



HAL
open science

Modélisation micromécanique des élastomères chargés

Farid Khedimi

► **To cite this version:**

Farid Khedimi. Modélisation micromécanique des élastomères chargés. Mécanique [physics.med-ph]. Université Aix-Marseille I, 2011. Français. NNT : . tel-00628202v2

HAL Id: tel-00628202

<https://theses.hal.science/tel-00628202v2>

Submitted on 25 Oct 2011

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

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

UNIVERSITE DE PROVENCE AIX-MARSEILLE I

THÈSE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE AIX-MARSEILLE I

Discipline : MECANIQUE

Option : SOLIDES

présentée et soutenue publiquement

par

Farid KHEDIMI

le 08 juillet 2011

**MODÉLISATION MICROMÉCANIQUE DES
ÉLASTOMÈRES CHARGÉS**

Directeurs de thèse :

Adnane BOUKAMEL – Stéphane BOURGEOIS

Avec l'encadrement de Stéphane Lejeunes

JURY

Mr DOGUI Abdelwaheb	Professeur, Ecole nationale d'ingénieurs de Monastir	Président
Mr AHZI Saïd	Professeur, Université Louis Pasteur, Strasbourg	Rapporteur
Mr LAIARINANDRASANA Lucien	Enseignant-Chercheur, Ecole des Mines de Paris	Rapporteur
Mr CHRISTIAN Hochard	Professeur, Université Aix-Marseille I	Examineur
Mr FOND Christophe	Professeur, Université Strasbourg I	Examineur
Mr BOUKAMEL Adnane	Professeur, Ecole Hassania des travaux publics Casablanca	Dir. Thèse
Mr BOURGEOIS Stéphane	Maître de conférence, Ecole Centrale Marseille	Co-directeur
Mr LEJEUNES Stéphane	Ingénieur de recherche, LMA-CNRS	Invité

UNIVERSITE DE PROVENCE AIX-MARSEILLE I

THÈSE

pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE AIX-MARSEILLE I

Discipline : MECANIQUE

Option : SOLIDES

présentée et soutenue publiquement

par

Farid KHEDIMI

le 08 juillet 2011

**MODÉLISATION MICROMÉCANIQUE DES
ÉLASTOMÈRES CHARGÉS**

Directeurs de thèse :

Adnane BOUKAMEL – Stéphane BOURGEOIS

Avec l'encadrement de Stéphane Lejeunes

JURY

Mr DOGUI Abdelwaheb	Professeur, Ecole nationale d'ingénieurs de Monastir	Président
Mr AHZI Saïd	Professeur, Université Louis Pasteur, Strasbourg	Rapporteur
Mr LAIARINANDRASANA Lucien	Enseignant-Chercheur, Ecole des Mines de Paris	Rapporteur
Mr CHRISTIAN Hochard	Professeur, Université Aix-Marseille I	Examineur
Mr FOND Christophe	Professeur, Université Strasbourg I	Examineur
Mr BOUKAMEL Adnane	Professeur, Ecole Hassania des travaux publics Casablanca	Dir. Thèse
Mr BOURGEOIS Stéphane	Maître de conférence, Ecole Centrale Marseille	Co-directeur
Mr LEJEUNES Stéphane	Ingénieur de recherche, LMA-CNRS	Invité

*A mon père,
A ma mère,
A mes soeurs et mes frères,
A ma chère Emna,
A mes amis, ...*

Remerciements

Ce travail a été réalisé au sein l'équipe « Modèles numériques » du Laboratoire de Mécanique et d'Acoustique de Marseille. La thématique des élastomères chargés a fait l'objet de plusieurs travaux de recherche au sein de notre laboratoire (LMA), ce travail de thèse est donc une sorte de continuité mais visant un objectif particulier à savoir « l'aspect microstructure » et son influence sur le comportement macroscopique des élastomères chargés. C'est un travail de toute une équipe.

J'adresse mes premiers remerciements à mon directeur de thèse Adnane Boukamel. J'ai eu un grand plaisir à travailler avec toi. Merci de m'avoir donné l'occasion de travailler sur ce sujet passionnant. J'aimerais exprimer toute ma reconnaissance à Stéphane Lejeunes qui a contribué d'une façon significative à cette thèse. Tu m'as aidé énormément depuis mon stage de Master. Ta disponibilité, ta gentillesse, ton indulgence, ton bon humeur et tes compétences ont permis à mon projet de thèse de voir enfin le jour. Je remercie Stéphane Bourgeois. J'ai appris plein de choses avec toi que ce soit sur le plan scientifique ou humain. Tes compétences et ta disponibilité m'ont aidé énormément pour avancer et finaliser mon sujet de thèse.

Je remercie toutes les personnes que j'ai pu côtoyer durant cette période au sein de l'équipe « Modèles Numériques », et qui ont, de près ou de loin, participé au bon déroulement de ce travail. En particulier, je remercie mes collègues doctorants : Gregory Antoni, Jimwang Shao, François Guinot , Julien Pacull, Thienan N Guyen Van et Roy Saad.

Je tiens à remercier aussi les membres du jury d'avoir accepté d'examiner mes travaux. Merci à Messieurs Said Ahzi et Lucien Laiarinandrasana d'avoir bien voulu rapporter sur ce manuscrit, ainsi qu'à Monsieur Abdelwaheb Dogui qui m'a fait l'honneur d'être président de mon jury. Je remercie également Messieurs Christian Hochard et Christophe Fond d'avoir accepté de faire partie des membres de jury et d'avoir examiné mes travaux.

Pour finir, je remercie sincèrement mes parents, mes frères et soeurs pour leur soutien. Merci à ma chère Emna Mejjaouli de m'avoir aidé et encouragé, merci pour ta patience, merci à toi et à ta famille.



Table des matières

Introduction

Chapitre I

Généralités sur les élastomères chargés
--

I.1	Introduction	7
I.2	Les charges	8
I.2.1	Les charges inactives	8
I.2.2	Les charges actives ou agents renforçants	9
I.2.3	Propriétés des charges	11
I.2.4	Morphologie d'un élastomère chargé	14
I.3	Mise en œuvre	18
I.3.1	Obtention du caoutchouc naturel	18
I.3.2	Vulcanisation et réticulation dans un élastomère	19
I.4	Mécanismes de comportement	19
I.4.1	Comportement statique : élasticité caoutchoutique ou élasticité entropique	20
I.4.2	Comportement endommageable, phénomènes irréversibles	21
I.4.3	Comportement dynamique	23
I.4.4	Influence de la température	26

I.5 Conclusion	27
--------------------------	----

Chapitre II

Outils pour la modélisation des élastomères chargés

II.1 Introduction	31
II.2 Quelques modèles hyperélastiques	31
II.3 Modèles rhéologiques en grandes déformations	33
II.3.1 Etats intermédiaires	33
II.3.2 Quelques modèles rhéologiques	34
II.3.3 Approche intégrale	35
II.4 Modèles basés sur la physique statistique	36
II.4.1 Modèle de Neo Hooke	37
II.4.2 Modèle de Arruda	37
II.4.3 Modèles micro-physiquement motivés	38
II.5 Modèles basés sur l'homogénéisation	41
II.5.1 Introduction	41
II.5.2 Estimations issues des travaux d'Einstein	42
II.5.3 Homogénéisation en petites déformations	44
II.5.4 Grandes déformations	48
II.6 Conclusion	51

Chapitre III

Modélisation à une échelle mésoscopique : agglomérat + gomme

III.1 Préliminaires	55
III.2 Introduction	55
III.3 Modèles considérés	58
III.4 Influence du contraste de raideur des phases	61
III.5 Pertinence de la modélisation 2D-3D	63
III.6 Analyse de l'isotropie	65
III.7 Influence du taux de charge	66
III.8 Influence de la surface spécifique	68
III.9 Bilan de la modélisation mésoscopique	71

Chapitre IV

Modélisation à une échelle microscopique : charges élémentaires + élastomères liés

IV.1	Introduction	75
IV.2	Modèles considérés	77
IV.3	Cas de l'élasticité linéaire	83
IV.3.1	Caractère homogénéisable des VER	83
IV.3.2	Isotropie dans le cas périodique	86
IV.4	Cas de grandes déformations	87
IV.4.1	Analyse de la convergence en fonction du maillage	87
IV.4.2	Analyse de l'influence des paramètres matériaux	89
IV.4.3	Analyse de l'influence de la morphologie	94
IV.5	Bilan de la modélisation microscopique	99

Conclusion générale

Bibliographie

Table des figures

Liste des tableaux

Annexes

Annexe A

Grandes déformations : rappel

A.1	Gradient de déformation	122
A.2	Mesure de la déformation	123
A.3	Vitesse de déformation	124
A.4	Description des contraintes	125
A.5	Hypothèse des petites perturbations	125

Annexe B

Une toolbox Abaqus pour le calcul de propriétés effectives de milieux hétérogènes

B.1	Introduction	128
B.2	Problème de localisations sur le Volume Élémentaire Représentatif	129
B.2.1	Petites déformations	129
B.2.2	Grandes déformations	131

B.2.3	Une formulation unifiée pour la mise en oeuvre dans Abaqus	132
B.3	Implémentation et mode d'emploi	132
B.3.1	Utilisation	133
B.3.2	Moteurs de génération des conditions	134



Introduction

Les matériaux élastomères sont fortement répandus dans les secteurs industriels tels que l'aéronautique, l'automobile, le secteur alimentaire, le bâtiment, etc. Cette multiplicité d'utilisation des élastomères provient de caractéristiques mécaniques très intéressantes dont : la capacité à subir de grandes déformations, le caractère amortissant, la résistance à la fatigue, ... Ces matériaux, sont de plus en plus utilisés pour des pièces techniques nécessitant une grande maîtrise de leur comportement. Par exemple, les rotors d'hélicoptères modernes font appel à des composants élastomériques qui peuvent servir soit de palier élastique, soit d'amortisseur de vibration et qui sont étroitement liés à la sécurité. La demande croissante de ce type d'applications pousse les industriels du secteur à développer des outils de conception de plus en plus performants et qui nécessitent donc une meilleure compréhension de ce type de matériau. En effet, les élastomères exhibent un comportement complexe qui est dépendant des paramètres de chargement (amplitude, fréquence), de la température et qui présentent des effets bien particuliers : effet Mullins, tixotropie, fort auto-échauffement et couplage thermo-chimio-mécanique. Cette complexité semble principalement être due à leurs microstructures.

Afin de contrôler les propriétés mécaniques et physiques de ces matériaux, on peut jouer classiquement sur deux aspects : la nature de la base élastomérique (caoutchouc naturel ou synthétique) et la nature d'éventuelles charges renforçantes (noir de carbone, silice, ...). Si les composants qui forment ces matériaux sont en apparence simples en terme de comportement,

leur association conduit à des comportements beaucoup plus complexes que ce que donnerait une simple loi des mélanges. Les interactions physico-chimiques, charges-matrice et charges-charges ainsi que la morphologie de ce type de matériau sont à l'origine de cette complexité. En outre, ces matériaux présentent des microstructures différentes suivant l'échelle d'observation. On observe des agrégats de particules dont la taille varie de 100 à 300 nm, des agglomérats formés d'agrégats dont la taille est supérieure à 10 microns, des réseaux de particules ou d'agrégats qui peuvent parcourir le matériau dans son ensemble et ce à des taux de charge relativement faibles.

La détermination du comportement macroscopique d'une façon rigoureuse passe nécessairement par une analyse micromécanique afin de faire intervenir les phénomènes micro-structuraux et les interactions. Cependant ce type d'analyse représente à l'heure actuelle un défi majeur car il faut préalablement définir les phases en présence ainsi que la microstructure considérée. En effet, le premier aspect dépend fortement du procédé de mise en œuvre, on trouve par exemple différentes natures de gommes : élastomère, élastomère lié, élastomère occlus,... le second aspect dépend de l'échelle considérée. Il semble donc illusoire de pouvoir prédire le comportement macroscopique dans toute sa complexité en partant directement d'images obtenues par observations microscopiques à une échelle donnée. En effet, il est nécessaire de considérer ce matériau comme un assemblage de structures de différentes tailles : agrégats, agglomérats, réseaux de charge,...

L'objectif de ce travail est de déterminer le comportement macroscopique d'un élastomère silicone chargé de silice en tenant en compte de certains mécanismes d'interactions, et d'aspects multi-échelles. Nous proposons dans un premier temps, de considérer un agglomérat de charge noyé dans une gomme élastomérique. Dans un second temps, nous considérons un modèle d'agglomérat constitué de particules de silice interconnectées par une fine couche de gomme. Les simulations numériques associées à ces modèles sont réalisées à l'aide d'éléments finis et sont basées sur des méthodes d'homogénéisation numériques en appliquant des conditions de localisation de type PBC⁽¹⁾, KUBC⁽²⁾ et SUBC⁽³⁾. Il s'agit donc d'un travail exploratoire basé essentiellement sur ces simulations numériques afin de mieux comprendre le rôle de la microstructure et les interactions en jeux.

(1). Periodic Boundary Conditions

(2). Kinematic Uniform Boundary Conditions

(3). Static Uniform Boundary Conditions

Ce mémoire de thèse est constitué de 4 chapitres. Le premier chapitre est consacré à la description des élastomères chargés, d'un point de vue physique, chimique et mécanique. On présente les propriétés des charges renforçantes, la mise en œuvre des élastomères et les caractéristiques de leur comportement en statique et en dynamique.

Le deuxième chapitre traite de l'état de l'art de la modélisation des élastomères. Les approches de modélisation sont classées essentiellement en trois catégories à savoir l'approche phénoménologique, l'approche micro-physiquement motivée et les approches dérivant de l'homogénéisation.

Le troisième chapitre est consacré à la modélisation micromécanique d'un élastomère silicone chargé de silice. Il s'agit d'un élastomère idéalisé constitué d'une matrice dense élastique et d'agglomérat(s) viscoélastique(s). On cherche à analyser l'influence des paramètres de comportement, de morphologie et d'interaction de ce modèle.

Le dernier chapitre est consacré à la modélisation d'un agglomérat de charge de silice à une échelle microscopique. Ce modèle suppose que l'agglomérat est constitué de particules de charge rigides interconnectées par une fine couche d'élastomère lié faiblement réticulé. Pour ce faire, des motifs de VER sont générés de manière aléatoire à base de polygones de Voronoï représentant les grains de silice. On cherche à étudier l'influence des paramètres microstructuraux et à appréhender les mécanismes de dissipation dus au confinement.

CHAPITRE

I

Généralités sur les élastomères chargés

Ce chapitre a pour objet la description d'élastomères chargés d'un point de vue chimique, physique et mécanique. Il regroupe un certain nombre d'observations expérimentales, issues de divers travaux de recherche, nous permettant d'identifier les principaux facteurs influant sur le comportement. Ces observations nous guideront, dans la suite au choix d'un Volume Élémentaire Représentatif adapté à ce type de matériau.

PLAN DU CHAPITRE I

I.1	Introduction	7
I.2	Les charges	8
I.2.1	Les charges inactives	8
I.2.2	Les charges actives ou agents renforçants	9
I.2.3	Propriétés des charges	11
I.2.4	Morphologie d'un élastomère chargé	14
I.3	Mise en œuvre	18
I.3.1	Obtention du caoutchouc naturel	18
I.3.2	Vulcanisation et réticulation dans un élastomère	19
I.4	Mécanismes de comportement	19
I.4.1	Comportement statique : élasticité caoutchoutique ou élasticité entropique	20
I.4.2	Comportement endommageable, phénomènes irréversibles	21
I.4.3	Comportement dynamique	23
I.4.4	Influence de la température	26
I.5	Conclusion	27

I.1 Introduction

Un élastomère peut être vu comme un regroupement de chaînes macromoléculaires. Une chaîne est constituée d'une multitude de monomères. On entend par monomère un enchaînement de motifs simples et identiques, qui sont formés d'une succession de segments carbonés. Les atomes constitutifs d'un monomère sont essentiellement le carbone et l'hydrogène. La composition du caoutchouc naturel non vulcanisé est un hydrocarbure dont le monomère de base est $(C_5H_8)_n$, nommé l'isoprène (voir figure I.1). La synthèse de cette molécule en laboratoire est à l'origine du caoutchouc synthétique. A l'état naturel, les chaînes sont repliées sur elles mêmes.

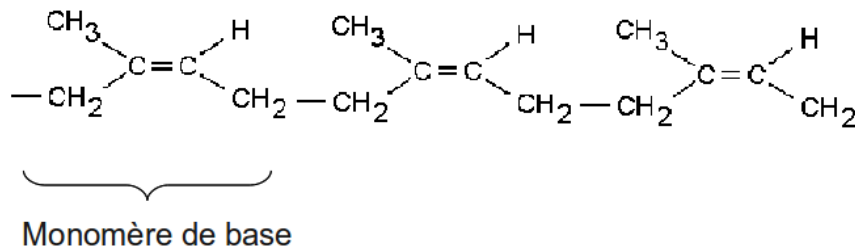


FIGURE I.1 – Monomère de base d'une chaîne macromoléculaire

Sous sollicitations, elles ont la possibilité de s'allonger d'une façon significative en supportant de très grandes déformations.

Les chaînes polymériques sont reliées entre elles par des points de jonction appelés points de réticulation. Ces points de réticulation sont créés suite à une réaction chimique qui est activée par un catalyseur. Dans la plupart des cas, il s'agit de soufre.

On appelle vulcanisation le processus de création de liaisons chimiques entre les chaînes macromoléculaires pour former un réseau tridimensionnel stable. La vulcanisation et les enchevêtrements moléculaires assurent la cohésion du matériau.

Les élastomères possèdent des propriétés physiques et chimiques très complexes. Les notions générales de chimies relatives à ces matériaux sont assez abondantes dans la littérature. En particulier, il est communément admis que le nombre de ponts (aux points de réticulation), leur longueur, ainsi que leur répartition influent considérablement sur les propriétés mécaniques.

La réponse mécanique de ces matériaux dépend fortement de la température. La figure I.2 décrit schématiquement l'évolution du module d'élasticité en fonction de la température. En dessous de la température de transition vitreuse, on observe un plateau qui correspond à un état vitreux caractérisé par une forte rigidité. Une chute brusque des propriétés mécaniques se manifeste au

voisinage de la température de transition vitreuse. Ce phénomène est dû à la disparition des liaisons entre les molécules. Au dessus de la température de transition vitreuse, le comportement des polymères est caoutchoutique et le matériau est souple.

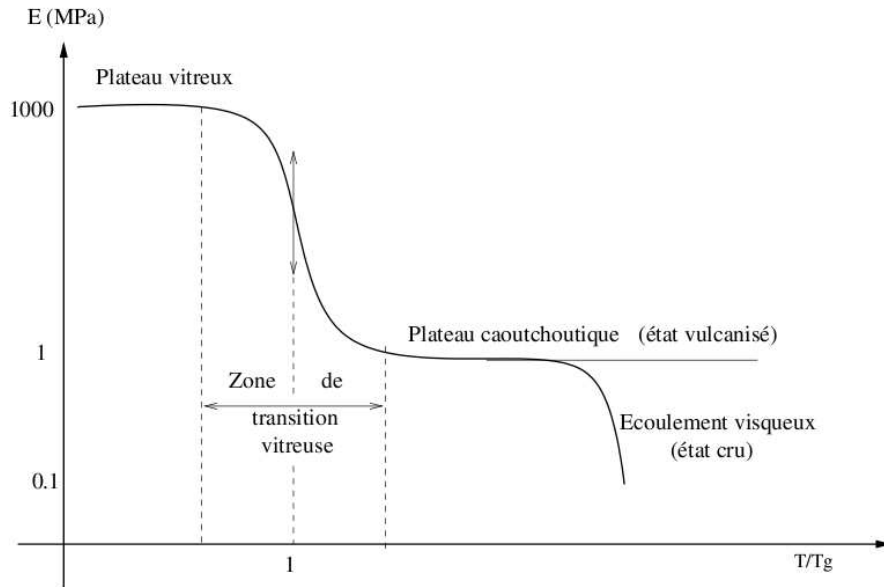


FIGURE I.2 – Variation du module d'élasticité d'un élastomère vulcanisé en fonction de la température [5]

I.2 Les charges

Afin d'optimiser l'ensemble des caractéristiques de l'élastomère, dans le cadre d'une application donnée, de nombreux additifs peuvent être incorporés. On parle alors d'élastomère chargé, dont la microstructure peut s'avérer complexe. On distingue généralement deux catégories d'additifs : les charges actives et les charges inactives.

