach to thermomechanical fatigue,» *International Journal of fatigue,* vol. 26, n° %18, pp. 805-818, 2004.

[107] S. M. Cadwell, R. A. Merrill, C. M. Sloman et F. L. Yost, «Dynamic fatigue life of rubber,» *Industrial & Engineering Chemistry Analytical Edition,* vol. 12, n° %11, pp. 19-23, 1940.

[108] C. Shen, «Contribution à l'étude du cumul de dommage en fatigue multiaxiale,» 2012.

[109] J. F. Roach, «Crack growth in elastomers under biaxial stresses,» 1982.

[110] B. J. Roberts et J. B. Benzies, «The relationship between uniaxial and equibiaxial fatigue in gum and carbon black vulcanizates,» chez *Proceedings of Rubbercon*, 1977.

[111] N. Saintier, G. Cailletaud et R. Piques, «Crack initiation and propagation under multiaxial fatigue in a natural rubber,» *International Journal of Fatigue,* vol. 28, n° %11, pp. 61-72, 2006.

[112] N. André, «Critère local d'amorçage de fissure en fatigue dans un élastomère de type NR,» 1998.

[113] F. Abraham, T. Alshuth et S. Jerrams, «The effect of minimum stress and stress amplitude on the fatigue life of non strain crystallising elastomers,» *Materials & Design,* vol. 26, n° %13, pp. 239-245, 2005.

[114] J. R. Beatty, «Fatigue of rubber,» *Rubber Chemistry and Technology,* vol. 37, n° %15, pp. 1341-1364, 1964.

[115] W. V. Mars, «Cracking energy density as a predictor of fatigue life under multiaxial conditions,» vol. 75, n° %11, pp. 1-17, 2002.

[116] E. Verron et A. Andriyana, «Definition of a new predictor for multiaxial fatigue crack nucleation in rubber,» *Journal of the Mechanics and Physics of Solids,* vol. 56, n° %12, pp. 417-443, 2008.

[117] J. D. Eshelby, «The force on an elastic singularity,» *Philosophical Transactions of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences,* vol. 244, n° %1877, pp. 87-112, 1951.

[118] E. Charkaluk et A. Constantinescu, «An energetic approach in thermomechanical fatigue for silicon molybdenum cast iron,» *Materials at high temperatures,* vol. 17, n° %13, pp. 373-380, 2000.

[119] A. A. Griffith, «The phenomena of flow and rupture in solids,» *Phil. Trans. Roy. Soc. Lond. Ser. A,* vol. 221, 1920.

[120] R. S. Rivlin et A. G. Thomas, «Rupture of rubber: I. Characteristic energy for tearing,» *Journal of Polymer Science Part A: Polymer Chemistry,* vol. 10, n° %13, pp. 291-318, 1953.

[121] A. G. Thomas, «Rupture of rubber: V. Cut growth in natural rubber vulcanizates,» *Journal of Polymer Science Part A: Polymer Chemistry,* vol. 31, n° %1123, pp. 467-480, 1958.

[122] G. J. Lake et P. B. Lindley, «The mechanical fatigue limit for rubber,» *Journal of Applied Polymer Science,* vol. 9, n° %14, pp. 1233-1251, 1965.

[123] H. Aglan et A. Moet, «The resistance of rubber compounds to brittle crack propagation,» *Rubber chemistry and technology,* vol. 62, n° %11, pp. 98-106, 1989.

[124] C. L. Chow et T. J. Lu, «Fatigue crack propagation in metals and polymers with a unified formulation,» *Tire Science and Technology,* vol. 20, n° %12, pp. 106-129, 1992.

[125] G. J. Lake, «Fatigue and fracture of elastomers,» *Rubber Chemistry and Technology,* vol. 68, n° %13, pp. 435-460, 1995.

[126] M. Johlitz, N. Dierks et A. Lion, «Thermo-oxidative ageing of elastomers: A modelling approach based on a finite strain theory,» *International Journal of Plasticity,* vol. 63, pp. 138-151, 2014.

[127] A. Lion et M. Johlitz, «On the representation of chemical ageing of rubber in continuum mechanics,» *International Journal of Solids and Structures,* vol. 49, n° %110, pp. 1227-1240, 2012.

[128] R. Masson, R. Brenner et O. Castelnau, «Incremental homogenization approach for ageing viscoelastic polycrystals,» *Comptes Rendus Mécanique,* vol. 340, n° %14-5, pp. 378-386, 2012.

[129] C. Neuhaus, A. Lion, M. Johlitz, P. Heuler, M. Barkhoff et F. Duisen, «Fatigue behaviour of an elastomer under consideration of ageing effects,» *International Journal of Fatigue,* vol. 104, pp. 72-80, 2017.

[130] G. Ayoub, «Comportement en grandes déformations et fatigue des polymères: modélisation constitutive et prédiction de la durée de vie en fatigue,» 2010.

[131] J. Lemaitre et J.-L. Caboche, Mechanics of Solid Materials, Cambridge University Press, 1994.

[132] B. Wang, H. Lu et G. Kim, «A damage model for the fatigue life of elastomeric materials,» *Mechanics of Materials,* vol. 34, n° %18, pp. 475-483, 2002.

[133] E. Goodin, A. Kallmeyer et P. Kurath, «Evaluation of nonlinear cumulative damage models for assessing HCF/LCF interactions in multiaxial loadings,» chez *9th national turbine engine high cycle*

fatigue (HCF) conference, 2004.