I.2.1 Les charges inactives

Les charges inactives n'agissent pas directement sur les propriétés mécaniques. Parmi ces charges, on peut citer :

- le carbonate de calcium : il améliore la processabilité ;
- les kaolins : ils sont utilisés comme extenders ;

- l'oxyde de zinc : il améliore le processus de vulcanisation ;
- les talcs : ils augmentent la perméabilité ;
- les plastifiants : ils permettent essentiellement de faciliter le glissement entre les chaînes et les différentes opérations de mise en forme et de mélangeage. Ils améliorent aussi la dispersion des charges et diminuent la température de mélangeage. Un plastifiant peut être soit à base d'huile minérale, soit à base de produits d'origine animale ou de synthèse.
- les agents de protection : ils permettent de maintenir le plus possible l'élastomère en bon état en évitant la dégradation précoce. La nature du milieu (température, rayonnement, etc) est la plupart du temps à l'origine d'une altération et/ou d'un vieillissement de l'élastomère. Des antioxydants et antiozonants sont utilisés pour palier aux attaques de l'ozone et de l'oxygène. Les élastomères sont aussi sensibles au rayonnement ultraviolet. De ce fait, les conditions de stockage nécessitent certaines précautions.

I.2.2 Les charges actives ou agents renforçants

Les agents renforçants sont principalement constitués par de charges renforçantes sous forme de particules. Le renforcement par des charges permet d'élargir le domaine d'application des élastomères.

On distingue essentiellement deux types de charges dans le secteur de l'industrie : les noirs de carbone et les silices. Ces deux éléments ont des rôles équivalents et sont choisis comme éléments renforçants en fonction de leur compatibilité avec l'élastomère de base. Ces additifs influent sur la rigidité, la dissipation d'énergie (l'amortissement) et la résistance à la rupture. Le caractère renforçant des charges provient de l'interaction charge-charge et charge-matrice. Ces interactions ont des origines chimiques et physiques. On distingue différents types de liaisons telles que les liaisons covalentes et les liaisons faibles de type van der Waals et hydrogène.

Dans le paragraphe suivant, on présente les charges actives les plus utilisées pour le renforcement des élastomères. Dans l'objectif de motiver les modélisations à venir, on explique les origines de ce renforcement à travers une analyse de la structure des charges et des mécanismes d'interaction de type charge-charge et charge-matrice.

– Les charges de silice :

On distingue deux catégories : la silice naturelle et synthétique. La silice naturelle est issue des roches formées par sédimentation d'organismes variés. Dans le cas synthétique, on trouve essentiellement deux familles de silice :

- la silice précipitée obtenue en milieu aqueux par l'action d'un acide. C'est la plus répandue

dans le renforcement des élastomères ;

- la silice thermique obtenue par réduction à haute température du tétrachlorure de silicium et oxydation du silicium de silice.

Le procédé de réduction chimique à haute température permet d'obtenir des silices ayant différentes caractéristiques du point de vue surface spécifique, taille des particules et présence d'agglomération en agissant sur la concentration en tétrachlorure de silicium, la température de fusion et le temps de la réaction. Selon le procédés de mise en œuvre, les particules de

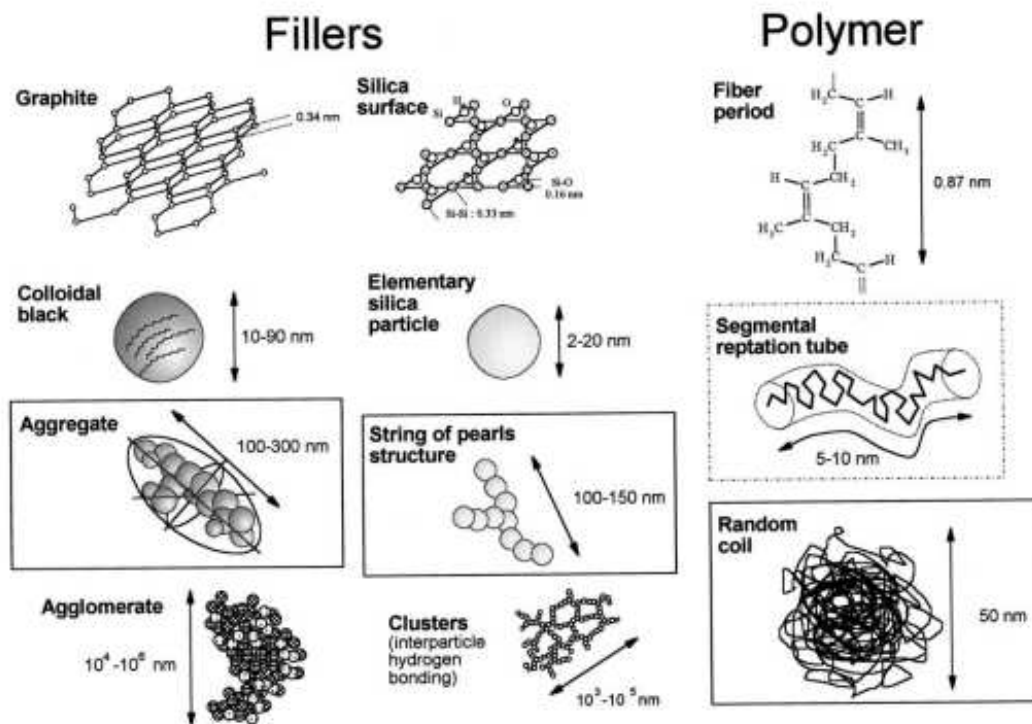


FIGURE I.3 – Différentes structures des charges, d'après [31]

silice peuvent former différentes structures à différentes échelles. On peut trouver la particule de silice comme structure primaire, ou comme agrégat dont la taille peut aller de 40nm à 100nm. Le regroupement de ces agrégats donne naissance à un agglomérat. Les agrégats sont liés entre eux par des liaisons faibles de type van der Waals. La taille d'un agglomérat varie de quelques centaines de nanomètres à 200 micromètres (voir figure I.3).

Quand les interactions entre les particules formant l'agrégat sont très fortes, on n'obtient pas une bonne dispersion de la silice dans la matrice. Les charges de silice peuvent faire l'objet d'un traitement de surface durant lequel on recourt parfois à des agents de couplage pour créer

des liaisons covalentes de type matrice-charge. Ce traitement influe essentiellement sur les interactions charge-charge et charge-matrice. Un moyen pour traduire le niveau d'interaction matrice-charge est de déterminer le taux de l'élastomère lié (cette notion est définie par la suite). La morphologie de la silice est très proche de celle du noir de carbone, c'est la nature chimique qui les distingue. L'interaction du noir de carbone avec la matrice élastomérique est spontanée alors qu'il faut un agent de couplage dans le cas de silice. Le silane est l'agent de couplage communément utilisé pour assurer la compatibilité entre les propriétés surfaciques de la silice et les chaînes d'élastomère.

– **Les charges de noir de carbone :**

Les charges de noirs de carbone sont très utilisées pour les pneumatiques, elles sont obtenues par combustion incomplète d'hydrocarbures. Comme pour la silice, ces charges se présentent sous différentes formes : particules, agrégats et agglomérats. La particule de noir de carbone peut être assimilée à une sphère dont la taille varie de 10 à 45nm. Généralement, une particule de noir de carbone a tendance à interagir avec une autre particule pour former un agrégat [3]. Cette interaction entre les particules au sein d'un agrégat dépend essentiellement du procédé de fabrication (mélangeage).

La taille d'un agrégat de noir de carbone varie entre 100 et 200nm. Le nombre de particules par agrégat varie entre 20 et 200 particules.

Les propriétés chimiques du noir de carbone et de la matrice élastomérique sont similaires de sorte que l'incorporation de ces charges dans la matrice est aisée [47].

I.2.3 Propriétés des charges

Certaines propriétés des particules de charge influent d'une façon significative sur la réponse macroscopique de l'élastomère. Ces propriétés ont fait l'objet de nombreux travaux de recherche qui tentent de caractériser leurs influences. Dans la littérature, les auteurs s'accordent sur l'influence prépondérante de certains paramètres :

– **la surface spécifique**

La surface spécifique est un paramètre important caractérisant la microstructure des charges : c'est la surface de silice disponible pour être mise en contact avec l'élastomère rapporté à la masse de la particule. La surface spécifique est évaluée en m^2g^{-1} . L'évaluation de la surface spécifique nécessite un soin particulier et des techniques pointues. L'absorption d'iode est un moyen pour mesurer la surface spécifique de la silice. Toutefois, elle n'est pas précise. La méthode de Cethyl Trimethyl Amonium Bromide (CTAB) est une autre alternative permettant d'évaluer l'aire de la surface du silice accessible par l'élastomère. Elle suppose que la

surface de la silice est sphérique. Une autre méthode basée sur l'absorption d'azote appelée BET mesure l'aire de la surface de contact totale en tenant compte de la porosité du noir de carbone. On cite aussi la méthode « Statistical Thickness Surface Area »(STSA) [54]. Ces

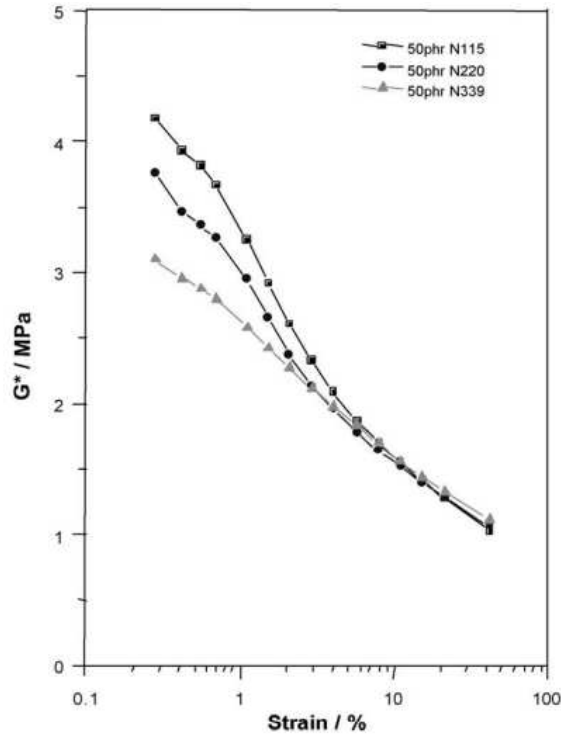


FIGURE I.4 – Influence de la surface spécifique, cas du noir de carbone [21]

différentes méthodes ne donnent pas toujours avec précision la surface spécifique. En effet, des caractéristiques physiques relatives aux charges peuvent être source d'erreur.

Le caractère renforçant n'est pas lié uniquement à la surface spécifique. En effet, les silices pyrogénées ont une surface spécifique pouvant atteindre $400 \text{ m}^2/\text{g}$ mais elles sont moins renforçantes que les noirs de carbone de surface spécifique de quelques m^2/g à $150 \text{ m}^2/\text{g}$ [4].

Des résultats présentés par J. Fröhlich et al. [21] montrent l'influence de la surface spécifique sur le module dynamique pour des charges de noirs de carbone. La figure I.4 montre l'influence de ce paramètre pour trois types de noirs de carbone désignés par N 115, N 220 et N 339 correspondant respectivement aux surfaces spécifiques suivantes : 128, 111, et $92 \text{ m}^2/\text{g}$. La figure montre qu'à faible niveau de déformation, le module dynamique s'accroît avec la surface spécifique. À taux de charge fixe, lorsque le diamètre moyen des particules primaires diminue, le nombre de particules et la surface spécifique augmentent et la distance entre agrégats diminue. Ainsi, la mise en réseau des particules est plus prononcée lorsque la surface spécifique augmente. De ce fait, le terme « renforcement » est lié aux phénomènes

d'interaction charge/matrice mais aussi charge/charge.

– **la chimie de surface :**

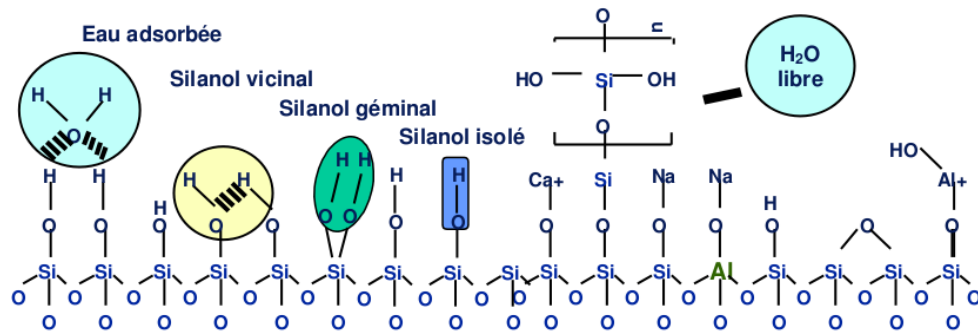


FIGURE I.5 – Etat chimique de la surface du silice [4]

La chimie de surface induit une activité de surface. Différents groupes chimiques se situant sur la surface des charges conditionnent cette activité (voir figure I.5). Les interactions de type charge-charge et charge-élastomère dépendent entre autre de l'énergie de surface. La présence de silanols sur la surface de la silice est à l'origine de l'incompatibilité avec les chaînes macromoléculaires de l'élastomère. Toutefois, les silanols favorisent l'interaction de type charge-charge pour la création des agrégats et agglomérats. Dans la littérature, on mentionne deux types de forces de surface : les forces dispersives et les forces spécifiques. Dans l'article de J.Fröhlich et al. [21], on trouve une analyse de l'influence de l'activité de la surface des charges de noirs de carbone qui ont subi un traitement thermique à haute température.

– **la structure :**

La structure des particules de charge est un paramètre important. Elle influe sur les différentes interactions dans l'élastomère chargé. La finesse des particules, leurs arrangements, leurs formes et leurs dimensions sont des éléments parmi d'autres qui décrivent cette structure. Dans le cas du noir de carbone, d'un type à un autre, on a une structure différente. Certains travaux [28] montrent des images permettant de décrire la structure des agrégats de noir de carbone en trois dimensions. Il s'agit d'une structure ramifiée de type « fractales » (voir figure I.6) permettant une augmentation de la surface de contact avec la gomme élastomérique ce qui améliore d'avantage l'effet de renforcement.

J. Fröhlich et al. [21] cherchent à comprendre les mécanismes de renforcement de l'élastomère. Ils dressent une liste exhaustive des paramètres qui sont les acteurs principaux dans le mécanisme de renforcement. D'une manière générale, les facteurs influant le renforcement de l'élas-

tomère sont :

- la taille des particules et/ou la surface spécifique,
- la structure ou le degré d'irrégularité de la charge qui joue un rôle essentiel lors du mouvement des chaînes d'élastomère sous un chargement,
- l'activité de surface, un facteur important à l'égard de l'interaction charge-charge et charge-matrice.

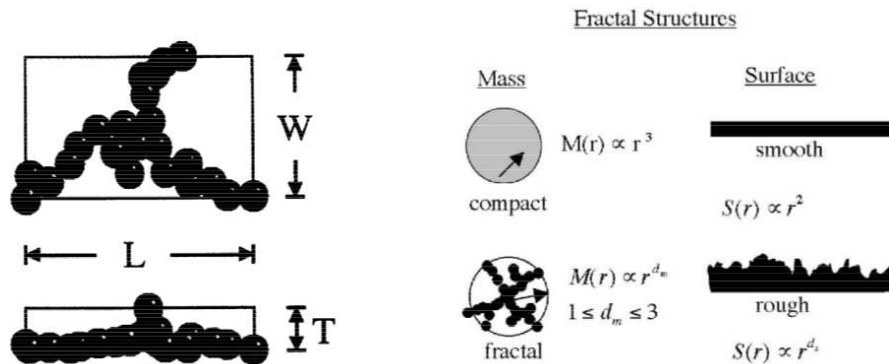


FIGURE I.6 – Structure ramifiée d'agrégat de noir de carbone [28]

I.2.4 Morphologie d'un élastomère chargé

L'étude de la morphologie des charges renforçantes a fait l'objet de plusieurs études, car contrôler la forme des particules de charges lors de leur regroupement est un élément essentiel pour prévoir les performances du matériau élastomérique. S. Kohjiya et al. [27] ont travaillé sur la visualisation de l'état de dispersion en 3D des charges renforçantes dans la matrice élastomérique. Les outils d'observation ont une résolution de l'ordre de l'angström avec la technique dite 3D-TEM.

Le renforcement par la silice donne naissance à des géométries complexes, en allant de la particule élémentaire sphérique à des agrégats ou des agglomérats et des « clusters » (voir figure I.7). Des liaisons de type électrostatique, hydrogène et chimique sont à l'origine de ces différentes structures dont la taille varie entre 50 et 500 nm [31]. Les charges de silices se distinguent par leurs surfaces spécifiques variant d'après J. L. Leblanc [31], entre 50 et $380 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ mesurée par l'absorption du nitrogène.

Les charges de silice seules mettent en place un réseau solide et une faible interaction avec la matrice élastomérique. Plus des additifs sont utilisés, plus des liaisons chimiques entre la surface des charges de silice et l'élastomère sont formées.

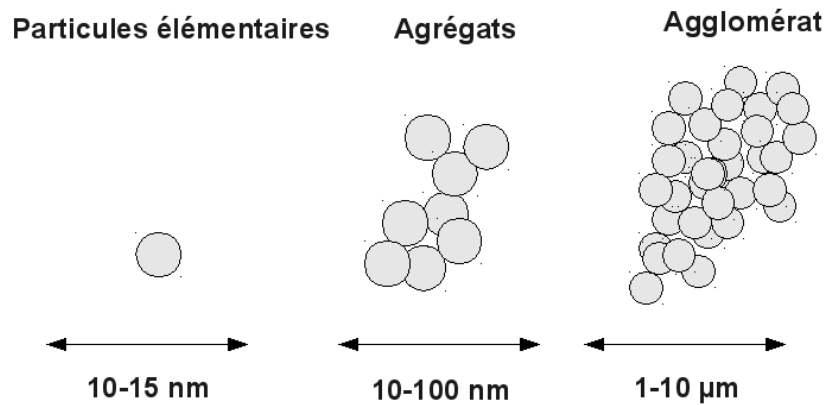


FIGURE I.7 – Différentes échelles de taille des charges

Les mécanismes d'interaction charge-charge ne sont pas encore bien déterminés. Les auteurs privilégient souvent l'hypothèse de l'existence d'une mince couche de l'ordre du nanomètre entre les charges où la mobilité des chaînes moléculaires est restreinte.

Les charges interagissent chimiquement avec la gomme et forment une structure en réseau dont la nature peut influencer sur le comportement global. Parmi les paramètres influants on peut citer :

– **la gomme ocluse** :

La dispersion des charges dans la matrice dépend du temps de malaxage.

La microstructure montre qu'une quantité d'élastomère peut s'insérer dans les vides interparticulaires. On l'appelle partie ocluse immobilisée. Elle est a priori isolée, et ne contribue pas à la déformation macroscopique.

Des études très fines tiennent compte de ce phénomène qui aura lieu après le malaxage par exemple pour estimer la fraction effective de charge à partir de la fraction réelle.

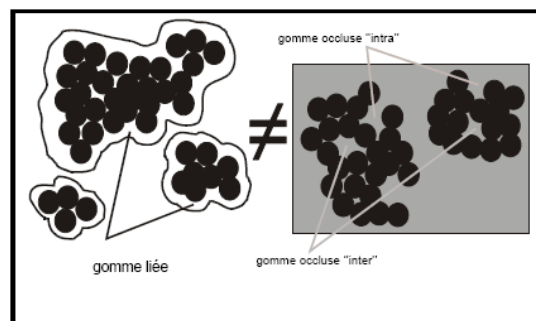


FIGURE I.8 – Gomme ocluse, gomme liée

– **la gomme liée :**

D'autres cas sont aussi observés montrant l'existence d'une couche d'élastomère de forte raideur, parfaitement collée aux charges, qui ne peut être extraite : c'est le polymère lié (voir figure I.8).

La nature des interactions entre la matrice et la charge est à l'origine de la partie d'élastomère lié. Dans la littérature, on mentionne que la quantité d'élastomère lié dépend de la fraction volumique, de la nature de la charge, de la surface spécifique et de l'énergie de surface.

Des investigations diélectriques, dans certains travaux de recherche, confirment l'existence d'une couche d'élastomère entre les particules de charge. Cette mince couche d'élastomère entre les particules fait l'objet d'une étude réalisée par G.Heinrich et al. [25] qui tente de comprendre les mécanismes de renforcement et de souligner l'effet de la présence de cette mince couche. La figure I.9 est une représentation schématique de cet effet avec ξ , d et Δ ,

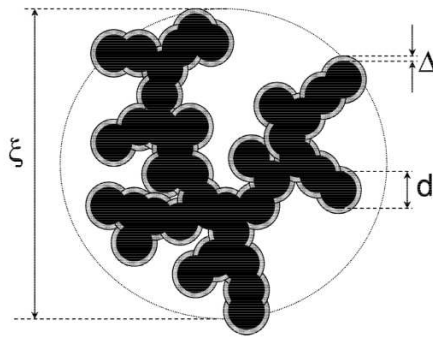


FIGURE I.9 – Influence de la couche mince entre les particules de charges [25]

qui désignent respectivement la taille du réseau de charges, taille de particule élémentaire et l'épaisseur de la couche mince autour des particules

L'effet d'une telle couche immobilisée entre les particules de charges, est prise en compte comme renforcement par une loi de puissance du module d'élasticité proposé par G. Heinrich, dépendant de la concentration des charges φ , de la taille des particule d et de l'épaisseur de la couche en question Δ :

$$G' \cong G_p \left(\frac{(d + 2\Delta)^3 - 6d\Delta^2}{d^3} \varphi \right)^{\frac{3+d_{f,B}}{d-d_f}}, \quad (\text{I.1})$$

avec $d_f, d_{f,B}$: paramètres caractérisant la structure de l'agrégat.

Johann G. Meier et Manfred Klüppel [38] signalent la présence systématique d'une couche d'élastomère d'épaisseur de l'ordre de 2 à 5 nm entre les particules adjacentes de noir de

carbone. Cette couche apparaît pendant la vulcanisation. L'arrangement morphologique des particules de noir de carbone est étudié par analyse de la dispersion de la permittivité diélectrique et de la conductivité électrique pour une large plage de fréquence.

– **les agrégats et les agglomérats :**

Dans un élastomère chargé, les particules de charges se présentent sous plusieurs formes. Les particules peuvent être isolées comme elles peuvent se regrouper. Pendant le malaxage, les particules de charges peuvent se regrouper en formant un agrégat. Ces derniers, à leur tour, peuvent se regrouper et donner naissance à des agglomérats. Des observations microscopiques mettent en évidence ces différentes structures. Les travaux de la littérature mettent en évidence l'influence du temps de mélangeage sur la dispersion des charges de silices et l'apparition d'un réseau de charges. Des techniques sont utilisées pour caractériser la dispersibilité de la silice avant son incorporation dans la matrice. Elles consistent à suivre l'évolution de la taille des agglomérats de charge en suspension dans l'eau et soumis à des ultrasons de puissance contrôlée [4].

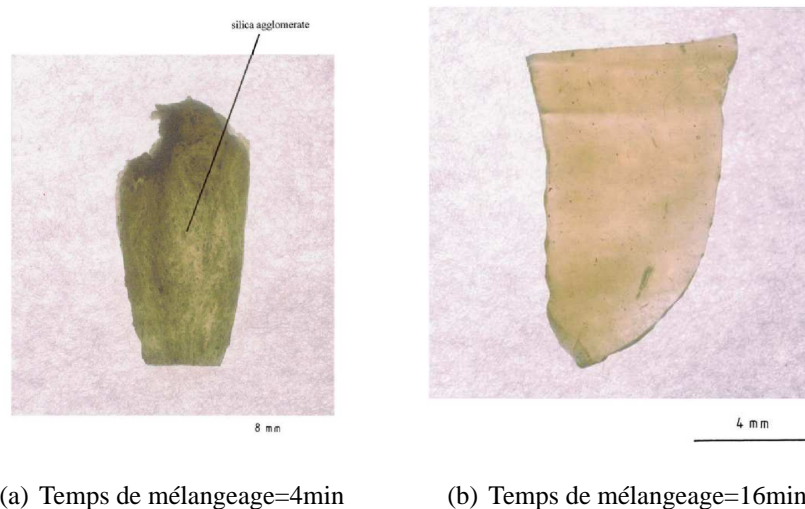


FIGURE I.10 – Echantillons d'élastomère chargé de silices à 60% [2]

Le procédé de fabrication et le temps de malaxage influent fortement sur la dispersion des charges dans la matrice (voir figure I.10). Ces éléments qui caractérisent la morphologie de la microstructure influent sur la réponse macroscopique.

Caoutchouc	36%
Protéine	1.5%
Glucides, résines, et sels	2.5%
Eau	60%

TABLE I.1 – Composition du latex indépendamment du lieu de plantation [5]

I.3 Mise en œuvre

I.3.1 Obtention du caoutchouc naturel

Dans ce paragraphe, on décrit le processus d'élaboration du matériau. Le caoutchouc naturel (NR) est extrait d'un arbre nommé l'Hevea Brasiliensis. Il est obtenu à partir du latex après avoir réalisé des saignées profondes de l'écorce de l'arbre. Le caoutchouc est extrait du latex après coagulation par une solution acide. On obtient des plaques qui peuvent être vendues comme latex concentré. Les zones humides et à basses altitudes où il y a de fortes précipitations constituent un cadre idéal pour la culture du latex. Utiliser ce matériau à base de latex à l'état brut pose certains problèmes d'écoulement à la température ambiante. La composition du latex est décrite par le tableau I.1. Le caoutchouc représente une concentration égale à 36% dans une solution aqueuse comportant des protéines, des glucides, des résines et des sels. Dans la littérature [4], on cite deux procédés d'obtention du caoutchouc naturel à partir du latex. Le choix du procédé dépend du type de produit fabriqué :

- l'ajout de l'acide formique ou de l'acide acétique permet la coagulation de globules de caoutchouc qui peuvent être extraits de la solution aqueuse, ils font ensuite l'objet d'un traitement spécifique avant la mise en forme ;
- les moules de certains produits sont plongés dans le latex. L'ajout d'ammoniaque stabilise le latex dans son état liquide pour être traité avant le moulage.

Des travaux de recherche ont permis d'aboutir à un procédé permettant de stabiliser le matériau : c'est le procédé dit la vulcanisation. La découverte de ce procédé est à la base du développement d'un secteur industriel important. Les industriels cherchent à optimiser la composition du matériau en fonction des applications. Après le mélangeage qui consiste à ajouter les différents additifs à la gomme, des procédés de mise en forme peuvent être utilisés. Parmi ceux-ci, on cite le moulage par injection, l'extrusion de profilés et le calandrage pour l'obtention des plaques minces.

I.3.2 Vulcanisation et réticulation dans un élastomère

Les chaînes macromoléculaires sont liées entre elles par des liaisons secondaires de type van der Waals d'énergie faible. De ce fait, le caoutchouc naturel a un caractère de fluide très visqueux. A l'état naturel et suite à une sollicitation, l'écoulement des chaînes les unes par rapport aux autres est inévitable. La découverte de Ch. Good Year (1839) du procédé de réticulation par le soufre, appelé vulcanisation, a permis la stabilisation du caoutchouc naturel afin de rendre son utilisation possible dans diverses applications. Des agents accélérateurs de vulcanisation sont aussi utilisés avec le soufre tels que les amines ou les guanidines. La réticulation permet la création de liaisons chimiques fortes entre les chaînes macromoléculaires donnant naissance à un réseau tridimensionnel stable. La vulcanisation et les enchevêtrements moléculaires assurent la cohésion du matériau permettant aussi d'éviter le glissement entre chaînes tout en conservant leur flexibilité. La distance moyenne entre deux jonctions est un paramètre qui peut aussi donner une idée sur le taux de réticulation. Plus cette distance est faible, plus le nombre de ponts de jonction est important. La vulcanisation s'effectue à une température entre 150 et 200 degrés

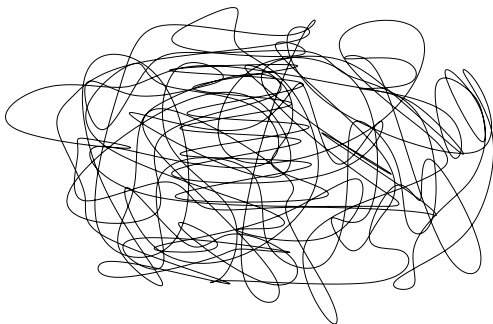


FIGURE I.11 – Pelotes statistiques de chaînes

[37]

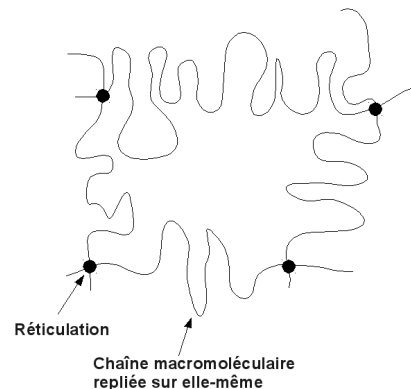


FIGURE I.12 – Réseau de chaînes

pendant une faible durée. C'est après la vulcanisation qu'on aboutit à un réseau tridimensionnel. Les paramètres liés à la vulcanisation affectent les propriétés de l'élastomère.

I.4 Mécanismes de comportement

On s'intéresse dans cette section aux principales caractéristiques qui gouvernent le comportement des élastomères chargés.

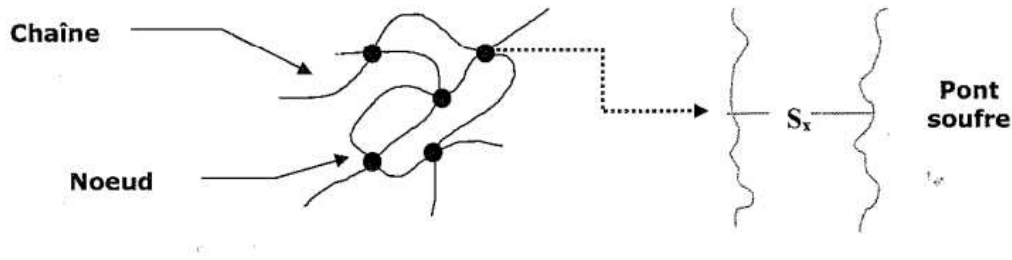


FIGURE I.13 – Vulcanisation au soufre : réseau tridimensionnel des chaînes dans l'élastomère [54]

I.4.1 Comportement statique : élasticité caoutchoutique ou élasticité entropique

Le comportement des élastomères non dissipatifs est communément modélisé par l'hyperélasticité. La détermination de la loi de comportement hyperélastique se fait par le biais d'une énergie libre spécifique notée Ψ .

L'assemblage des chaînes étant aléatoire et désordonné, une approche statistique permet de décrire la position ou « la conformation » la plus probable de la macromolécule en pelote statistique (voir figure I.11). L'énergie de déformation est directement liée à la variation de l'entropie du réseau de chaînes. La figure I.14 montre schématiquement la courbe contrainte - déformation pour un essai de traction. Des arguments thermodynamiques permettent de montrer que la réponse est pilotée par :

- une contribution due à la variation de l'énergie interne,
- une contribution provient de la variation de l'entropie.

La figure I.14 souligne la contribution de chaque terme. Dans le cas des élastomères, la contribution de l'entropie est très importante par rapport à celle de l'énergie interne. Suite à une sollicitation, les longues chaînes d'un réseau tridimensionnel constituant l'élastomère, se déforment de façon réversible. La force moléculaire de rappel due à la diminution de l'entropie (diminution du nombre de conformations possibles) est à l'origine de ce retour à la forme initiale. Dans la configuration non sollicitée, l'orientation et la distribution des chaînes macromoléculaires sont désordonnées et aléatoires. Chacune est repliée sur elle-même au repos. Sous sollicitation, le désordre des chaînes décroît et on obtient un arrangement orienté. Une analyse basée sur un calcul statistique permet de déterminer cette entropie (mesure de désordre) du réseau de chaînes. Dans la littérature, on parle ainsi de l'élasticité entropique.

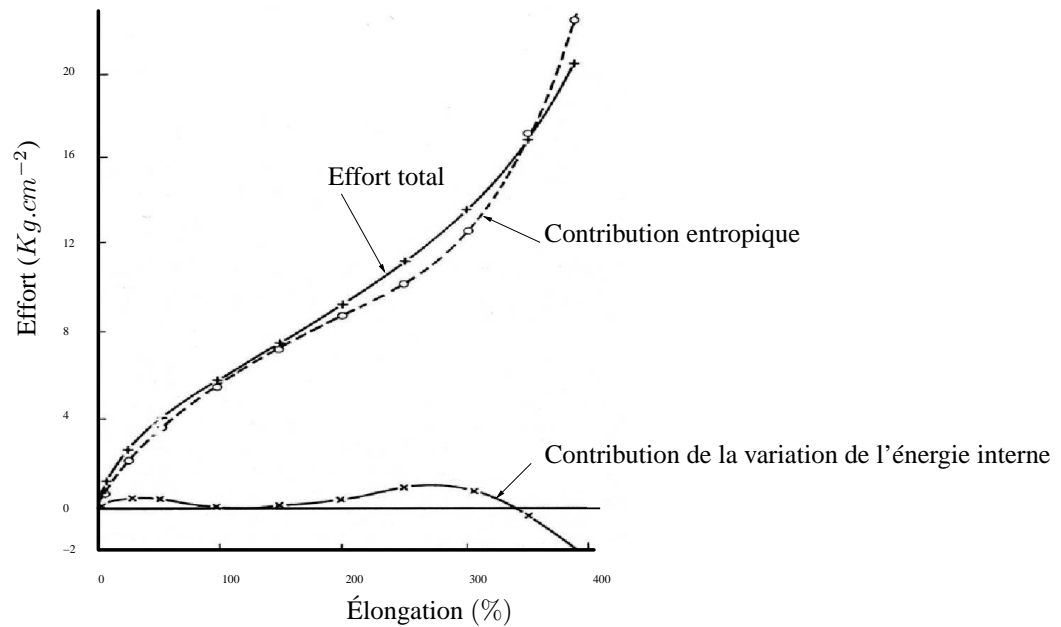


FIGURE I.14 – Contribution de l'entropie et de l'énergie interne à la force de traction en fonction de l'élongation [12]

I.4.2 Comportement endommageable, phénomènes irréversibles

On distingue principalement les effets suivants :

– l'effet mullins

Il consiste en un adoucissement du comportement après une première sollicitation. Une autre terminologie est utilisée pour désigner ce phénomène : l'accommodation. Dès le premier cycle de chargement, l'adoucissement apparaît. Il se stabilise après trois ou quatre cycles (voir figure I.15). Ce phénomène a été étudié pour la première fois par Mullins (1947). L'ef-

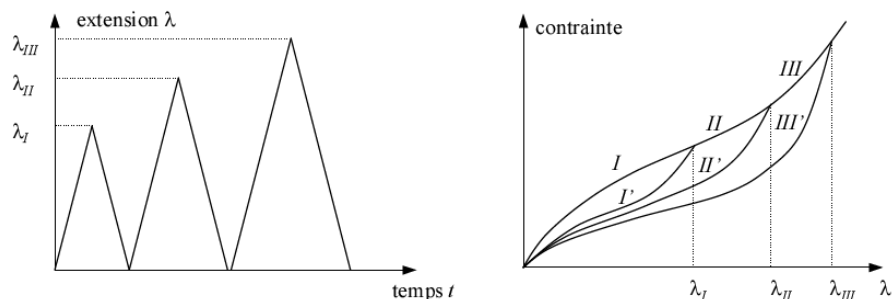


FIGURE I.15 – Effet Mullins

fet Mullins se manifeste plus ou moins fortement pour tous les élastomères chargés ou non

chargés. Diverses explications sont proposées. Certains l'associent à un endommagement des liaisons entre les chaînes ou une rupture des liaisons à faible énergie. D'autres proposent des modèles phénoménologiques sans interprétation micromécanique. La figure I.16 est une schématisation traduisant à l'échelle microscopique l'origine de l'effet Mullins.

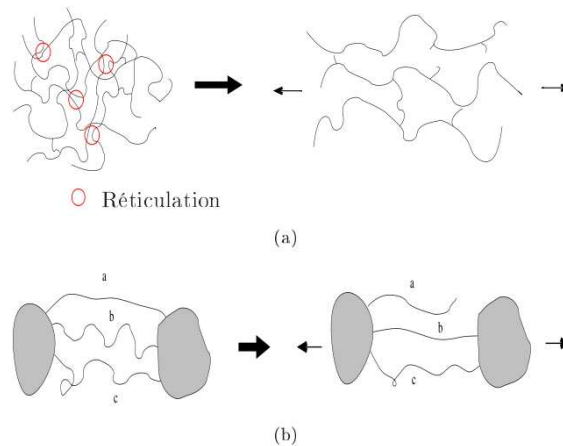


FIGURE I.16 – Interprétation microscopique de l'effet Mullins [22]

La transformation d'une phase dite « dure » en une phase dite « molle » dans l'élastomère est à l'origine de cet adoucissement de contraintes dès les premiers cycles de chargement. Ce phénomène peut être expliqué également par le glissement des chaînes d'élastomère au niveau de la surface des charges. Pour plus de détails, on oriente le lecteur vers les travaux référencés [18],[42] et [45].

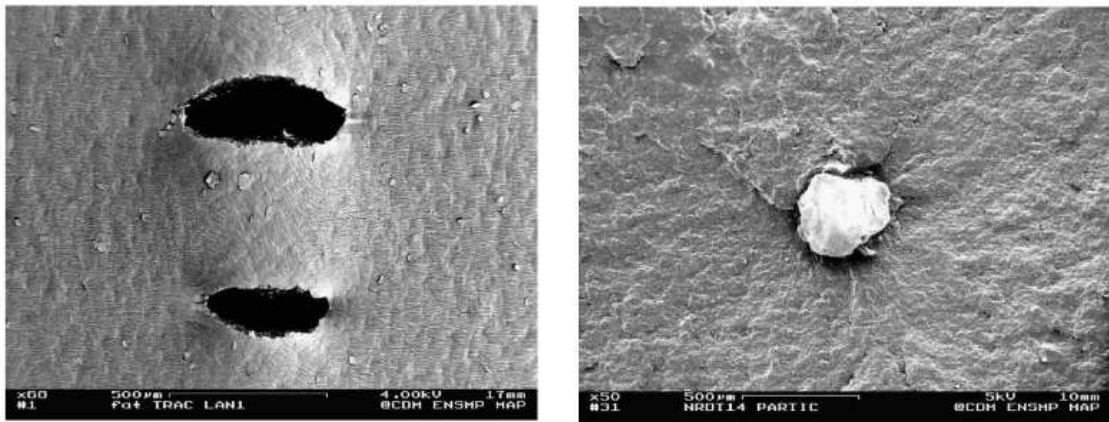
– la cristallisation

Initialement, l'élastomère vulcanisé est amorphe. À partir d'un certain seuil d'élongation, il peut apparaître des cristallites. Il s'agit d'édifices tridimensionnels ordonnés qui peuvent occuper une bonne portion du volume du matériau. Cette phase cristalline coexiste avec une phase amorphe. Le phénomène de cristallisation est très peu présent dans les silicones chargés de silice qui sont l'objet de notre étude.