[134] X. Pitoiset, «Méthodes spectrales pour une analyse en fatigue des structures métalliques sous chargements aléatoires multiaxiaux,» 2001.

[135] T. Dirlik, «Application of computers in fatigue analysis,» 1985.

[136] S. Amiable, S. Chapuliot, A. Constantinescu et A. Fissolo, «A comparison of lifetime prediction methods for a thermal fatigue experiment,» *International Journal of Fatigue,* vol. 28, n° %17, pp. 692-706, 2006.

Annexes

Annexe A. Dispositif expérimental de vieillissement sous atmosphère confinée

Les vieillissements en atmosphère confinée sous argon ont été réalisés dans des enceintes de pression dont l'étanchéité est assurée par des joints en fluoroélastomère. Les fluoroélastomères sont des élastomères constitués de monomères contenant des éléments fluor, ce qui les rend très résistants à la chaleur et aux attaques environnementales. Les joints utilisés sont de type FFKM. Ils contiennent encore plus d'éléments fluor que leurs homologues FKM et sont ainsi réputés tenir largement des températures jusqu'à 250°C. Les enceintes de pression possèdent deux sorties sur lesquelles on peut brancher des connectiques NPT dont les filetages sont étanchéifiés avec du ruban téflon comme pour la plomberie domestique. Ces deux sorties permettent de relier les enceintes à :

- une vanne d'ouverture et de fermeture, derrière laquelle une pompe à vide peut être branchée de manière à faire le vide dans l'enceinte. Une bouteille d'argon peut ensuite être substituée à la pompe pour remplir l'enceinte d'argon ;
- un capteur de pression afin de suivre à chaque instant la pression dans l'enceinte. La bonne mise sous vide, le remplissage avec l'argon et les éventuelles fuites pendant le vieillissement sont contrôlés.

Le schéma de l'installation est illustré dans la Figure 124 ci-dessous :

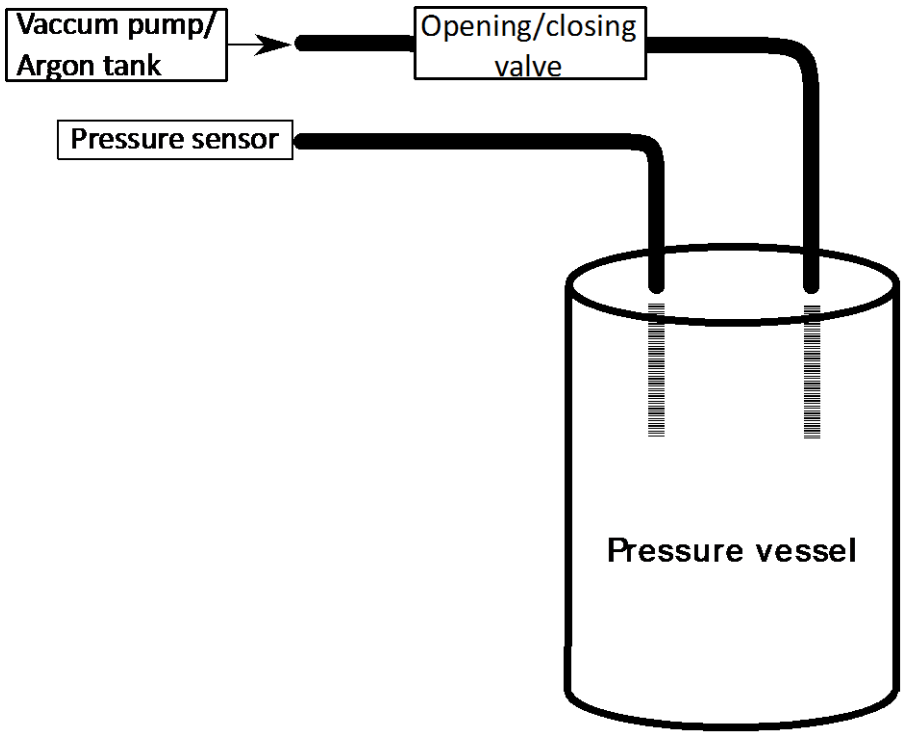


Figure 124 : Schéma du dispositif de vieillissement sous atmosphère confinée

Les assemblages collés sont introduits dans l'enceinte. Un certain volume de pâte à joint polymérisé sur un substrat métallique y est ajouté pour obtenir le rapport de volume de joint sur le volume de l'enceinte correspondant à un rapport typique de module électronique utilisé par Schlumberger. L'enceinte est ensuite refermée, les tuyaux vissés, le capteur de pression et la vanne d'ouverture/fermeture montés. La Figure 125 illustre une enceinte équipée et testée avec une pompe mesurant le niveau de fuite à l'air et à l'hélium :