– l'endommagement par fatigue

L'endommagement sous chargement cyclique est un phénomène qui peut avoir lieu dans les élastomères chargés. La propagation de ce type d'endommagement influe énormément sur la durée de vie de ces matériaux. Des travaux de recherche tenant compte de l'histoire des sollicitations subies par des pièces à base d'élastomère chargé ont été réalisés par [53], [1] et [50]. L'endommagement par fatigue des élastomères chargés lors d'un chargement cyclique regroupe des mécanismes de concentration de contraintes, de cavitation, de coalescence et de

propagation de fissures. Comme le montre la figure I.17, l'endommagement par fatigue peut



(a) Décohésion autour d'un agrégat

(b) Cavitation aux pôles d'une charge de silice

FIGURE I.17 – Mécanismes d'endommagement par fatigue dans un matériau chargé [22]

résulter de l'apparition à l'échelle microscopique de décohésions autour des agrégats et/ou de cavitations aux pôles d'une charge de silice.

I.4.3 Comportement dynamique

On recense principalement les effets suivants :

– l'effet Payne

La plupart des composants élastomériques sont sollicités en dynamique. Expérimentalement, on constate que le module dynamique des élastomères chargés diminue avec l'augmentation de la déformation. Lors d'un chargement cyclique en déformation, le module de cisaillement peut être exprimé comme un module complexe G^* . L'addition des charges a un fort impact sur le comportement statique et dynamique des caoutchoucs. La figure I.18 montre le comportement typique d'un module de cisaillement complexe en fonction de la déformation dynamique de cisaillement. Plusieurs éléments contribuent à l'évolution de la courbe du module de cisaillement complexe à savoir le réseau de polymère (vulcanisation dans la gomme pure), l'effet hydrodynamique, la structure de l'élastomère et l'interaction charge-charge. On remarque qu'à forte amplitude dynamique, un modèle qui combine les effets du réseau de polymère, l'effet hydrodynamique et la structure de la gomme capte bien la réponse en cisaillement dynamique. Toutefois, il semble nécessaire d'associer à ce modèle les effets d'interaction entre les charges pour capter également la réponse mécanique à faible déformation dynamique. L'effet Payne correspond à la modification de la morphologie du matériau

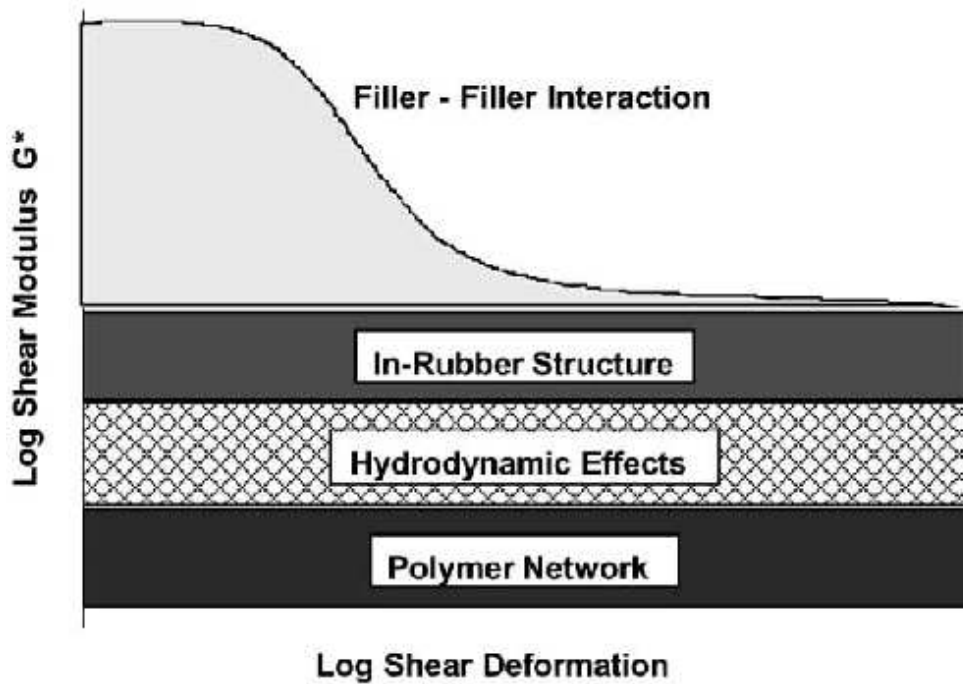


FIGURE I.18 – Forme idéalisée de la courbe du module élastique [21]

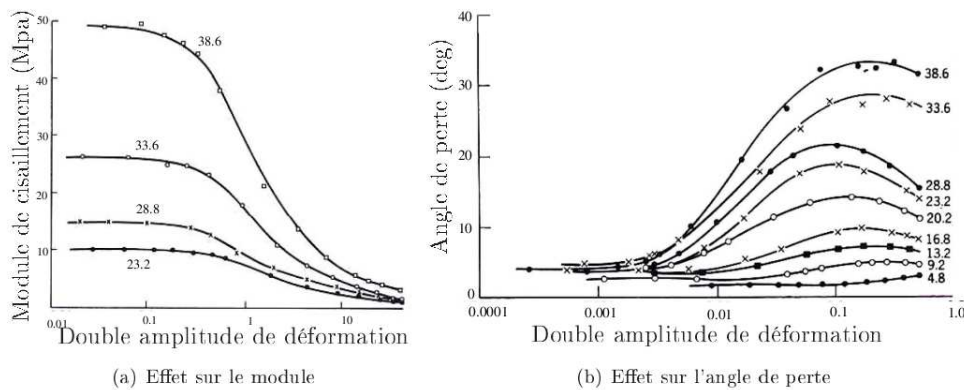


FIGURE I.19 – Effet du taux de charge sur l'effet de Payne [22]

lors de la sollicitation. De nombreux auteurs attribuent cet effet à une rupture du réseau de charge, ou à des mécanismes liés à l'interface charge-matrice. Une destruction partielle du réseau de charges, suite à la déformation de la matrice, engendre une chute du module dynamique. L'effet Payne s'accroît quand on augmente le taux de charge des particules dans la matrice [49], voir figure I.19. Plusieurs modèles dans la littérature sont proposés pour décrire ce phénomène. On peut citer entre autre le modèle de Kraus. Ce modèle suppose que le taux

de rupture dans un réseau de charge est proportionnel au nombre de contact entre les particules et à l'amplitude de déformation du réseau.

– l'effet Fletcher Gent

Le comportement est également sensible à la fréquence de sollicitation (voir figure I.20). Les

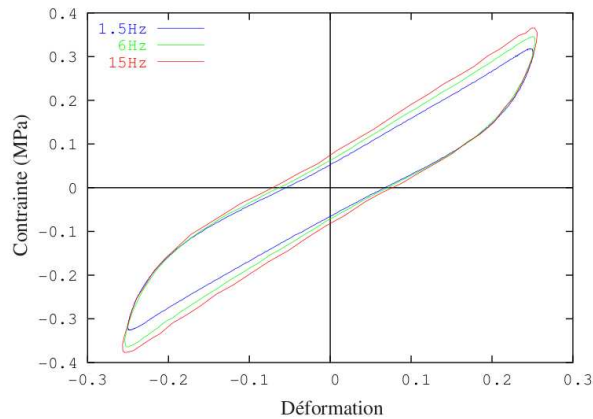


FIGURE I.20 – Influence de la fréquence de sollicitation [12]

figures I.21 et I.22 montrent que l'augmentation de la fréquence engendre une rigidification globale et une augmentation de la dissipation. L'analyse micromécanique de ce phénomène est beaucoup moins claire. Il n'y a pas, à ma connaissance, d'interprétations pertinentes de ce phénomène.

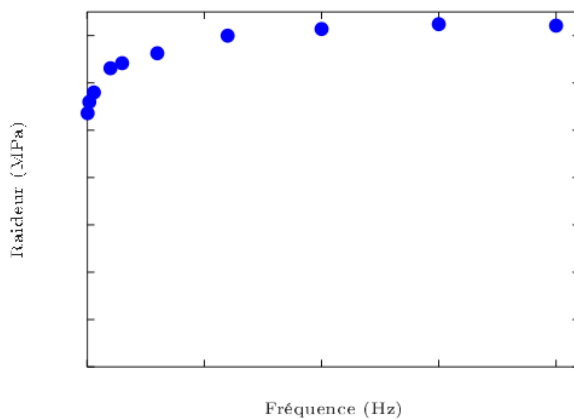


FIGURE I.21 – Raideur globale [37]

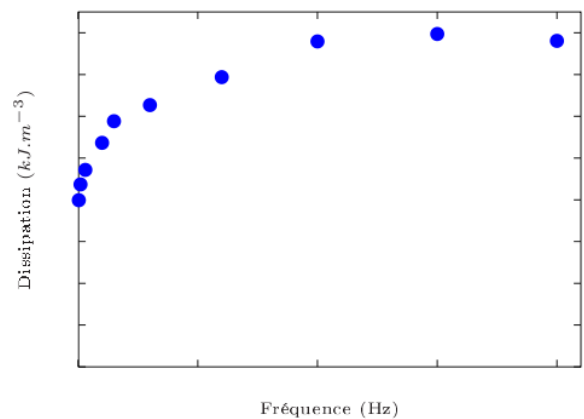


FIGURE I.22 – Dissipation globale [37]

I.4.4 Influence de la température

Le comportement des élastomères dépend fortement de la température (voir figure I.23). À

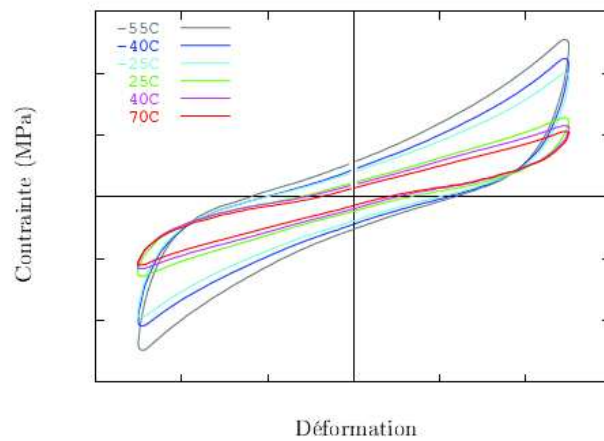


FIGURE I.23 – Influence de la température [37]

faible température, le comportement de ces matériaux dépend fortement de la vitesse de sollicitation [34]. Pour des températures plus importantes, le module de rigidité dynamique chute, de même que la dissipation. Les figures I.24 et I.25 décrivent l'évolution de la raideur et de la dis-

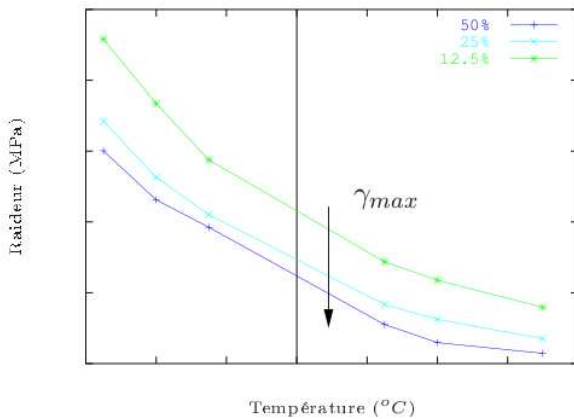


FIGURE I.24 – Raideur globale [37]

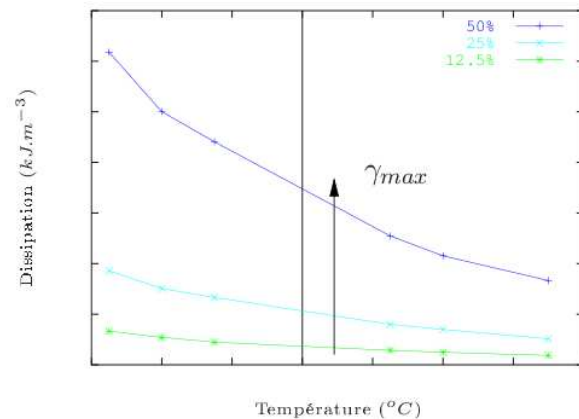


FIGURE I.25 – Dissipation globale [37]

sipation suivant la température pour des essais cycliques triangulaires de double cisaillement, réalisés à différentes amplitudes de déformation [37].

Remarque :

Cette dépendance de la réponse mécanique des matériaux élastomériques aux conditions de chargement (température, amplitude, fréquence, vitesse de déformation, etc) que ce soit en dynamique ou en statique, est directement liée à leur complexité microstructurale et leur capacité à activer des réactions tout au long de leur vie.

I.5 Conclusion

Nous avons tenté, au cours de ce chapitre, d'illustrer la complexité du comportement de ces matériaux et ceci que l'on se place du point de vue du chimiste, du physicien ou du mécanicien. Néanmoins, il semble évident que le rôle des interactions entre les différents constituants (charge/charge, charge/matrice) est prépondérant et nécessite des investigations à une échelle microscopique afin de mieux comprendre les phénomènes en jeux. En ce sens, il semble que l'approche micromécanique constitue un outil d'investigation pertinent qui peut permettre d'appréhender ces phénomènes. Les observations faites, dans ce chapitre, vont donc nous servir de base à la mise en place d'une telle approche.

Outils pour la modélisation des élastomères chargés

Dans ce chapitre, nous présentons un bref état de l'art de la modélisation des élastomères. Pour le dimensionnement des structures, il est nécessaire de tenir compte de plusieurs phénomènes : la capacité de ces matériaux à subir de grandes déformations, le caractère dissipatif, l'influence de la température, l'endommagement, la fatigue et le vieillissement. Les approches de modélisation peuvent être classées en trois familles : l'approche phénoménologique, l'approche micro-physiquement motivée et l'approche dérivant de l'homogénéisation.

PLAN DU CHAPITRE II

II.1	Introduction	31
II.2	Quelques modèles hyperélastiques	31
II.3	Modèles rhéologiques en grandes déformations	33
II.3.1	Etats intermédiaires	33
II.3.2	Quelques modèles rhéologiques	34
II.3.3	Approche intégrale	35
II.4	Modèles basés sur la physique statistique	36
II.4.1	Modèle de Neo Hooke	37
II.4.2	Modèle de Arruda	37
II.4.3	Modèles micro-physiquement motivés	38
II.5	Modèles basés sur l'homogénéisation	41
II.5.1	Introduction	41
II.5.2	Estimations issues des travaux d'Einstein	42
II.5.3	Homogénéisation en petites déformations	44
II.5.3.a	Comportement effectif	44
II.5.3.b	Méthode des modules effectifs	44
II.5.3.c	Homogénéisation périodique (PBC)	46
II.5.3.d	Bornes et estimations classiques	47
II.5.3.e	Cas des comportements non linéaires	48
II.5.4	Grandes déformations	48
II.5.4.a	Comportement effectif	48
II.5.4.b	Méthode des modules effectifs	49
II.5.4.c	Homogénéisation périodique (PBC)	50
II.5.4.d	Quelques méthodes d'homogénéisation adaptées aux élastomères renforcés en grandes déformations	50
II.6	Conclusion	51

II.1 Introduction

Les premiers modèles qui décrivent le comportement hyperélastique des caoutchoucs datent de 1940. Le modèle de Mooney (1940) est bien adapté pour représenter les essais de Treloar sur un caoutchouc naturel. Il permet de reproduire la réponse de ce matériau pour des déformations modérées (inférieures à 300 %). En effet, à cette époque, divers modèles sont développés pour reproduire la réponse mécanique d'un élastomère donné lors d'un essai spécifique et pour une plage de déformation précise. Ces limitations sont à l'origine du développement de modèles plus génériques qui tentent à reproduire le comportement de toute une famille d'élastomères pour une large gamme de déformation et différents types de chargements. Ces premiers modèles sont basés sur des observations expérimentales et des propriétés d'isotropie et d'incompressibilité. En plus de ces modèles phénoménologiques, d'autres se basant sur une description statistique de la conformation des chaînes macromoléculaires, tel celui de Neo-Hooke, ont vu le jour. Ces modèles ne tenant pas compte de l'extension propre de la chaîne macromoléculaire ont été enrichis par la suite. Cependant, ils ne tiennent pas compte de l'aspect dissipatif lié à la viscosité et la plasticité. Doi et Edwards (1986) ont proposé un modèle viscoélastique pour ces matériaux basé sur la reconfiguration des chaînes macromoléculaires. Beaucoup de modèles rhéologiques ont ensuite été proposés pour modéliser les comportements mécaniques des élastomères en prenant en compte la dissipation. Des outils thermodynamiques et le concept des états intermédiaires ont grandement contribué au développement de cette famille de modèles. Dans le courant des années 90, des modèles micro-physiquement motivés basés sur des constats expérimentaux et le traitement statistique de chaînes macromoléculaires ont fait leur apparition. Parmi ces modèles, on peut citer celui de Arruda-Boyce [1993] qui repose sur un modèle d'élément de volume cubique avec des chaînes issues des huit sommets se rejoignant au centre de la cellule unitaire. Ce modèle utilise la théorie de reptation des chaînes macromoléculaires pour tenir compte de l'effet dissipatif et la dépendance par rapport au temps. Enfin, à partir des années 2000, on a pu voir apparaître des modèles basés sur l'homogénéisation, dont celui de Ponte Castaneda [35] et son extension par Suquet et Lahellec [30].

II.2 Quelques modèles hyperélastiques

Les modèles phénoménologiques sont basés sur des considérations mathématiques et des mesures expérimentales. Pour modéliser le comportement hyperélastique, divers modèles phénoménologiques sont proposés. Les modèles se différencient par la plage de déformation dont ils savent rendre compte. Les modèles hyperélastiques sont caractérisés par la donnée d'une énergie libre ψ . Pour

un comportement isotrope, cette dernière dépend des invariants d'un tenseur des déformations (le tenseur de Cauchy Green droit $\bar{\bar{\mathbf{C}}} = \bar{\bar{\mathbf{F}}}\bar{\bar{\mathbf{F}}}^T$ ou gauche $\bar{\bar{\mathbf{B}}} = \bar{\bar{\mathbf{F}}}^T\bar{\bar{\mathbf{F}}}$ avec $\bar{\bar{\mathbf{F}}}$ le gradient de transformation). Dans le cas incompressible, la loi de comportement s'écrit sous forme eulérienne :

$$\bar{\bar{\boldsymbol{\sigma}}} = 2\rho\bar{\bar{\mathbf{B}}}\frac{\partial\psi}{\partial\bar{\bar{\mathbf{B}}}} - p\bar{\bar{\mathbf{1}}}, \quad (\text{II.1})$$

avec p la pression hydrostatique associée à l'incompressibilité, ρ la masse volumique et $\bar{\bar{\mathbf{1}}}$ le tenseur identité. On présente ci-après quelques exemples de choix possibles pour l'énergie libre.

– **Modèle de RIVLIN et SAUNDERS**

L'énergie libre associée à ce modèle est une série polynômiale qui dépend des invariants d'un tenseur de déformation.

$$\psi(I_1, I_2) = \sum_{i,j=0}^{\infty} C_{i,j}(I_1 - 3)^i(I_2 - 3)^j, \quad C_{00} = 0 \quad (\text{II.2})$$

avec I_1 et I_2 les invariants du tenseur de Cauchy-Green droit

$$I_1 = \text{tr}(\bar{\bar{\mathbf{C}}}) = 1, \quad I_2 = \frac{1}{2}((\text{tr}(\bar{\bar{\mathbf{C}}}))^2 - \text{tr}(\bar{\bar{\mathbf{C}}}^2)) \quad \text{et} \quad I_3 = \det(\bar{\bar{\mathbf{C}}}) = 1$$

Ce modèle convient à plusieurs types d'élastomères jusqu'à un niveau important de déformation.

– **Modèle de GENT THOMAS**

$$\psi(I_1, I_2) = C_1(I_1 - 3) + C_2 \ln\left(\frac{I_2}{3}\right) \quad (\text{II.3})$$

Ce modèle permet de modéliser le comportement hyperélastique pour des déformations modérées (100%).

– **Modèle de OGDEN**

$$\psi(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3) = \sum_{p=1}^N \frac{\mu_p}{\alpha_p} (\lambda_1^{\alpha_p} + \lambda_2^{\alpha_p} + \lambda_3^{\alpha_p} - 3) \quad (\text{II.4})$$

avec

$$\sum_{p=1}^N \mu_p \alpha_p = 2\mu, \quad \lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 = 1, \quad \mu_p \alpha_p > 0$$

λ_1, λ_2 et λ_3 : les élongations principales (les valeurs propres des tenseurs de Cauchy-Green).

– **Modèle de HART-SMITH**

$$\psi(I_1, I_2) = A_1 \int_3^{I_1} \exp(A_3(\tilde{I}_1 - 3)^2) d\tilde{I}_1 + A_2 \ln\left(\frac{I_2}{3}\right) \quad (\text{II.5})$$

Ce modèle est particulièrement adapté à des niveaux très élevés de déformation (800%).

Le choix de l'énergie libre est à effectuer au moment de la modélisation après analyse d'essais mécaniques réalisés sur des éprouvettes. Il est souhaitable d'avoir des essais variés du point de vue des invariants de déformation afin de couvrir une large plage de sollicitations.

II.3 Modèles rhéologiques en grandes déformations

Les modèles rhéologiques en grandes déformations sont basés sur la théorie de l'état local et sur la décomposition multiplicative du gradient de la transformation. Ils constituent une généralisation en grandes déformations de l'hypothèse de partition des déformations en HPP (hypothèse de petites perturbations).

II.3.1 Etats intermédiaires

Ce concept développé par F. Sidoroff suppose l'existence d'un état intermédiaire notée (C_i) pour passer de la configuration initiale (C_0) à la configuration actuelle (C_t). Il a été initialement adopté pour décrire des comportements élastoplastiques en grandes déformations. Il suppose une décomposition de la transformation en une transformation purement élastique et une autre anélastique comme le montre la figure II.1. Cette configuration intermédiaire est obtenue par un relâchement élastique de la configuration actuelle.

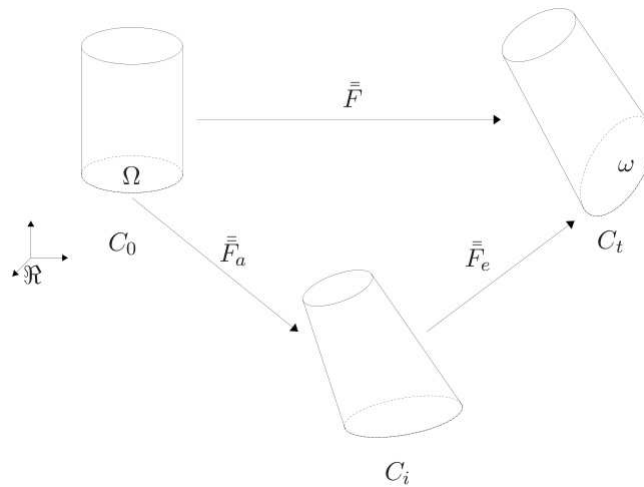


FIGURE II.1 – Configuration intermédiaire

$$\bar{\mathbf{F}} = \bar{\mathbf{F}}_e \bar{\mathbf{F}}_a \quad (\text{II.6})$$

$\bar{\mathbf{F}}_a$ et $\bar{\mathbf{F}}_e$ sont respectivement les gradients des transformations anélastique et élastique.

Pour chaque transformation, on peut redéfinir les tenseurs cinématiques : les tenseurs de Cauchy-Green gauches élastique et anélastique $\bar{\mathbf{B}}_e$ et $\bar{\mathbf{B}}_a$ et le taux eulérien de déformation anélastique $\bar{\mathbf{D}}_a$ et élastique $\bar{\mathbf{D}}_e$.

Ce concept peut être étendu à plusieurs états intermédiaires. Pour n états intermédiaires, le modèle est complètement défini par la connaissance d'un jeu de $n + 2$ variables [12].

L'écriture de l'inégalité de Clausius-Duhem permet de déduire la loi de comportement et les lois complémentaires. On distingue trois formalismes pour écrire les lois constitutives : lagrangien, eulérien et mixte.

L'approche par variables internes peut rendre la démarche d'identification des paramètres du modèle assez lourde dans le cas de description d'un comportement complexe.

II.3.2 Quelques modèles rhéologiques

On présente ici les modèles rhéologiques de POYNTING-THOMSON et ZENER. Ces modèles sont utilisés pour la modélisation de comportements viscoélastiques.

– Modèle de POYNTING-THOMSON

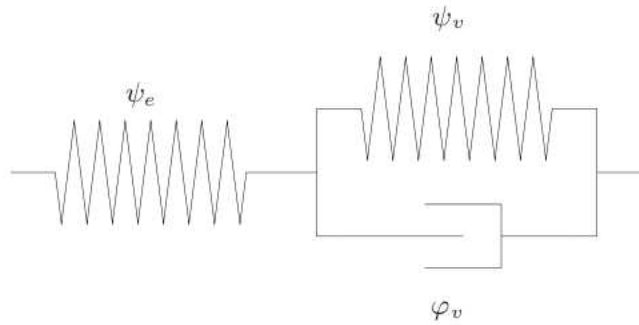


FIGURE II.2 – Modèle de POYNTING-THOMSON

On suppose une décomposition additive de l'énergie libre ψ .

$$\begin{cases} \psi = \psi_e(\bar{\mathbf{B}}_e) + \psi_v(\bar{\mathbf{B}}_v) \\ \varphi^{int} = \varphi^{int}(\bar{\mathbf{D}}_v^0) \end{cases} \quad (\text{II.7})$$

Les tenseurs $\bar{\mathbf{B}}$ et $\bar{\mathbf{B}}_v$ sont choisis comme variables d'états, les équations du modèle de POYNTING-THOMSON sont [12] :

$$\begin{cases} \bar{\boldsymbol{\sigma}} = 2\rho \left[\frac{\partial \psi_e}{\partial I_1^e} \bar{\mathbf{B}}_e - \frac{\partial \psi_e}{\partial I_2^e} \bar{\mathbf{B}}_e^{-1} \right] - p \bar{\mathbf{I}} \\ 2\rho \left[\frac{\partial \psi_e}{\partial I_1^e} \bar{\mathbf{B}}_e - \frac{\partial \psi_e}{\partial I_2^e} \bar{\mathbf{B}}_e^{-1} \right]^D - 2\rho \left[\bar{\mathbf{V}}_e^{-1} \left(\frac{\partial \psi_v}{\partial I_1^v} \bar{\mathbf{B}}_v - \frac{\partial \psi_v}{\partial I_2^v} \bar{\mathbf{B}}_v^{-1} \bar{\mathbf{B}}_e \right) \bar{\mathbf{V}}_e^{-1} \right]^D = \left[\frac{\partial \varphi_v}{\partial \bar{\mathbf{D}}_v^0} \right]^D \\ \text{les conditions d'incompressibilité : } tr(\bar{\mathbf{D}}) = 0 \text{ et } tr(\bar{\mathbf{D}}_v^0) = 0 \end{cases} \quad (\text{II.8})$$

$\bar{\boldsymbol{\sigma}}$: tenseur de Cauchy ;

$\bar{\mathbf{D}}$: le taux de déformation ;

$\bar{\bar{\mathbf{V}}}_e$: tenseur de déformation pure obtenu par décomposition polaire : $\bar{\bar{\mathbf{F}}}_e = \bar{\bar{\mathbf{V}}}_e \bar{\bar{\mathbf{R}}}$;

$\bar{\bar{\mathbf{D}}}_v^0$: taux de déformation anélastique.

– Modèle de ZENER

Dans un formalisme eulérien, les tenseurs de dilatation de Cauchy-Green gauche $\bar{\bar{\mathbf{B}}}$ et $\bar{\bar{\mathbf{B}}}_e$

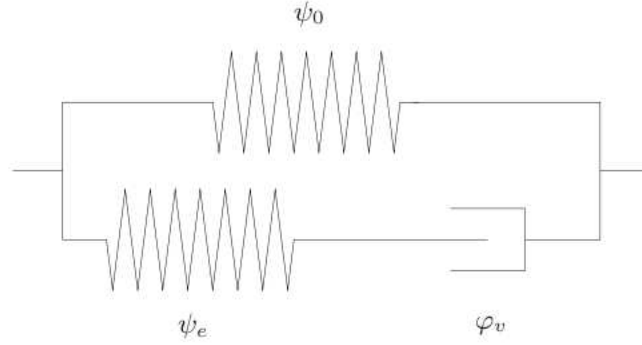


FIGURE II.3 – Modèle de ZENER

peuvent être choisis comme variables d'états. On suppose une décomposition additive de l'énergie libre telle que :

$$\begin{cases} \psi = \psi_0(\bar{\bar{\mathbf{B}}}) + \psi_v(\bar{\bar{\mathbf{B}}}_e) \\ \varphi^{int} = \varphi^{int}(\bar{\bar{\mathbf{D}}}_v^0) \end{cases} \quad (\text{II.9})$$

On peut obtenir les équations constitutives et complémentaires suivantes :

$$\begin{cases} \bar{\bar{\boldsymbol{\sigma}}} = 2\rho \left[\frac{\partial \psi_0}{\partial I_1} \bar{\bar{\mathbf{B}}} - \frac{\partial \psi_0}{\partial I_2} \bar{\bar{\mathbf{B}}}^{-1} \right]^D + 2\rho \left[\frac{\partial \psi_e}{\partial I_1^e} \bar{\bar{\mathbf{B}}}_e - \frac{\partial \psi_e}{\partial I_2^e} \bar{\bar{\mathbf{B}}}_e^{-1} \right]^D - p \bar{\bar{\mathbf{I}}} \\ 2\rho \left[\frac{\partial \psi_e}{\partial I_1^e} \bar{\bar{\mathbf{B}}}_e - \frac{\partial \psi_e}{\partial I_2^e} \bar{\bar{\mathbf{B}}}_e^{-1} \right]^D = \left[\frac{\partial \varphi_v}{\partial \bar{\bar{\mathbf{D}}}_v^0} \right]^D \\ \text{les conditions d'incompressibilité : } tr(\bar{\bar{\mathbf{D}}}) = 0 \text{ et } tr(\bar{\bar{\mathbf{D}}}_v^0) = 0 \end{cases} \quad (\text{II.10})$$

Les modèles présentés précédemment sont complètement définis en affectant aux différentes branches une densité d'énergie libre hyperélastique ψ (MOONEY RIVLIN, GENT-THOMAS,...) et un pseudo-potential de dissipation φ_v . Le plus simple est de prendre un pseudo-potential quadratique ([12]) de forme : $\varphi_v(\bar{\bar{\mathbf{D}}}_v^0) = \frac{\eta}{2} \bar{\bar{\mathbf{D}}}_v^0 : \bar{\bar{\mathbf{D}}}_v^0$

II.3.3 Approche intégrale

Les approches précédentes sont basées sur des modèles de comportement à variables internes. Une autre approche consiste à utiliser des intégrales héréditaires pour déterminer la contrainte en fonction de l'histoire de déformation. Une approche héréditaire générale permet d'écrire la

loi de comportement sous la forme d'une série infinie qui, dans le cadre des petites déformations, peut s'écrire :

$$\begin{aligned} \sigma(t) = & \int_{-\infty}^t \frac{D\varepsilon(t'_1)}{Dt'_1} \mu_1(t-t'_1) dt'_1 + \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^t \frac{D\varepsilon(t'_1)}{Dt'_1} \frac{D\varepsilon(t'_2)}{Dt'_2} \mu_2(t-t'_1, t-t'_2) dt'_1 dt'_2 \\ & + \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^t \int_{-\infty}^t \frac{D\varepsilon(t'_1)}{Dt'_1} \frac{D\varepsilon(t'_2)}{Dt'_2} \frac{D\varepsilon(t'_3)}{Dt'_3} \mu_3(t-t'_1, t-t'_2, t-t'_3) dt'_1 dt'_2 dt'_3 + \dots, \end{aligned} \quad (\text{II.11})$$

avec μ_i des fonctions de relaxation d'ordre i et t'_1 , t'_2 et t'_3 des temps de référence.

Les fonctions de relaxation sont déterminées expérimentalement. Cette approche peut être généralisée aux comportements non linéaires en grandes déformations. La méthode basée sur les séries de Prony est une application courante de cette approche.

II.4 Modèles basés sur la physique statistique

Les approches statistiques sont basées sur des considérations de la structure macromoléculaire des chaînes et les mécanismes de déformation. Un calcul probabiliste peut être mené en considérant une description statistique où la chaîne macromoléculaire est formée de plusieurs segments de même longueur liés entre eux donnant la possibilité à la chaîne d'avoir plusieurs configurations. La figure II.4 présente une représentation des configurations possibles de la chaîne

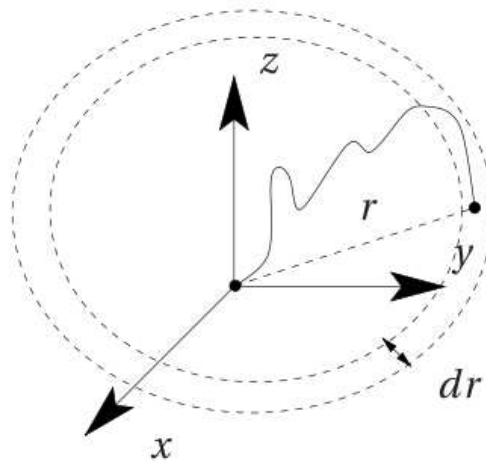


FIGURE II.4 – Représentation d'une chaîne de polymère [32]

qui peuvent être évaluées par la probabilité de trouver l'extrémité de la chaîne dans une coque de

rayon r et d'épaisseur dr . Une forme gaussienne de la fonction de probabilité permet d'écrire :

$$p(r) = \left(\frac{1}{l} \sqrt{\frac{3}{2n\pi}} \right)^3 \exp \left[-\frac{3r^2}{2nl^2} \right] \quad (\text{II.12})$$

avec n le nombre de segments de monomères constituant la chaîne de longueur l .

II.4.1 Modèle de Neo Hooke

Pour chaque chaîne, on peut définir une entropie élémentaire par le biais de la loi de Boltzmann. L'hypothèse d'une distribution gaussienne de la distance entre les extrémités des chaînes appelée aussi « vecteur longueur » aboutit à l'expression de l'énergie libre spécifique néo-hookéenne :

$$\psi = \frac{1}{2} N k_b T (I_1 - 3), \quad (\text{II.13})$$

avec N le nombre de chaîne par élément de volume, k_b la constante de Boltzmann et T la température. Ce modèle est valide dans un domaine de déformation limité de l'ordre de 50%.

II.4.2 Modèle de Arruda

Le modèle de ARRUDA et BOYCE se base sur l'étude d'un réseau constitué de huit chaînes orientées suivant les diagonales d'un cube unité (voir figure II.5). Ce réseau est caractérisé par l'affinité de la déformation : les chaînes se déforment identiquement suite à une déformation macroscopique donnée. L'approche gaussienne ne peut pas décrire le phénomène d'extension

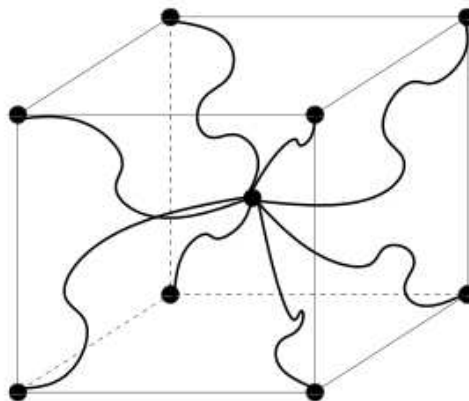


FIGURE II.5 – Modèle de huit chaînes de ARRUDA et BOYCE (1993)

limite des chaînes qui est observé expérimentalement. On peut contourner ce problème en adoptant les fonctions de Langevin pour décrire la densité de probabilité.

$$\ln(p(r)) = n\left[\frac{4}{nl}\beta + \ln\left(\frac{\beta}{\sinh(\beta)}\right)\right], \quad (\text{II.14})$$

$$\beta = L^{-1}\left(\frac{r}{nl}\right) \text{ et } L(x) = \coth(x) - \frac{1}{x}, \quad (\text{II.15})$$

où n est le nombre de segments de la chaîne dont la distance entre ces deux extrémités est r , l est la longueur de la chaîne et L est la fonction de LANGEVIN.

Cette démarche est utilisée pour le modèle micro-physiquement motivé de huit chaînes de Arruda-Boyce qui prend en compte une extensibilité limite des chaînes.

$$\psi = \mu \sum_{i=1}^5 \frac{C_i}{\lambda_m^{2i-1}} (\bar{I}_1 - 3^i) + \frac{1}{D} \left(\frac{(J_{el}^2 - 1)}{2} - \ln(J_{el}) \right) \quad (\text{II.16})$$

Les coefficients C_i découlent d'un développement en série de l'inverse de la fonction de LANGEVIN qui suppose un traitement statistique non-gaussien. Un développement tronqué au cinquième ordre, nous donne les coefficients suivants :

$$C_1 = \frac{1}{2}, C_2 = \frac{1}{20}, C_3 = \frac{11}{1050}, C_4 = \frac{19}{7000}, C_5 = \frac{519}{673750}$$

Le module de cisaillement initial μ_0 est lié à μ par l'expression suivante :

$$\mu_0 = \mu \left(1 + \frac{3}{5\lambda_m^2} + \frac{99}{175\lambda_m^4} + \frac{513}{875\lambda_m^6} + \frac{42039}{67375\lambda_m^8} \right)$$

$J_{el} = \frac{J}{J_{th}}$, avec J_{el} , J_{th} , J désignant respectivement la variation du volume d'origine élastique, thermique et la variation totale du volume.

λ_m est l'élongation maximale, \bar{I}_1 est le premier invariant de $\bar{\mathbf{B}}$ ($\bar{I}_1 = \text{tr}(\bar{\mathbf{B}}) = \text{tr}(\bar{\mathbf{F}}\bar{\mathbf{F}}^T) = \lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2$), $\bar{\mathbf{F}} = J^{-\frac{1}{3}}\bar{\bar{\mathbf{F}}}$, $K = \frac{2}{D}$, avec K le module de compressibilité.

Pour plus de détails, on peut se référer à [7], [8].

II.4.3 Modèles micro-physiquement motivés

Dans ce paragraphe, on présente une approche qui tente d'intégrer les hétérogénéités micro-structurales du matériau. Boukamel et Martinez ont développé une approche statistique hyper-élasto-visco-plastique qui tient compte de la microstructure. A travers des observations microscopiques, ils ont défini un volume élémentaire représentatif du matériau. Des hypothèses sur les micro-mécanismes d'interactions des différents constituants sont utilisées pour décrire ce VER. Cette approche est basée sur un aspect statistique de sorte que le comportement de l'élastomère chargé est modélisé par l'association de différents modèles rhéologiques caractérisant les différentes populations de VER constituant le matériau (voir figure II.6) [12]. L'approche

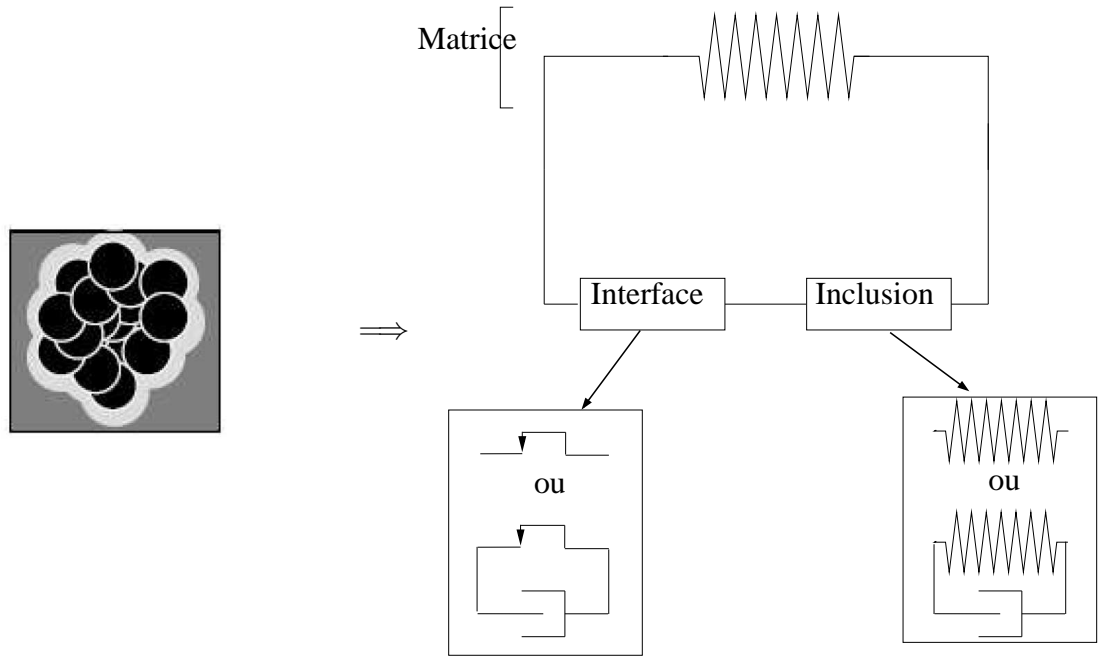


FIGURE II.6 – Modélisation rhéologique du VER [12]

statistique permet ainsi de généraliser les assemblages parallèles d'un nombre fini de branches à un assemblage statistique à une infinité de branches. Le point de départ de cette approche est un modèle discret constitué de N branches en parallèles, permettant de tenir compte du comportement de N populations d'agglomérats de charges avec différents temps caractéristiques de retard de la réponse et différents seuils de glissement à l'interface. Chaque branche est pondérée par un poids P_i et caractérisée par la variable aléatoire ω_i relative à une énergie d'activation nécessaire à la rupture des liaisons inclusions-matrice et à un temps caractéristique.