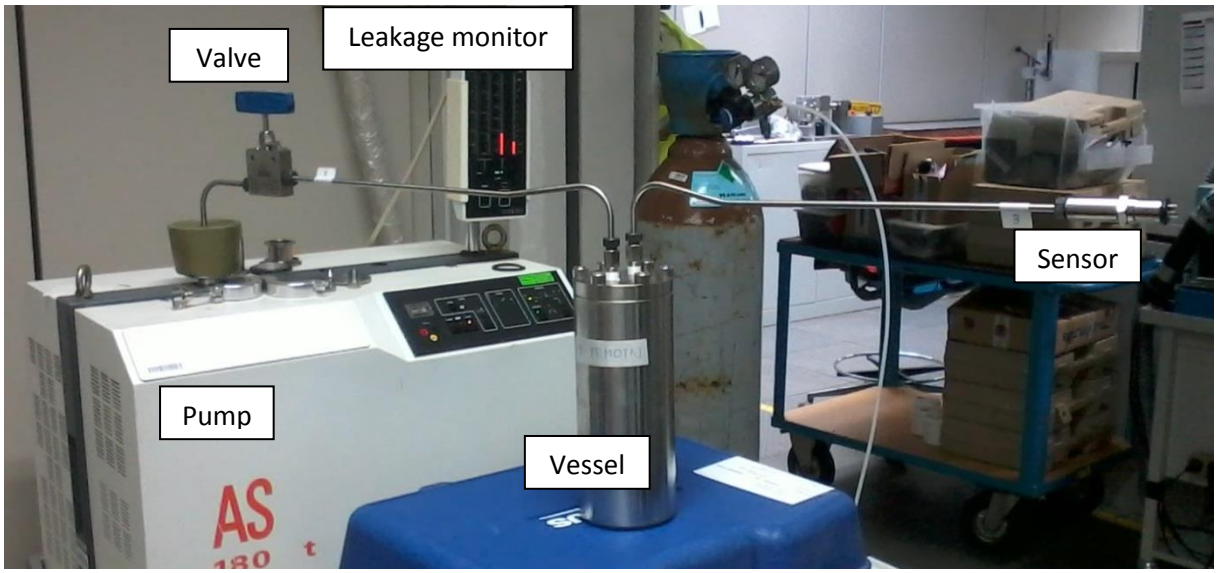


Figure 125 : test du niveau de fuite d'une enceinte équipée de son capteur et sa vanne

Une fois équipées et testées, les enceintes sont mises dans l'étuve avec le capteur et la vanne sortant par un trou et donc accessibles pour l'opérateur, comme illustré Figure 126 :

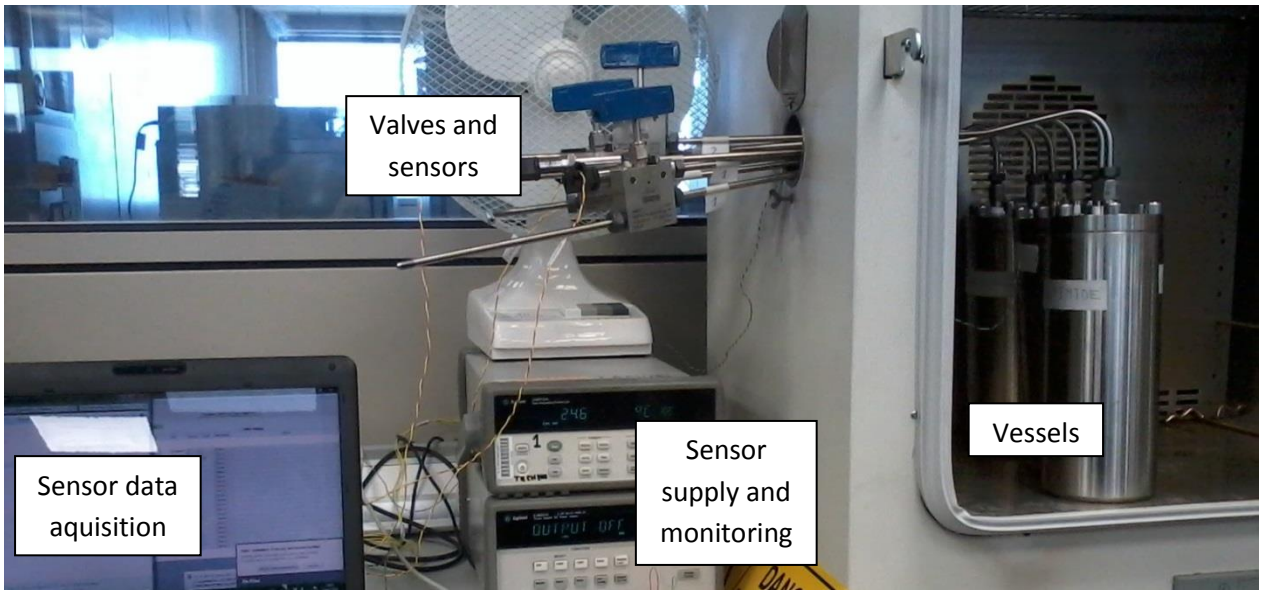
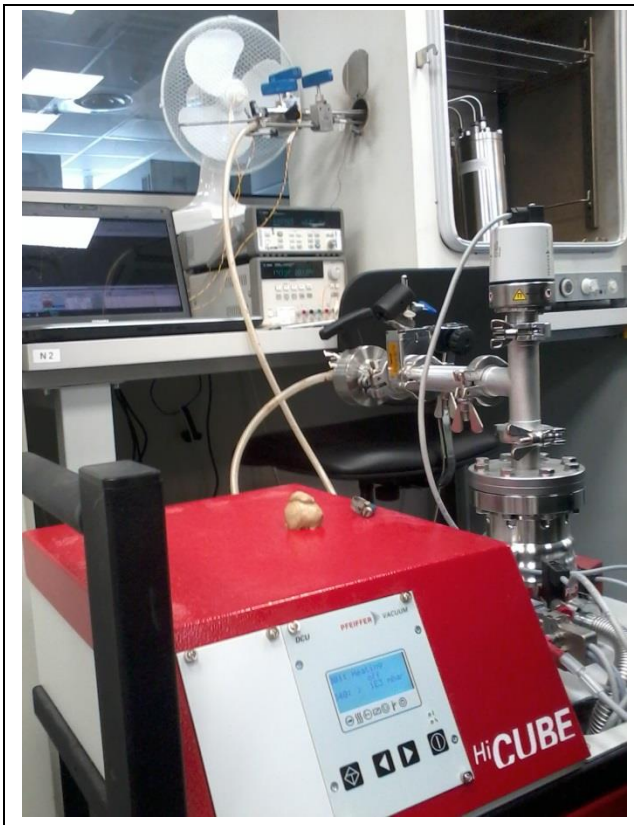