La figure II.8 présente un modèle statistique basé sur ce principe. La première branche caractérise le comportement de la matrice hyperélastique. Les autres caractérisent chacune une population d'inclusion et son interface avec la matrice. Les inclusions sont supposées hyperélastiques et les interfaces supposées rigides visco-plastiques. L'énergie libre spécifique et le pseudo-potential de dissipation du mélange s'écrivent :

$$\begin{cases} \psi = \psi_0(\bar{\mathbf{B}}) + \sum_{i=1}^N \tilde{\psi}(\omega_i, \bar{\mathbf{B}}_e(\omega_i)) P_i, \\ \varphi^{int} = \sum_{i=1}^N (\tilde{\varphi}_p(\omega_i, \bar{\mathbf{D}}_p^0(\omega_i)) + \tilde{\varphi}_v(\omega_i, \bar{\mathbf{D}}_e(\omega_i))) P_i \end{cases} \quad (\text{II.17})$$

Le passage au modèle statistique continu est obtenu par intégration en utilisant la densité de probabilité $\mathcal{P}(w)$:

$$\begin{cases} \psi = \psi_0(\bar{\mathbf{B}}) + \int_0^\infty \tilde{\psi}(w, \bar{\mathbf{B}}_e(w)) \mathcal{P}(w) dw \\ \varphi^{int} = \int_0^\infty (\tilde{\varphi}_p(w, \bar{\mathbf{D}}_p^0(w)) + \tilde{\varphi}_v(w, \bar{\mathbf{D}}_e(w))) \mathcal{P}(w) dw \end{cases} \quad (\text{II.18})$$

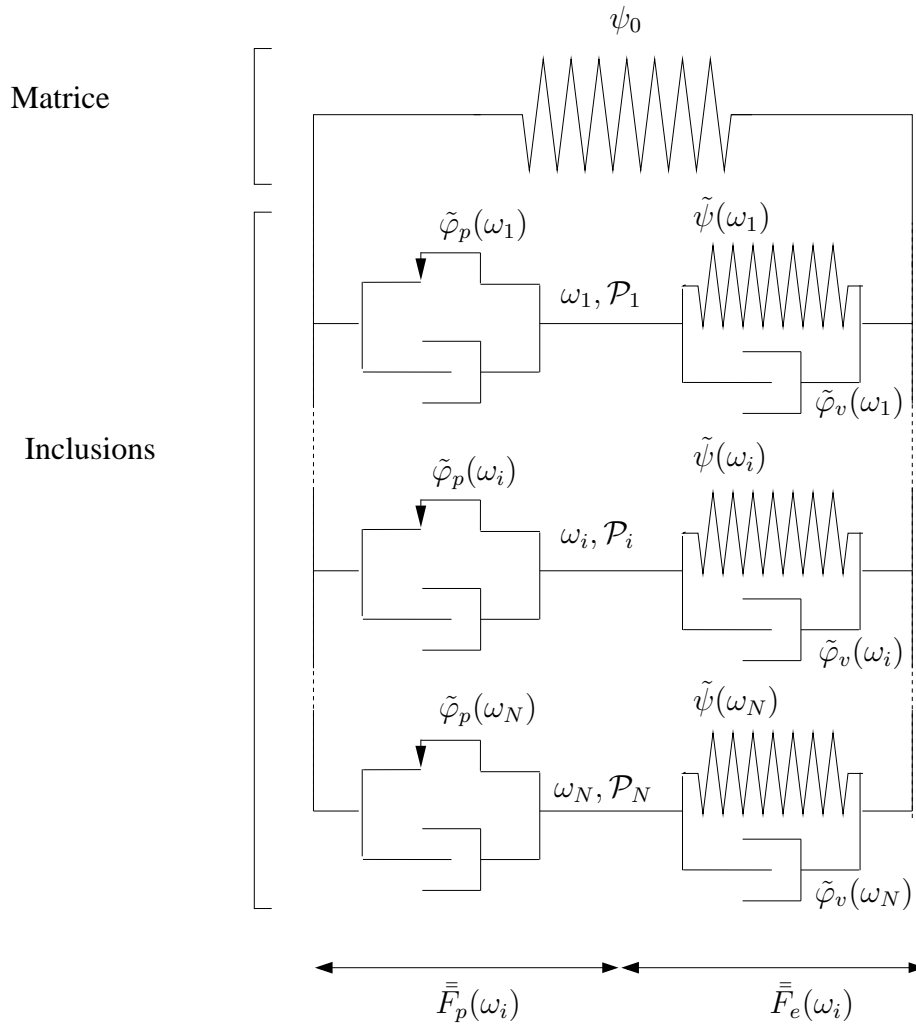


FIGURE II.7 – Modèle statistique hyper-élasto-visco-plastique discret [39]

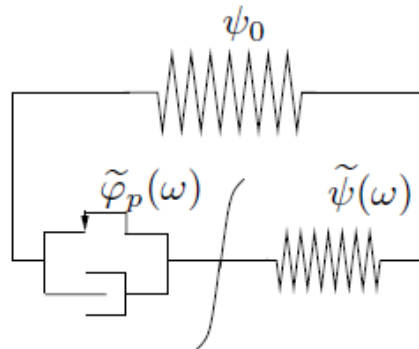


FIGURE II.8 – Modèles statistiques hyper-élasto-visco-plastique [12],[13]

La décomposition polaire du gradient élastique :

$$\bar{\mathbf{F}}_e(\omega) = \bar{\mathbf{V}}_e(\omega) \cdot \bar{\mathbf{R}}_e(\omega), \quad (\text{II.19})$$

Le tenseur eulérien des taux de déformations viscoplastiques :

$$\bar{\mathbf{D}}_p^0(\omega) = \bar{\mathbf{R}}_e(\omega) \cdot (\dot{\bar{\mathbf{F}}}_p(\omega) \cdot \bar{\mathbf{F}}_p^{-1}(\omega))_{sym} \cdot \bar{\mathbf{R}}_e^T(\omega), \quad (\text{II.20})$$

Le tenseur eulérien des taux de déformations viscoélastiques :

$$\bar{\mathbf{D}}_e(\omega) = (\dot{\bar{\mathbf{F}}}_e(\omega) \cdot \bar{\mathbf{F}}_e^{-1}(\omega))_{sym}; \quad (\text{II.21})$$

Les lois constitutives en formulation eulérienne s'écrivent :

$$\left\{ \begin{array}{l} \bar{\boldsymbol{\sigma}} = \bar{\boldsymbol{\sigma}}_0 + \int_0^\infty \bar{\boldsymbol{\sigma}}(\omega) \mathcal{P}(\omega) d\omega - p \bar{\mathbf{1}}, \\ \bar{\boldsymbol{\sigma}}_0 = 2\rho \left[\frac{\partial \psi_0}{\partial I_1} \bar{\mathbf{B}} - \frac{\partial \psi_0}{\partial I_2} \bar{\mathbf{B}}^{-1} \right]^D, \\ \bar{\boldsymbol{\sigma}}(\omega) = 2\rho \left[\frac{\partial \tilde{\psi}(\omega)}{\partial I_1^e(\omega)} \bar{\mathbf{B}}_e(\omega) - \frac{\partial \tilde{\psi}(\omega)}{\partial I_2^e(\omega)} \bar{\mathbf{B}}_e^{-1}(\omega) \right]^D + \left[\frac{\partial \tilde{\varphi}_v(\omega, \bar{\mathbf{D}}_e(\omega))}{\partial \bar{\mathbf{D}}_e(\omega)} \right]^D, \\ 2\rho \left[\frac{\partial \tilde{\psi}(\omega)}{\partial I_1^e(\omega)} \bar{\mathbf{B}}_e(\omega) - \frac{\partial \tilde{\psi}(\omega)}{\partial I_2^e(\omega)} \bar{\mathbf{B}}_e^{-1}(\omega) \right]^D + [\bar{\mathbf{V}}_e(\omega) \cdot \frac{\partial \tilde{\varphi}_v(\omega, \bar{\mathbf{D}}_e(\omega))}{\partial \bar{\mathbf{D}}_e(\omega)} \cdot \bar{\mathbf{V}}_e^{-1}(\omega)]^D = \left[\frac{\partial \tilde{\varphi}_p(\omega, \bar{\mathbf{D}}_p^0(\omega))}{\partial \bar{\mathbf{D}}_p^0(\omega)} \right]^D, \\ \text{avec } tr \bar{\mathbf{D}} = 0 \quad \text{et} \quad tr(\bar{\mathbf{D}}_p^0(\omega)) = 0. \end{array} \right. \quad (\text{II.22})$$

Ce modèle nécessite l'identification d'un faible nombre de paramètres comparativement à un modèle discret (par exemple les approches de type Maxwell généralisé).

II.5 Modèles basés sur l'homogénéisation

II.5.1 Introduction

Les modèles précédents peuvent être utilisés, dans le cadre des élastomères chargés, mais ils ne prennent pas en compte explicitement les caractéristiques de la microstructure (fractions volumiques et propriétés mécaniques des charges). Ainsi, ils n'ont aucun caractère prédictif dans le sens où un changement de microstructure entraîne une réidentification des paramètres matériaux. D'autre part, il est illusoire de modéliser le matériau dans toute sa complexité à l'échelle d'une structure, vu la taille des hétérogénéités. Une voie intermédiaire consiste à utiliser les techniques d'homogénéisation. Il s'agit alors de déterminer le comportement effectif d'un matériau homogène équivalent. Ces méthodes s'appuient sur la définition d'un Volume Élémentaire Représentatif (VER), caractéristique de la microstructure, dont on cherche la réponse moyenne en un sens qui sera défini plus tard. La description du volume élémentaire représentatif constitue l'étape de représentation. Dans cette étape, on identifie les constituants, leur fraction volumique, leur comportement et leur morphologie ainsi que les phénomènes

physiques en jeux (mode d'interaction, endommagement, thermomécanique,...). Il s'agit d'une description géométrique et matérielle du VER à l'échelle microscopique. Les constituants sont supposés homogènes, leur comportement est connu, ainsi que leur distribution et le comportement des interfaces. Le chargement sur le Volume Élémentaire Représentatif est ensuite introduit en terme de moyennes des déformations ou des contraintes. L'étape de localisation consiste à relier les grandeurs locales ou grandeurs globales moyennes. Dans la suite, nous passons en revue aux différentes approches conduisant à différentes techniques d'homogénéisation. Enfin, l'étape d'homogénéisation consiste à construire le comportement effectif en moyennant les champs locaux. Les méthodes d'homogénéisation se distinguent principalement au niveau de la localisation. Les techniques d'homogénéisation sont relativement bien maîtrisées dans le cadre des comportements linéaires. Plusieurs méthodes sont disponibles pour estimer les propriétés effectives (estimations, bornes,...). Dans le cadre des élastomères chargés, l'aspect grandes déformations et la complexité des comportements (hyperélasticité, viscosité, plasticité) rendent difficile l'utilisation de ces techniques. C'est pourquoi nous allons rapidement nous focaliser sur des techniques d'homogénéisation numérique.

Dans la suite, nous présentons d'abord les estimations historiquement basées sur les travaux d'Einstein, proposant des expressions du module d'Young effectif pour un milieu macroscopiquement isotrope, constitué de charges infiniment rigides entourées d'un milieu élastique. Ensuite, nous introduisons la méthode des modules effectifs qui est à la base des méthodes d'homogénéisation. Un paragraphe est consacré aux cas des milieux périodiques. Dans un cadre élastique linéaire, les estimations et bornes classiques sont présentées. Ensuite, la méthode des modules effectifs, ainsi que la méthode d'homogénéisation périodique, sont transposées dans le cadre des grandes déformations. Dans ce cadre, on recense enfin un certain nombre de travaux relatifs aux élastomères chargés.

II.5.2 Estimations issues des travaux d'Einstein

Historiquement, Einstein s'est intéressé à la viscosité d'un mélange constitué de charges rigides sphériques suffisamment bien dispersées dans un milieu de viscosité constante η_0 . S'appuyant uniquement sur l'effet hydrodynamique des charges introduites dans le milieu infini, la viscosité effective peut être estimée par :

$$\eta = \eta_0(1 + 2.5\phi) \quad (\text{II.23})$$

avec ϕ la fraction volumique des charges. Cette équation est valable que pour les milieux très dilués, elle ne tient pas compte des interactions entre les charges.

Cette expression a été extrapolée par SMALLWOOD (1944) pour décrire le module d'Young en petites déformations d'un matériau élastique incompressible (de module d'Young E_0) renforcé par des particules sphériques rigides à faible taux de charge, en écrivant :

$$E = E_0(1 + 2.5\phi) \quad (\text{II.24})$$

avec E est le module d'Young effectif du mélange.

D'autres expressions sont proposées par GUTH et GOLD qui font intervenir un terme quadratique pour prendre en compte l'interaction entre les particules dans le cas des fortes fractions volumiques.

$$E = E_0(1 + 2.5\phi + 14.1\phi^2) \quad (\text{II.25})$$

Ces expressions sont limitées au cas de charges sphériques. Une extension de cette théorie pour d'autres géométries consiste à faire intervenir un facteur de forme f représentant l'anisométrie de la charge :

$$E = E_0(1 + 0.67f\phi + 1.62(f\phi)^2) \quad (\text{II.26})$$

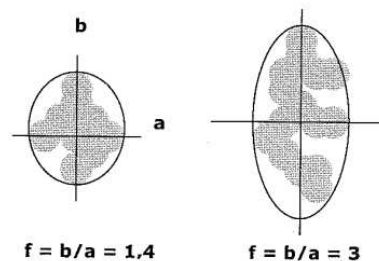


FIGURE II.9 – Facteur de forme pour deux structures de charges [54]

Dans la littérature, on trouve aussi d'autres expressions modélisant l'effet hydrodynamique dont :

– Formule de Eilers

$$\frac{E}{E_0} = 1 + \left(\frac{1.25\phi}{1 - 2.8\phi}\right)^2 \quad (\text{II.27})$$

– Formule de Brinkman

$$\frac{E}{E_0} = \frac{1}{(1 - 2.8\phi)^{\frac{5}{2}}} \quad (\text{II.28})$$

– Formule Kerner

$$\frac{E}{E_0} = \frac{1 + 2.25\phi}{1 - \phi} \quad (\text{II.29})$$

Ces premières estimations ont été établies sous des hypothèses assez restrictives : charges rigides, matrice élastique incompressible, petites déformations, comportement macroscopiquement isotrope. Nous présentons, dans la suite, des méthodes plus générales.

II.5.3 Homogénéisation en petites déformations

II.5.3.a Comportement effectif

En petites déformations, le comportement mécanique est décrit par la relation entre le tenseur des contraintes de Cauchy $\bar{\sigma}$ et le tenseur des petites déformations $\bar{\varepsilon} = \text{grad}_s(u)$. Considérant un Volume Élémentaire Représentatif V , la méthode des moyennes suggère de définir un milieu homogène équivalent dont le comportement est défini par la relation entre la moyenne des contraintes et la moyenne des déformations. On définit alors les contraintes et les déformations effectives :

$$\bar{\mathbf{E}} = \frac{1}{|V|} \int_V \bar{\varepsilon} dV = \langle \bar{\varepsilon} \rangle_V \quad (\text{II.30})$$

$$\bar{\mathbf{\Sigma}} = \frac{1}{|V|} \int_V \bar{\sigma} dV = \langle \bar{\sigma} \rangle_V \quad (\text{II.31})$$

où $\bar{\mathbf{E}}$ et $\bar{\mathbf{\Sigma}}$ sont appelés respectivement les déformations et les contraintes macroscopiques ou effectives. Dans le cas de phases élastiques linéaires, le comportement effectif est lui aussi élastique linéaire et on peut définir un tenseur de souplesse homogénéisé $\bar{\mathbf{S}}$ ou un tenseur de rigidité homogénéisé $\bar{\mathbf{C}}$ tels que :

$$\begin{cases} \bar{\mathbf{E}} = \langle \bar{\varepsilon} \rangle_V = \bar{\mathbf{S}} : \bar{\mathbf{\Sigma}} \\ \bar{\mathbf{\Sigma}} = \langle \bar{\sigma} \rangle_V = \bar{\mathbf{C}} : \bar{\mathbf{E}} \end{cases} \quad (\text{II.32})$$

II.5.3.b Méthode des modules effectifs

On trouvera dans [10] tous les détails relatifs à cette méthode. Pour simplifier, on se place dans la suite en élasticité linéaire. On distingue alors deux approches :

- une pour laquelle on impose la déformation effective $\langle \bar{\varepsilon}(u(x)) \rangle = \bar{\mathbf{E}}$ et on cherche la réponse en contrainte moyenne,
- une pour laquelle on impose la déformation effective $\langle \bar{\sigma}(x) \rangle = \bar{\mathbf{\Sigma}}$ et on cherche la réponse en déformation moyenne.

A ce stade, le problème de localisation sur le VER s'écrit :

$$\begin{cases} \operatorname{div} \bar{\boldsymbol{\sigma}}(x) = 0 \\ \bar{\boldsymbol{\sigma}}(x) = \bar{\mathbf{C}}(x) : \bar{\boldsymbol{\varepsilon}}(u(x)) \text{ dans } V \\ \langle \bar{\boldsymbol{\varepsilon}}(u(x)) \rangle = \bar{\mathbf{E}} \text{ ou } \langle \bar{\boldsymbol{\sigma}}(x) \rangle = \bar{\boldsymbol{\Sigma}} \end{cases} \quad (\text{II.33})$$

Ce problème est mal posé car il n'y a pas unicité des conditions aux limites qui respectent les conditions de moyenne (une infinité de répartition de u sur ∂V qui conduisent par exemple à $\langle \bar{\boldsymbol{\varepsilon}}(u(x)) \rangle = \bar{\mathbf{E}}$). La théorie des modules effectifs apporte une réponse à ce problème en supposant des conditions aux limites homogènes sur le bord ∂V du VER. On distingue deux approches, déformation ou contrainte homogène sur le bord du VER.

– **Approche à déformation homogène sur le bord (KUBC)**

L'approche à déformation homogène sur le bord consiste à imposer $u = \langle \bar{\boldsymbol{\varepsilon}} \rangle . x$ sur ∂V . Le problème II.33 devient :

$$\begin{cases} \operatorname{div} \bar{\boldsymbol{\sigma}}(x) = 0 \\ \bar{\boldsymbol{\sigma}}(x) = \bar{\mathbf{C}}(x) : \bar{\boldsymbol{\varepsilon}}(u(x)) \text{ dans } V \\ u = \langle \bar{\boldsymbol{\varepsilon}} \rangle . x \text{ sur } \partial V \\ \langle \bar{\boldsymbol{\varepsilon}}(u(x)) \rangle = \bar{\mathbf{E}} \text{ ou } \langle \bar{\boldsymbol{\sigma}}(x) \rangle = \bar{\boldsymbol{\Sigma}} \end{cases} \quad (\text{II.34})$$

On montre que ces conditions aux limites assurent automatiquement la relation de moyenne :

$$\bar{\mathbf{E}} = \langle \bar{\boldsymbol{\varepsilon}} \rangle = \frac{1}{V} \int_V \bar{\boldsymbol{\varepsilon}} dv \quad (\text{II.35})$$

Dans le cas où le VER contient des pores, la déformation macroscopique doit être redéfinie :

$$\bar{\mathbf{E}} = \frac{1}{V} \int_{\partial V} (u \otimes_s n) dS \quad (\text{II.36})$$

– **Approche à contrainte homogène sur le bord (SUBC)**

On impose $\bar{\boldsymbol{\sigma}} . n = \langle \bar{\boldsymbol{\sigma}}(x) \rangle . n$ sur ∂V . Le problème II.33 devient :

$$\begin{cases} \operatorname{div} \bar{\boldsymbol{\sigma}}(x) = 0 \\ \bar{\boldsymbol{\sigma}}(x) = \bar{\mathbf{C}}(x) : \bar{\boldsymbol{\varepsilon}}(u(x)) \text{ dans } V \\ \bar{\boldsymbol{\sigma}} . n = \langle \bar{\boldsymbol{\sigma}}(x) \rangle . n \text{ sur } \partial V \\ \langle \bar{\boldsymbol{\varepsilon}}(u(x)) \rangle = \bar{\mathbf{E}} \text{ ou } \langle \bar{\boldsymbol{\sigma}}(x) \rangle = \bar{\boldsymbol{\Sigma}} \end{cases} \quad (\text{II.37})$$

Dans cette approche, les conditions aux limites sont aussi compatibles avec la condition de la moyenne :

$$\bar{\boldsymbol{\Sigma}} = \langle \bar{\boldsymbol{\sigma}} \rangle = \frac{1}{V} \int_V \bar{\boldsymbol{\sigma}} dv \quad (\text{II.38})$$

II.5.3.c Homogénéisation périodique (PBC)

Dans le cas d'un matériau à microstructure périodique, on peut définir une « cellule de base » et des vecteurs de périodicité (voir figure II.10).

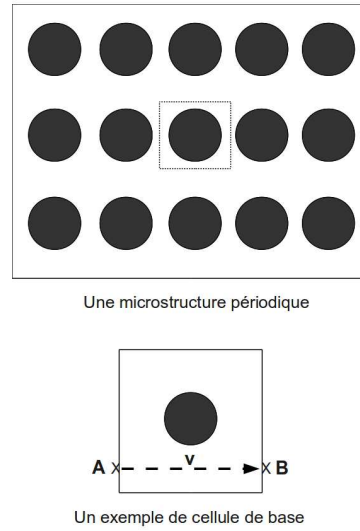


FIGURE II.10 – Description d'une cellule de base

On suppose alors que les contraintes et les déformations sont périodiques. A ce stade, le problème de localisation sur la cellule de base s'écrit :

$$\left\{ \begin{array}{l} \operatorname{div} \bar{\sigma}(x) = 0 \\ \bar{\sigma}(x) = \bar{\mathbf{C}}(x) : \bar{\varepsilon}(u(x)) \text{ dans } V \\ \bar{\sigma} \text{ est } V\text{-périodique, } \bar{\varepsilon}(u(x)) \text{ est } V\text{-périodique} \\ \langle \bar{\varepsilon} \rangle = \bar{\mathbf{E}} \text{ ou } \langle \bar{\sigma} \rangle = \bar{\Sigma} \end{array} \right. \quad (\text{II.39})$$

Ce problème peut s'écrire autrement, en écrivant des conditions aux limites mixtes.

$$\bar{\sigma} \text{ est } V \text{ périodique} \Leftrightarrow \bar{\sigma} \cdot n \text{ est } V \text{ anti-périodique} \quad (\text{II.40})$$

$$\bar{\varepsilon}(u(x)) \text{ est } V \text{ périodique} \Leftrightarrow \exists v \text{ } V \text{ périodique tel que } u = \langle \bar{\varepsilon} \rangle \cdot x + v \quad (\text{II.41})$$

Le problème II.39 peut s'écrire :

$$\left\{ \begin{array}{l} \operatorname{div} \bar{\sigma}(x) = 0 \\ \bar{\sigma}(x) = \bar{C}(x) : \bar{\varepsilon}(u(x)) \text{ dans } V \\ \bar{\sigma} \cdot n \text{ V anti-périodique,} \\ u - \langle \bar{\varepsilon}(u) \rangle \cdot x \text{ V périodique} \\ \langle \bar{\varepsilon}(u) \rangle = \bar{E} \text{ ou } \langle \bar{\sigma} \rangle = \bar{\Sigma} \end{array} \right. \quad (\text{II.42})$$

II.5.3.d Bornes et estimations classiques

Les problèmes KUBC, SUBC et PBC nécessitent une résolution numérique, dans la plupart des cas, faisant appel à des techniques de discrétisation par la méthode des éléments finis par exemple. Dans le cadre des milieux biphasés macroscopiquement isotropes, un certain nombre de bornes et d'estimations analytiques ou semi-analytiques sont disponibles dans la littérature, donnant les modules de compressibilité et de cisaillement effectifs \tilde{k} et $\tilde{\mu}$. Elles peuvent s'écrire de façon générale à l'aide de l'estimation de Hashin et Shtrikman :

$$k^{HS} = k_1 + c_2 \frac{k_2 - k_1}{1 + c_1 \frac{k_2 - k_1}{k^*(\mu_0) + k_1}}, \quad \mu^{HS} = \mu_1 + \mu_2 \frac{\mu_2 - \mu_1}{1 + c_1 \frac{\mu_2 - \mu_1}{\mu^*(k_0, \mu_0) + \mu_1}} \quad (\text{II.43})$$

avec

$$k^* = \frac{4\mu_0}{3}, \quad \mu^* = \frac{\mu_0}{6} \frac{9k_0 + 8\mu_0}{k_0 + 2\mu_0} \quad (\text{II.44})$$

où k_0 et μ_0 sont les modules de compressibilité et de cisaillement d'un milieu de référence à choisir. On retrouve les bornes classiques en effectuant des choix particuliers pour le milieu de référence :

- lorsque $\mu_0, k_0 \rightarrow \infty$, on obtient la borne de Voigt,
- lorsque $\mu_0, k_0 \rightarrow 0$, on obtient la borne de Reuss,
- lorsque $\mu_0 = \sup(\mu_1, \mu_2)$ et $k_0 = \sup(k_1, k_2)$, on obtient la borne supérieure de Hashin-Shtrikman-Walpole k^{HS+} ,
- lorsque $\mu_0 = \inf(\mu_1, \mu_2)$ et $k_0 = \inf(k_1, k_2)$, on obtient la borne inférieure de Hashin-Shtrikman-Walpole k^{HS-} .

L'estimation de Hashin et Shtrikman permet aussi de retrouver les estimations classiques :

- dans le cas de milieux inclusionnaires, on retrouve l'estimation de Mori-Tanaka en affectant au milieu de référence les propriétés de la matrice,
- le modèle auto-cohérent est obtenu en considérant que le milieu de référence est le milieu recherché.

On trouve dans la littérature un certain nombre de méthodes analytiques ou semi-analytiques conduisant à des estimations voire des bornes pour les caractéristiques élastiques du milieu homogène équivalent. Certains de ces modèles ont été utilisés dans le cadre des élastomères ou des polymères chargés. Par exemple, B. Omnès et al.[5] ont développé un modèle basé sur un schéma auto-cohérent généralisé tenant compte à la fois de la gomme ocluse, de l'élastomère lié et des charges de noirs de carbone pour prévoir les propriétés macroscopiques du matériau. On trouve également, dans le même travail, une comparaison des propriétés effectives avec l'étude expérimentale et l'analyse de l'effet de la surface spécifique.

II.5.3.e Cas des comportements non linéaires

Dans le cas où les phases ont des comportements non linéaires, les méthodes présentées précédemment doivent être adaptées. La loi de comportement effective devient non linéaire, dépendante de l'histoire et/ou du niveau de chargement. On peut toujours, supposant l'existence d'un Volume Élémentaire Représentatif, résoudre les problèmes d'évolutions associés aux méthodes KUBC, SUBC et PBC avec les comportements non-linéaires des phases, et ainsi déterminer numériquement la réponse moyenne. On parle alors de méthodes d'homogénéisation numérique, sur lesquelles se basent par exemple la technique des Eléments Finis au carré (EF^2) [19]. Les méthodes TFA et NTFA ([41],[51]) utilisent aussi généralement la résolution numérique de ces problèmes pour identifier les paramètres des modèles. Ces méthodes consistent à décomposer les champs de variables internes sur un petit nombre de fonctions de forme (modes). D'autres méthodes essaient de tirer parti du savoir faire acquis en homogénéisation linéaire : en introduisant une méthode de linéarisation pour la loi de comportement et la notion de composite linéaire de comparaison (CLC), on peut réutiliser les estimations proposées en homogénéisation linéaire citées précédemment. Cette notion de Composite Linéaire de Comparaison est aussi utilisée par la méthode du second ordre proposée initialement par Ponte-Castaneda.

II.5.4 Grandes déformations

II.5.4.a Comportement effectif

Dans cette section, on se restreint au comportement hyperélastique incompressible. Soit un volume élémentaire représentatif d'un matériau hyperélastique renforcé occupant un volume V_0 dans la configuration de référence. En grandes déformations, plusieurs formulations peuvent être adoptées : lagrangien, eulérien et mixte. En homogénéisation, c'est la formulation mixte qui

est essentiellement utilisée ([56],[11],[14],[36], [35]). La loi de comportement est alors écrite à l'aide du tenseur des contraintes de Piola Kirchhoff et du tenseur gradient de la transformation. La méthode des moyennes consiste alors à définir le comportement du milieu homogène équivalent par la relation entre la moyenne des contraintes de Piola Kirchhoff $\bar{\bar{\Pi}}$ et la moyenne du gradient de la transformation $\bar{\bar{\mathbf{F}}}$:

$$\bar{\bar{\mathbf{F}}} = \frac{1}{|V_0|} \int_{V_0} \bar{\mathbf{f}} dV = \langle \bar{\mathbf{f}} \rangle_{V_0} \quad (\text{II.45})$$

$$\bar{\bar{\Pi}} = \frac{1}{|V_0|} \int_{V_0} \bar{\pi} dV = \langle \bar{\pi} \rangle_{V_0} \quad (\text{II.46})$$

où $\bar{\mathbf{f}}$ et $\bar{\pi}$ désignent respectivement les champs de gradient de transformation et champs contraintes microscopiques régnant dans le VER. Si on note $u(X)$ le champ de déplacement d'un point matériel repéré par X dans la configuration de référence, on a :

$$\bar{\mathbf{f}} = \bar{\mathbf{1}} + \frac{\partial u(X)}{\partial X} \quad (\text{II.47})$$

On notera que les moyennes sont calculées par rapport à la configuration initiale.

II.5.4.b Méthode des modules effectifs

La théorie des modules effectifs peut être transposée en grandes transformations en appliquant des conditions aux limites homogènes sur le bord ∂V_0 du VER. On distingue deux approches :

– Approche à déformation homogène sur le bord (KUBC)

L'approche à déformation homogène sur le bord consiste à imposer $u(X) = (\bar{\bar{\mathbf{f}}} - \bar{\mathbf{1}}).X$ sur ∂V_0 :

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{div} \bar{\pi}(X) = 0 \\ \bar{\pi} = \frac{\partial \psi(\bar{\mathbf{f}})}{\partial \bar{\mathbf{f}}} - p \text{Cof}(\bar{\mathbf{f}}) \\ u(X) = (\bar{\bar{\mathbf{f}}} - \bar{\mathbf{1}}).X \text{ sur } \partial V_0 \\ \langle \bar{\mathbf{f}} \rangle = \bar{\bar{\mathbf{F}}} \text{ ou } \langle \bar{\pi} \rangle = \bar{\bar{\Pi}} \end{array} \right. \quad (\text{II.48})$$

– Approche à contrainte homogène sur le bord (SUBC)

On impose alors $\bar{\bar{\Pi}}.N = \langle \bar{\pi} \rangle.N$ sur ∂V_0 .

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{div} \bar{\pi}(X) = 0 \\ \bar{\pi} = \frac{\partial \psi(\bar{\mathbf{f}})}{\partial \bar{\mathbf{f}}} - p \text{Cof}(\bar{\mathbf{f}}) \\ \bar{\bar{\Pi}}.N = \langle \bar{\pi} \rangle.N \text{ sur } \partial V_0 \\ \langle \bar{\mathbf{f}} \rangle = \bar{\bar{\mathbf{F}}} \text{ ou } \langle \bar{\pi} \rangle = \bar{\bar{\Pi}} \end{array} \right. \quad (\text{II.49})$$

II.5.4.c Homogénéisation périodique (PBC)

De la même manière qu'en petites déformations, dans le cas de milieu périodique, on fait l'hypothèse de périodicité du gradient de transformation et des contraintes de Piola Kirchhoff. Le problème de localisation sur la cellule de base peut alors s'écrire :

$$\left\{ \begin{array}{l} \operatorname{div} \bar{\pi}(X) = 0 \\ \bar{\pi}(X) = \frac{\partial \psi(\bar{\mathbf{f}})}{\partial \bar{\mathbf{f}}} - p \operatorname{Cof}(\bar{\mathbf{f}}) \\ \bar{\pi} \cdot N \text{ V anti-périodique,} \\ u(X) - (\langle \bar{\mathbf{f}} \rangle - \bar{\mathbf{1}}) \cdot X \text{ V périodique} \\ \langle \bar{\mathbf{f}} \rangle = \bar{\mathbf{F}} \text{ ou } \langle \bar{\pi} \rangle = \bar{\Pi} \end{array} \right. \quad (\text{II.50})$$

II.5.4.d Quelques méthodes d'homogénéisation adaptées aux élastomères renforcés en grandes déformations

Considérant un VER donné, les problèmes KUBC, SUBC ou PBC exposés précédemment peuvent être résolus numériquement par la méthode des éléments finis par exemple. On peut ainsi déterminer numériquement le comportement effectif du VER soumis à un trajet de chargement défini en termes de déformation et/ou contrainte moyenne, éventuellement avec des lois de comportement plus complexes que l'hyperélasticité pour les constituants.

De nombreux travaux sur l'homogénéisation des élastomères hyperélastiques renforcés ont montré qu'il est nécessaire d'apporter un soin particulier à la détermination du comportement effectif à cause de l'apparition d'instabilités ([40] [48],[36]). Il est néanmoins possible de définir des bornes et d'obtenir des estimations, par des méthodes similaires à celles utilisées en homogénéisation non-linéaire dans le cadre des petites perturbations (linéarisation du comportement, introduction d'un composite linéaire de comparaison, méthode du second ordre... [41],[51],[14],[35]).

Certains auteurs se sont intéressés à l'homogénéisation d'élastomères visco-hyperélastiques renforcés ([29],[23]). Lahellec se base sur une discrétisation temporelle du problème d'évolution visco-hyperélastique par un schéma d'Euler et une méthode affine de linéarisation pour se ramener à une succession de problèmes d'homogénéisation linéaire. [23] se base sur une approche initialement proposée par Christoffersen [15] pour proposer un modèle visco-hyperélastique adapté aux élastomères fortement chargés (fraction volumique de renforts élevée). Cette ap-

proche repose sur une description particulière de la microstructure (voir figure II.11) et des hypothèses cinématiques de gradient de transformation uniforme dans les renforts et dans les couches interfaces.

Les approches mentionnées ici pour déterminer des bornes et des estimations sont relativement techniques et ne sont pas immédiatement transposables à tout type de comportement. C'est pourquoi dans le cadre de ce travail exploratoire, nous aurons recours à des méthodes d'homogénéisation numériques.

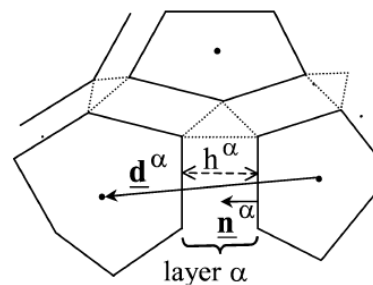


FIGURE II.11 – Grains interconnectés par une couche de matériau selon Christofferson (1983)B. Guiot et al.[24] [23] [46]

II.6 Conclusion

Dans ce chapitre, on a recensé quelques outils de modélisation pour le comportement des élastomères chargés. Les approches utilisées peuvent être phénoménologiques, microphysiquement motivées ou basées sur des techniques d'homogénéisation. La tendance actuelle privilégie les approches dérivant de techniques d'homogénéisation par le fait qu'elles tiennent compte de l'effet de la microstructure et donne un sens physique aux différents paramètres utilisés. Dans la littérature, de nombreux modèles rhéologiques sont utilisés pour modéliser le comportement des élastomères chargés. Ces modèles rhéologiques sont souvent constitués de branches en parallèle dont le nombre et la richesse visent à capter la dépendance de la réponse mécanique à la fréquence, à l'amplitude de chargement et à la température. La forme générale de ces modèles rhéologiques est décrite par la figure II.12. Etablir une relation entre ces modèles rhéologiques et la microstructure est difficile. Par ailleurs, l'identification directe des paramètres matériaux à partir des caractéristiques micro est impossible. Une alternative consiste à faire une identification par étage. De nombreux auteurs cherchent à découpler l'identification des paramètres en

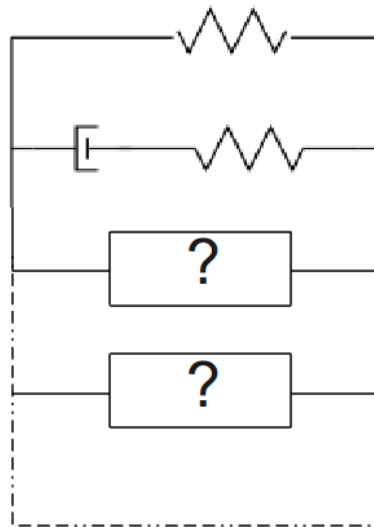


FIGURE II.12 – Modèles rhéologiques : groupement des branches en parallèle

associant à chaque branche l'effet d'une phase. Une tentative suppose que la première branche représente la matrice et le reste des branches, généralement dissipatives, désignent les différentes populations de charges. Cette schématisation en parallèle revient à adopter l'hypothèse de l'affinité (Voigt).

Cette hypothèse n'est pas prise en compte, dans les modèles développés par Miehe, par exemple. Cette divergence à l'égard de l'hypothèse de l'affinité de la déformation soulève certaines questions :

- est ce qu'elle est justifiable physiquement ?
- est ce qu'il y a des éléments qui permettent de la justifier ?

Les inconvénients majeurs des modèles rhéologiques étant les suivants :

- le nombre de paramètres à identifier ;
- le sens physique des paramètres. A titre indicatif, la raideur de la branche matrice identifiée ne correspond pas à la raideur de la matrice seule ;
- ces modèles ne dépendent pas de la fraction volumique, elle n'apparaît pas explicitement dans les paramètres du modèle rhéologique.

Modélisation à une échelle mésoscopique : agglomérat + gomme

Nous proposons, dans ce chapitre, une analyse micromécanique d'un élastomère idéalisé, de type silicone/silice, constitué d'une matrice dense et d'agglomérat(s) isolé(s). L'échelle considérée est de l'ordre de la centaine de microns. A cette échelle, la matrice est considérée élastique et l'agglomérat est supposée viscoélastique. Ainsi, nous analysons l'influence des paramètres de comportement, de morphologie et d'interaction de ce modèle.