Figure 126 : dispositif de vieillissement avec suivi de la pression dans les enceintes

Le vide est fait dans les enceintes en branchant une pompe à vide au bout de la vanne comme en Figure 127 (a). Une fois le vide atteint, la vanne est fermée. La pompe est débranchée pour brancher la bouteille d'argon à la place comme en Figure 127 (b). La vanne est ensuite ouverte jusqu'à atteindre la pression désirée puis refermée. Enfin, les enceintes sont mises en température dans l'étuve. La pression introduite lors du

remplissage à température ambiante est simplement obtenue à partir de la pression désirée lors du vieillissement en température par la loi des gaz parfaits.



(a)



(b)

Figure 127 : (a) pompe à vide branchée sur la vanne du dispositif ; (b) bouteille d'argon reliée à la vanne du dispositif

Quand la pression repasse en dessous d'un certain seuil fixé par l'expérimentateur à cause des fuites du dispositif, de l'argon est réintroduit par la vanne d'ouverture. Pendant les vieillissements effectués dans cette thèse, un niveau de pression absolue minimal de $1{,}5$ bar a été repecté, soit $0{,}5$ bar au-dessus de la pression atmosphérique. Les fuites du dispositif sont ainsi dirigées de l'intérieur du dispositif vers l'extérieur, empêchant les joints adhésifs d'être exposés à l'air. Ces fuites ont donc pour unique conséquence de diminuer le niveau de confinement perçu en évacuant légèrement les dégazages des matériaux polymères.

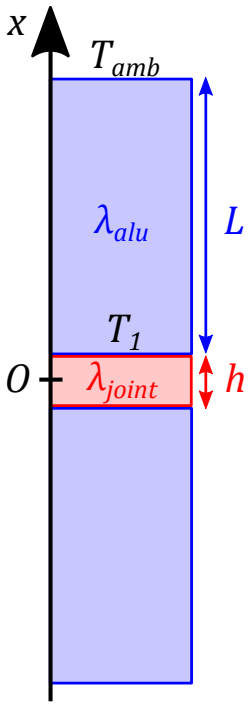
Une enceinte témoin vide a été mise en test avec les deux autres enceintes contenant les joints silicone ou les joints polyimide, afin de comparer les niveaux de fuite.

Annexe B. Calcul de l'auto-échauffement des joints adhésifs sous sollicitation cyclique à 10 Hz

Le phénomène d'auto-échauffement d'un matériau viscoélastique sous sollicitation cyclique provient de l'énergie dissipée par cycle W_d convertie sous forme de chaleur. Dans cette annexe sont détaillés les calculs effectués pour obtenir un ordre de grandeur de la température stabilisée des joints lors d'un essai de fatigue cyclique.

Dans un premier temps, un calcul analytique en 1D (cf schéma ci-contre) a été mené sous les hypothèses suivantes :

- l'air environnant les surfaces libres du joint n'évacue aucune chaleur, que ce soit par conduction ou convection ;
- les substrats de longueur L sont en contact à leur extrémité opposée au joint avec une pièce en acier thermostatée à la température ambiante T_{amb} ;
- le régime mécanique et thermique est permanent, donc l'énergie dissipée par cycle W_d est constante et $dT/dt = 0$;
- W_d est uniforme dans le joint et complétement convertie en chaleur, d'où un terme de production de chaleur par unité de temps $p = W_d \times f$ avec $f = 10$ Hz la fréquence de l'essai cyclique ;
- le flux de chaleur $j(x) = \lambda(x) \times dT(x)/dx$ est continu car il n'y a pas de sources ponctuelles mais uniquement des sources continues.



Le plan moyen du joint étant situé en $x = 0$, le problème est donc symétrique par rapport à $x = 0$. La température aux interfaces du joint est notée $T(\pm h/2) = T_1$.

Le problème est régi par l'équation de la chaleur en régime permanent :

$$\begin{cases} \dfrac{d^2T}{dx^2} + \dfrac{p(x)}{\lambda(x)} = 0 \quad \text{avec} \quad p(x) = \begin{cases} fW_d \ \text{ si } \ |x| \le \dfrac{h}{2} \\ 0 \ \text{ sinon} \end{cases} \\ T\left(\pm\left(\dfrac{h}{2} + L\right)\right) = T_{amb} \end{cases}$$

d'où

$$\begin{cases} T\left(|x| \le \dfrac{h}{2}\right) = T_1 + \dfrac{fW_d}{2\lambda_{joint}}\left(\left(\dfrac{h}{2}\right)^2 - x^2\right) \\ T\left(|x| \ge \dfrac{h}{2}\right) = T_1 + \dfrac{(T_{amb} - T_1)}{L}\left(|x| - \dfrac{h}{2}\right) \end{cases}$$

La continuité du flux de chaleur $j = \lambda\, dT/dx$ en $x = \pm h/2$ donne

$$fW_d \frac{h}{2} = \lambda_{alu} \frac{(T_{amb} - T_1)}{L}$$

d'où

$$T_1 = T_{amb} + \frac{fW_d hL}{2\lambda_{alu}}$$

et

$$\Delta T_{max} = T(0) - T_{amb} = fW_d \left(\frac{h^2}{8\lambda_{joint}} + \frac{hL}{2\lambda_{alu}} \right)$$

Les données géométriques et du substrat sont fixées à

- $h = 250\ \mu\text{m}$, $L = 10\ \text{mm}$;
- $\lambda_{alu} = 201\ \text{W/(m} \cdot \text{K)}$ (valeur typique dans la littérature).

La conductivité thermique des polymères est de l'ordre de grandeur de $0{,}1\ \text{W/(m} \cdot \text{K)}$. La fiche technique de la colle polyimide annonce une conductivité thermique à $2\ \text{W/(m} \cdot \text{K)}$ et un test thermique interne sur la colle silicone a donné le même ordre de grandeur (entre 2 et $3\ \text{W/(m} \cdot \text{K)}$), ce qui montre le bénéfice des charges argent qui permettent de gagner un ordre de grandeur sur la conductivité thermique. Néanmoins le cas le plus sévère est ici considéré pour déterminer une borne supérieure de l'échauffement : nous prendrons donc $\lambda_{joint} = 0{,}1\ \text{W/(m} \cdot \text{K)}$. L'énergie dissipée par cycle est fixée à $W_d = 100\ \text{kPa} = 10^5\ \text{J/m}^3$, qui est une des valeurs les plus élevées mesurées pendant les essais de fatigue.

L'application numérique de la formule donne finalement $\Delta T_{max} = 8.4 \cdot 10^{-2}\ \text{K} \sim 0.1°\text{C}$.

Dans un deuxième temps, un calcul numérique 3D en régime permanent a été réalisé avec le logiciel de simulation thermique par éléments finis FloTHERM®. Le modèle utilisé prend en compte les échanges par conduction ainsi que par convection de l'air environnant. Le set-up complet avec les pièces adaptatives en acier est cette fois-ci modélisé. Les résultats du calcul avec les données d'entrées du calcul analytique ci-dessus sont illustrés Figure 128, pour une température ambiante $T_{amb} = 25°\text{C}$. Le joint subit une augmentation de température moyenne de $0.5°\text{C}$, avec des effets de bords ($+0.9°\text{C}$) au niveau des rainures des substrats (usinées pour diminuer les singularités de contrainte mécanique) qui empêchent le substrat d'évacuer aussi bien la chaleur à cause de l'enlèvement de matière.

Ces résultats montrent que, même pour une conductivité thermique du joint vraisemblablement sous-estimée et une valeur d'énergie dissipée (entièrement sous forme de chaleur) par cycle élevée par rapport à celles obtenues expérimentalement, l'auto-échauffement des joints adhésifs reste négligeable puisqu'en-dessous du degré Celcius.

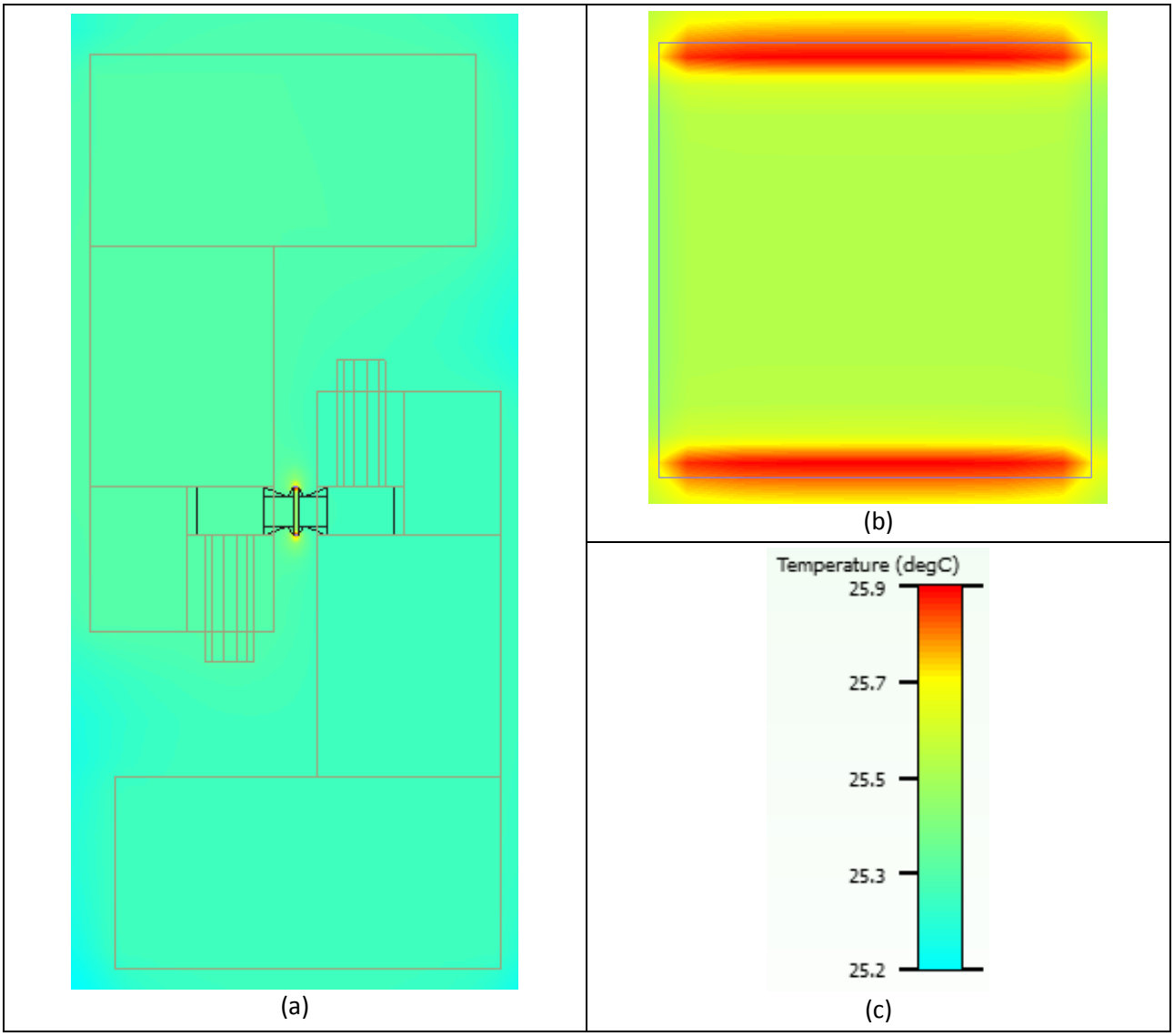


Figure 128 : simulation thermique de l'auto-échauffement du joint adhésif lors de l'essai de fatigue à $10\ Hz$: (a) set-up complet, (b) zoom sur le plan du joint, (c) échelle de couleur (la température ambiante de départ est $25℃$)

Annexe C. Détermination de l'énergie d'activation du vieillissement de la colle silicone

Comme abordé dans le paragraphe 6.2.1, le vieillissement des polymères est souvent modélisé par une loi d'Arrhenius. Cette loi relie la vitesse v d'une réaction chimique à la température T par l'intermédiaire d'une énergie d'activation E_a et d'un préfacteur A :

$$v = Ae^{-E_a/RT}$$

Deux vieillissements de durée et température respectives (t_1, T_1) et (t_2, T_2) sont donc équivalents du point de vue de l'avancée de la réaction chimique si

$$\frac{t_1}{t_2} = \exp\left(-\frac{E_a}{k}\left(\frac{1}{T_2} - \frac{1}{T_1}\right)\right)$$

L'énergie d'activation E_a peut être déterminée par plusieurs approches différentes. L'approche choisie ici est la cinétique de perte de masse : la perte de messe est mesurée par une analyse thermogravimétrique (TGA = ThermoGravimetric Analysis) d'un échantillon de polymère à une température fixée en fonction du temps. L'indicateur utilisé ensuite pour déterminer E_a peut être soit :

- la pente initiale de la courbe de perte de masse en fonction du temps ;
- la valeur de la perte de masse à un instant donné.

Pour ce dernier indicateur, il y a en fait une infinité de possibilités en fonction de l'instant choisi. Les deux indicateurs ont été testés, avec deux instants différents pour le deuxième indicateur. Il est clair que les indicateurs proposés sont tous directement proportionnels à la vitesse de réaction si les échantillons sont tous de mêmes dimensions initiales (donc de même masse initiale w_0). Pour s'affranchir des variations de masse en fonction des échantillons, les indicateurs sont calculés sur la perte de masse relative $(w(t) - w_0)/w_0$. L'évolution de l'indicateur avec la température doit donc respecter la forme

$$ind(T) = A'e^{-E_a/RT}$$

soit

$$\ln\big(ind(T)\big) = \ln(A') - \frac{E_a}{R} \times \frac{1}{T}$$

Le tracé du logarithme de l'indicateur en fonction de $1/T$ permet donc de déterminer l'énergie d'activation par la mesure de la pente de la courbe.

Les essais de TGA ont été réalisés à trois températures différentes : 200℃, 225℃ et 250℃. Pour chaque température, la rampe de température choisie pour atteindre le palier est de 10℃/min (soit environ 20 mins de montée en fonction de la température de test), puis le palier est maintenu pendant 10 h. La masse mesurée par l'appareil pendant le test $w(t)$ est divisée par la masse mesurée au début du test w_0 pour donner directement la masse relative $w(t)/w_0$. Les essais sont réalisés avec un flux d'azote continu pendant l'enregistrement des données. Ainsi, la perte de masse enregistrée est uniquement due aux réactions de vieillissement thermique, et non thermo-oxydatif à cause de l'oxygène de l'air.

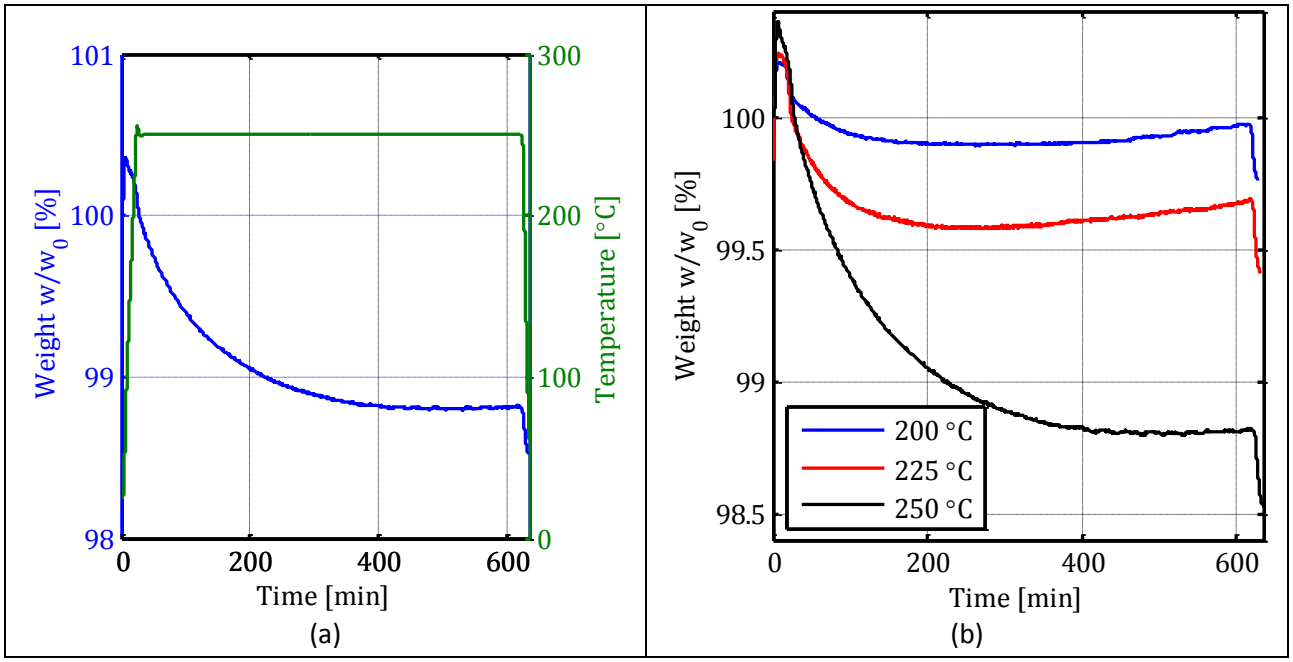


Figure 129 : (a) suivi d'ATG en masse et température pour un palier de 10 h à 250℃ ; (b) courbes d'ATG pour 200℃ , 225 ℃ et 250℃

La Figure 129 (a) montre le suivi en masse et en température d'un test à un palier de $250℃$. La masse mesurée augmente initialement avec la montée en température. Ce phénomène n'est pas physique mais un artéfact de mesure de l'appareil. Ensuite, la courbe de masse relative décroît de manière monotone pour se stabiliser à une valeur asymptotique pendant le palier de température. La Figure 129 (b) montre les courbes de masses relatives obtenues pour les trois températures explorées : l'artéfact de mesure lors de la montée en température est présent pour tous les essais. L'appareil semble même présenter une légère dérive dans le temps puisqu'aux températures les plus faibles, la masse mesurée a tendance à remonter légèrement à la fin du palier de température, ce qui n'est pas physique.

Pour toutes ces raisons, la valeur de la perte de masse à un instant donné a été abandonnée comme indicateur, et la pente initiale sera utilisée car celle-ci est beaucoup moins affectée par les artéfacts et dérives de mesure constatés. La pente est effectivement déterminée par régression linéaire des courbes de masses relatives entre $t = 40$ et $60\ \text{mins}$. En effet, sur cet intervalle, la pente des courbes est constante pour toutes les températures.

Les pentes relevées dans l'intervalle $[40\ \text{mins} ; 60\ \text{mins}]$ sont affichées dans le Tableau 15 :

Température	Pente
200℃	$2{,}297 \cdot 10^{-3}\ \text{min}^{-1}$
225℃	$4{,}804 \cdot 10^{-3}\ \text{min}^{-1}$
250℃	$9{,}535 \cdot 10^{-3}\ \text{min}^{-1}$

Tableau 15 : Valeurs expérimentales des pentes tirées des essais d'ATG affichés Figure 129 (b)

Le logarithme népérien de ces pentes de perte de masse initiale est tracé Figure 130 en fonction de l'inverse de la température (en K^{-1}). Ensuite, une régression linéaire affichée sur la figure est effectuée pour obtenir l'énergie d'activation E_a en J/mol après multiplication par la constante des gaz parfaits $R = 8{,}31\ \text{J/(mol} \cdot \text{K)}$ ou en eV après multiplication par la constante de Boltzmann $k_B = 8{,}627 \cdot 10^{-5}\ \text{eV/K}$.

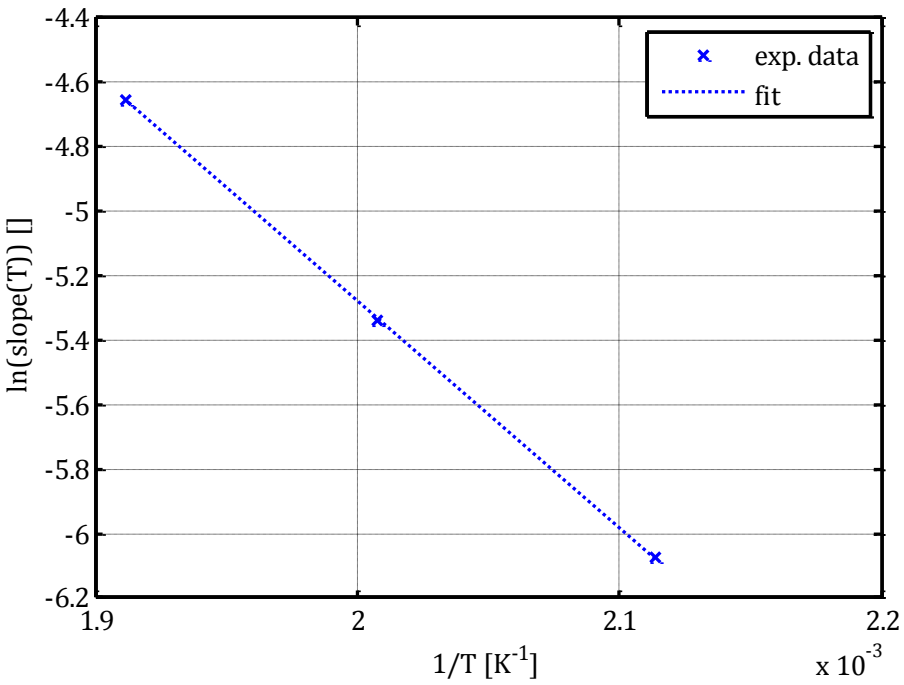


Figure 130 : tracé du logarithme des pentes mesurées lors des essais d'ATG en fonction de $1/T$, et régression linéaire des données

La valeur obtenue pour la colle silicone est finalement :

$$E_a = 0{,}607 \text{ eV} = 58{,}6 \text{ kJ/mol}$$

Cette méthode n'a en revanche pas été appliquée avec la colle polyimide car l'évaporation du solvant restant après la polymérisation au début de la vie du joint fausse la mesure de perte de masse en début d'essai d'ATG. L'évaluation de l'indicateur devient alors hasardeuse et l'incertitude sur les résultats trop élevée pour pouvoir conclure.

ÉCOLE DOCTORALE
Sciences mécaniques et énergétiques, matériaux et géosciences (SMEMAG)

Titre : Influence du vieillissement en atmosphère confinée sur la prédiction de la durée de vie des joints adhésifs

Mots clés : Viscoélasticité non-linéaire ; Homogénéisation ; Vieillissement ; Tenue en fatigue.

Résumé : L'industrie pétrolière s'intéresse aujourd'hui à la possibilité de remplacer certaines brasures par des joints adhésifs rendus conducteurs par leur fort taux de charges conductrices dans les outils électroniques. Ces outils évoluent aujourd'hui à des hauts niveaux de température et de pression pendant leur vie en service. L'utilisation de joints adhésifs pose donc automatiquement la question de leur fiabilité à long terme. L'étude de leur tenue en fatigue, et de l'influence du vieillissement sur cette tenue en fatigue devient nécessaire pour le déploiement final de ces joints. Cette thèse se propose de répondre à une double question : la prédiction de la durée de vie de deux colles commerciales dans les outils électroniques et l'influence du vieillissement de ces colles sur cette prédiction. Deux vieillissements différents ont été mis en œuvre : un vieillissement à l'air libre et un vieillissement inerte (sous argon) confiné.

Dans un premier temps, une caractérisation expérimentale du comportement viscoélastique des colles a été menée. Elle met en particulier l'accent sur les non-linéarités induites par les deux paramètres de chargements retenus que sont le cisaillement et la pression hydrostatique.
Dans un deuxième temps, une étude plus fine de la microstructure a été effectuée numériquement. Une série d'hypothèses de modélisation a été faite. Les résultats de ces calculs - plutôt qualitatifs - permettent de dégager les tendances sur l'influence de la présence des charges conductrices sur la réponse macroscopique du joint adhésif.
Enfin, la tenue en fatigue des joints et sa dépendance à leur vieillissement a été abordée expérimentalement. L'influence de l'atmosphère et du confinement pendant le vieillissement sur l'évolution de la tenue en fatigue a été mise en évidence pour les deux colles étudiées dans cette thèse. Les résultats obtenus ont permis de proposer des lois de fatigue dont certains paramètres dépendent du vieillissement.

Title : Influence of ageing in confined atmosphere on lifetime prediction of adhesive joints

Keywords : Non-linear viscoelasticity; Homogenization; Fatigue lifetime.

Abstract : The substitution of soldering by electrically conductive adhesive bonding in electronic assemblies is of growing interest in the oil-and-gas industry. These electronic assemblies should nowadays work at high temperature and pressure levels during their service lives. The question of the long-term reliability of adhesive bonding becomes in this context a critical issue. The study of the fatigue strength of adhesive joints as well as the influence of ageing on this strength is therefore crucial for the final deployment of adhesive bonding. This work aims at addressing this fatigue lifetime prediction for two different commercial adhesives in electronic tools, and studying the influence of ageing on the lifetime prediction. Two types of ageing were implemented: an open-air ageing and a confined inert ageing (under Argon).

An experimental characterization of the viscoelastic behavior of the two adhesive joints was first carried out. In particular, the non-linearities due to each of the loading parameter (simple shear and hydrostatic pressure) were highlighted and modeled.
The microstructural heterogeneity brought by the metallic conductive fillers was then numerically studied. The numerical model introduces several approximations that make the results qualitative, but they highlight the influence of the fillers on the global macroscopic behavior of the adhesive joint.
The question of the fatigue strength of adhesive joints and its evolution with ageing is finally experimentally addressed. The influence of the atmosphere and confinement of ageing on the lifetime prediction is clearly noticed for the two joints studied in this work. Fatigue criteria with some of the parameters evolving this ageing are proposed to fit the results experimentally obtained.

Université Paris-Saclay
Espace Technologique / Immeuble Discovery
Route de l'Orme aux Merisiers RD 128 / 91190 Saint-Aubin, France