PLAN DU CHAPITRE III

III.1 Préliminaires	55
III.2 Introduction	55
III.3 Modèles considérés	58
III.4 Influence du contraste de raideur des phases	61
III.5 Pertinence de la modélisation 2D-3D	63
III.6 Analyse de l'isotropie	65
III.7 Influence du taux de charge	66
III.8 Influence de la surface spécifique	68
III.9 Bilan de la modélisation mésoscopique	71

III.1 Préliminaires

Dans ce chapitre et celui qui suit, nous allons nous intéresser à un élastomère silicone chargé de silice de l'ordre de 30 à 40% en volume. On cherche à modéliser son comportement global en prenant en compte la nature de la microstructure et les interactions entre les différentes phases. Ce matériau a fait l'objet des travaux de thèse de Jean-Marc Martinez [37] qui visent à modéliser et caractériser son comportement hyper-visco-plastique en dynamique et à différentes températures. Ces travaux ont été suivis par la thèse de Julie Grandcoin [22] pour investiguer et proposer un modèle de fatigue par endommagement.

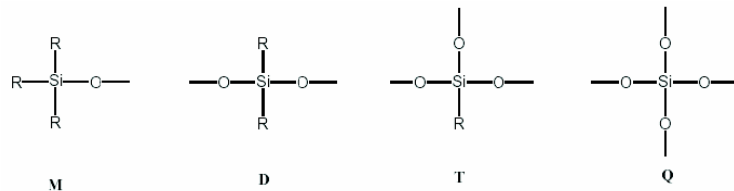


FIGURE III.1 – Différents motifs d'un silicone [26]

Le squelette d'un élastomère silicone est constitué d'une alternance d'atomes de silicium et d'oxygène. L'arrangement des atomes de silicium et d'oxygène peut prendre la forme de quatre motifs (voir figure III.1). Le réseau tridimensionnel qui en résulte a des propriétés mécaniques (rigidité, ...) qui sont fonctions du motif obtenu. D'une manière générale, les observations microscopiques ⁽¹⁾, réalisées sur ce type de matériau montrent une structure aléatoire, la formation d'agglomérats et une matrice dense (voir [26]). Comme signalé dans le chapitre I, les silicones chargés de silice se distinguent des autres élastomères synthétiques par la présence d'une incompatibilité charge/matrice due à la présence de silanols sur la surface de la silice. Les silanols vont plutôt favoriser l'interaction de type charge-charge et la tendance à s'agglomérer, ce qui donne naissance à une mauvaise dispersion [4].

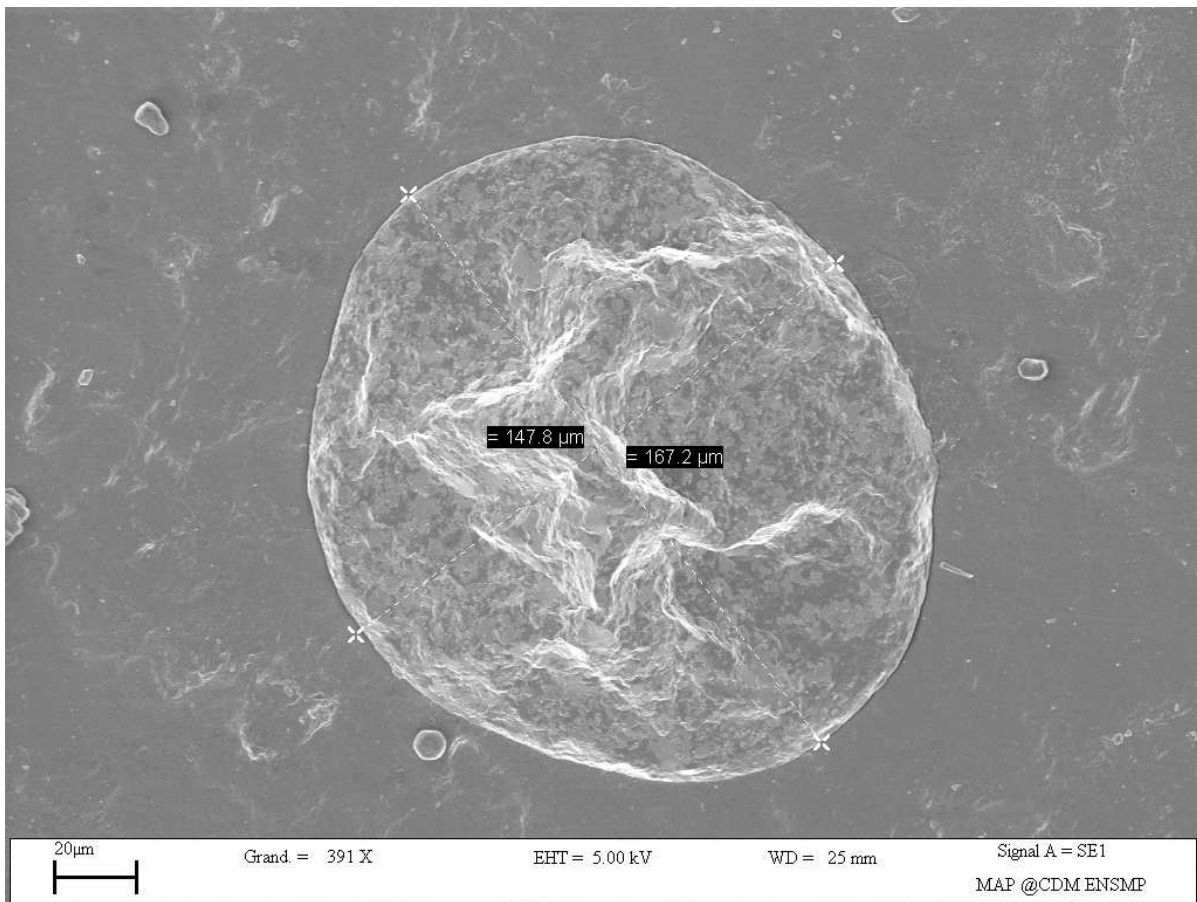
III.2 Introduction

Pendant son stage de DEA, S. Courtois a réalisé des observations microscopiques sur le matériau qui nous intéresse, en partenariat avec les Mines de Paris [16]. Ces observations réalisées au

(1). à une échelle de la dizaine de microns

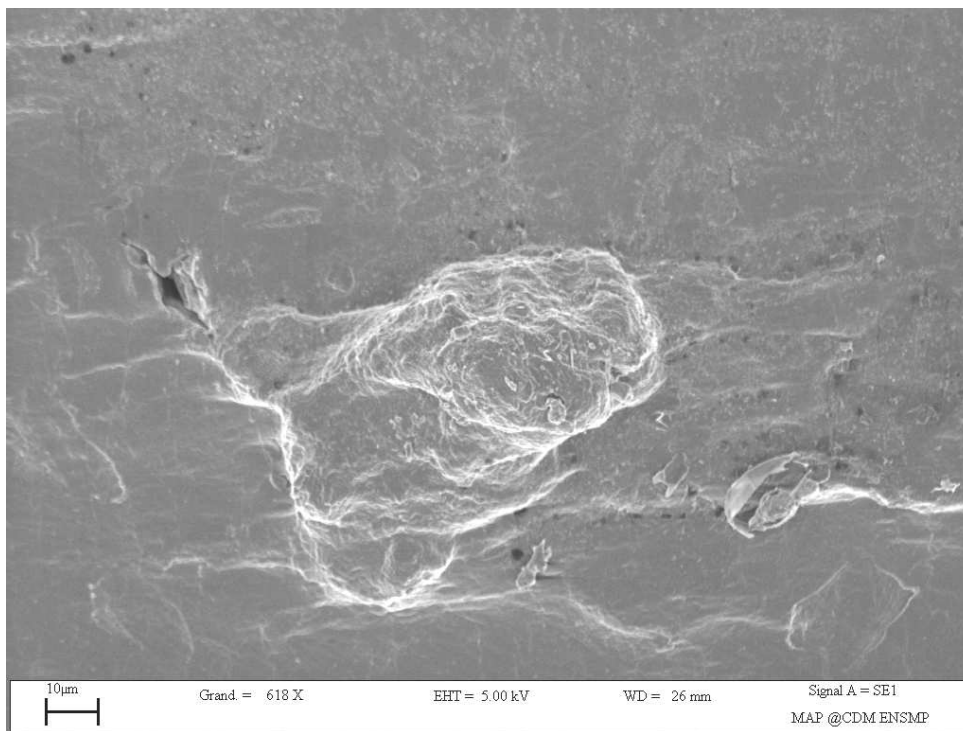
MEB ont visé à détecter les mécanismes d'endommagement au sein du matériau. Ainsi, il a réalisé des clichés MEB sur matériau sain, endommagé après fatigue et une observation sous déformation de traction d'un agglomérat de charge noyé dans la gomme. Les échelles concernées par ces expérimentations sont de l'ordre de la dizaine de microns. Partant de ces résultats, et des constats du chapitre I, nous faisons les hypothèses suivantes :

- la matrice semble dense (à l'échelle de la dizaine de microns) : absence de cavitations dans la matrice (voir figure III.3) ;
- existence de particules de charge isolées ou d'agrégats de petite taille ;
- présence d'agglomérats de charge de taille moyenne noyés dans la matrice (voir figure III.2) ;
- existence d'un phénomène de décohésion à l'interface agglomérat/matrice (voir figure III.4).

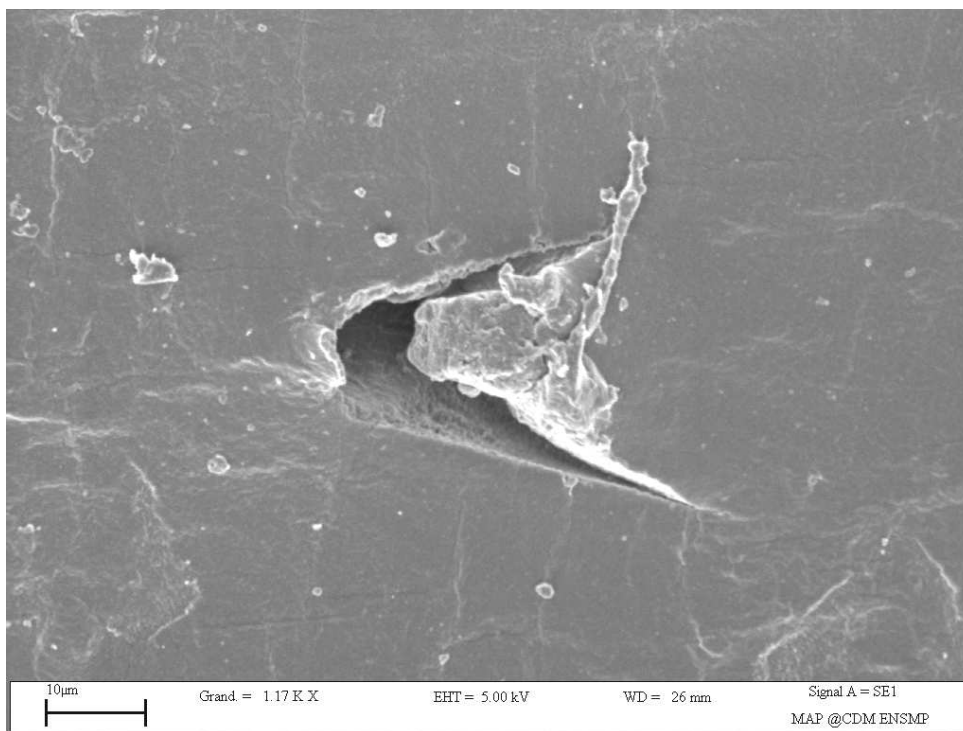


(a) un agglomérat de silice de grande taille

FIGURE III.2 – Eprouvette vierge observée sans sollicitation (MEB) [16]



(a) cavités apparues après 100000 cycles dans une zone de silice



(b) décohésion très nette à l'interface charge-matrice

FIGURE III.3 – Eprouvette endommagée à 100.000 cycles observée sans sollicitation (MEB)
[16]

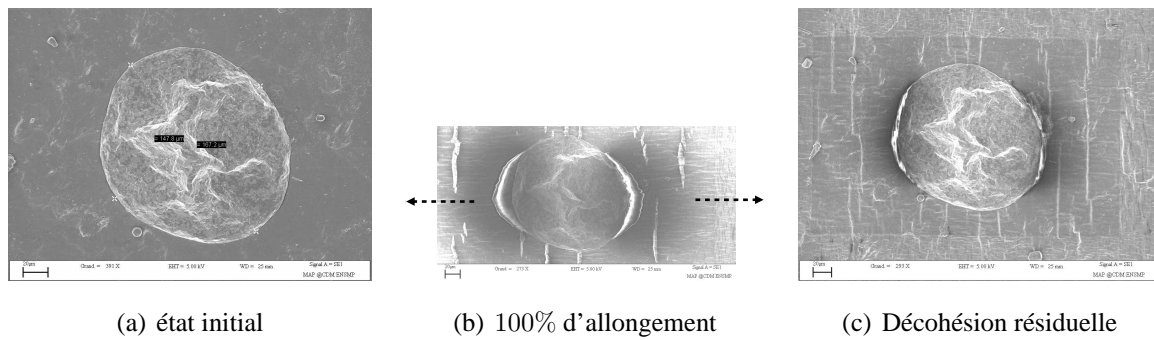


FIGURE III.4 – Mécanismes de décohésion (MEB) [16]

En nous appuyant sur ces hypothèses, nous allons chercher à déterminer la réponse mécanique de VER idéalisés correspondant à cette organisation : agglomérat et matrice dense. La démarche que nous avons adoptée est basée sur un modèle de VER constitué de deux phases : l'agglomérat de charge de silice et la matrice en silicone. Nous considérons que la matrice est élastique et que l'agglomérat est visco-élastique, ces deux phases étant faiblement compressibles. Nous nous plaçons en grandes déformations, et nous utilisons une méthode de localisation de type KUBC. Toutes les simulations sont effectuées en utilisant le code de calcul ABAQUS. L'objectif de cette partie est d'analyser l'influence des paramètres matériaux et morphologiques sur la réponse macroscopique du VER.

III.3 Modèles considérés

Nous considérons deux types de modélisations : la première est 2D en déformations planes et correspondrait à un cylindre infiniment long dans une matrice cylindrique à base hexagonale (voir figure III.5). La seconde est 3D et correspond à un agglomérat sphérique noyé dans un cylindre à base hexagonale (voir figure III.6). Ces deux VER, qui sont mono inclusion sont par la suite déclinés en version multi-inclusions.

La matrice est supposée hyperélastique incompressible avec un potentiel d'énergie de type Neo-Hooke (voir equation II.13), ou $C_{10} = 1/2Nk_bT$ désigne la paramètre matériau de ce modèle. L'agglomérat de charge est supposée hyper-viscoélastique, il est représenté par un modèle de Arruda-Bergstrom. Il s'agit d'une combinaison du modèle de Arruda de huit chaînes (voir paragraphe II.4.2) et d'un modèle d'hystérésis, disponible dans la librairie matériaux d'Abaqus. Ce dernier est basé sur un modèle de reptation des chaînes macromoléculaires. Selon cette théorie, la chaîne macromoléculaire n'est pas libre. Elle se trouve pendant son mouvement dans un tube, qui lui impose un nombre restreint de configurations. Dans ce cadre, la loi d'écoulement

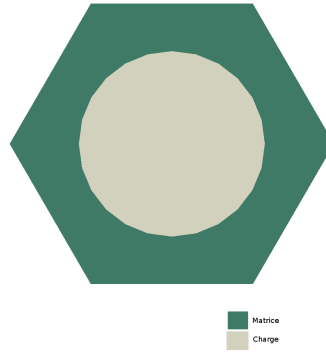


FIGURE III.5 – VER correspondant à l'analyse mésoscopique : 2D

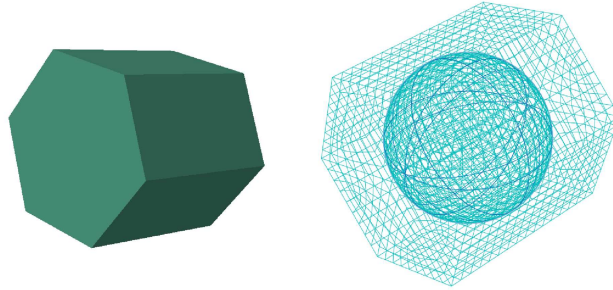


FIGURE III.6 – VER correspondant à l'analyse mésoscopique : 3D

associée à la viscosité correspond à un modèle de Zener. La contrainte est constituée de deux composantes : une composante élastique ou instantanée notée $\bar{\bar{\sigma}}_A$ et une composante visqueuse noté $\bar{\bar{\sigma}}_B$ (voir figure III.7). Le gradient de déformation est décomposé comme suit :

$$\bar{\bar{\mathbf{F}}} = \bar{\bar{\mathbf{F}}}_A = \bar{\bar{\mathbf{F}}}_B = \bar{\bar{\mathbf{F}}}_B^e \bar{\bar{\mathbf{F}}}_B^v \quad (\text{III.1})$$

avec $\bar{\bar{\mathbf{F}}} = J^{1/3} \bar{\bar{\mathbf{F}}}^*$, $J = \det(\bar{\bar{\mathbf{F}}})$, $\bar{\bar{\mathbf{B}}}^* = (J)^{-2/3} \bar{\bar{\mathbf{B}}}$, de même : $J_B^e = \det(\bar{\bar{\mathbf{F}}}_B^e)$, $\bar{\bar{\mathbf{B}}}_B^{e*} = (J_B^e)^{-2/3} \bar{\bar{\mathbf{F}}}_B^e \bar{\bar{\mathbf{F}}}_B^{eT}$
On définit : $\lambda_B^v = \sqrt{\frac{1}{3} \bar{\bar{\mathbf{I}}} : \bar{\bar{\mathbf{C}}}_B^v}$

Les équations constitutives de ce modèle sont :

$$\bar{\bar{\sigma}}_A = \frac{\mu^0}{J \bar{\lambda}^*} \frac{L^{-1}(\bar{\lambda}^*/\lambda_A^{lock})}{L^{-1}(1/\lambda_A^{lock})} dev[\bar{\bar{\mathbf{B}}}^*] + \kappa [J - 1] \bar{\bar{\mathbf{I}}} \quad (\text{III.2})$$

$$\bar{\bar{\sigma}}_B = S \frac{\mu^0}{J_B^e \bar{\lambda}_B^{e*}} \frac{L^{-1}(\bar{\lambda}_B^{e*}/\lambda_B^{lock})}{L^{-1}(1/\lambda_B^{lock})} dev[\bar{\bar{\mathbf{B}}}_B^{e*}] + \kappa [J_B^e - 1] \bar{\bar{\mathbf{I}}} \quad (\text{III.3})$$

avec, $L(x) = \coth(x) - \frac{1}{x}$ opérateur de Langevin, $\bar{\lambda}^* = \sqrt{tr(\bar{\bar{\mathbf{B}}}^*)/3}$ et $\bar{\lambda}_B^{e*} = \sqrt{tr(\bar{\bar{\mathbf{B}}}_B^{e*})/3}$. Les paramètres matériaux étant : λ^{lock} l'élongation maximale, κ , μ^0 sont respectivement le module

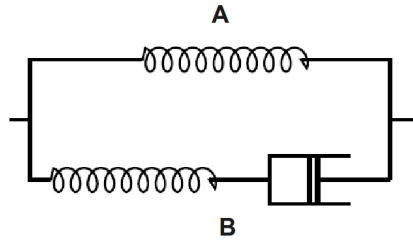


FIGURE III.7 – Modèle de Zener

de compressibilité et le module de cisaillement, S facteur d'amplification de la contrainte de la branche B par rapport à la branche A.

Le taux de déformation eulérien visqueux est défini par :

$$\bar{\mathbf{D}}_B^v = \dot{\bar{\epsilon}}_B^v N_B$$

tel que $N_B = \frac{\bar{\sigma}_B^D}{\|\bar{\sigma}_B^D\|}$

La loi d'écoulement est définie par :

$$\dot{\bar{\epsilon}}_B^v = A[\lambda_B^v - 1]^C (\tau_B)^m \quad (\text{III.4})$$

avec $\tau_B = \sqrt{\frac{1}{2} \bar{\sigma}_B^D : \bar{\sigma}_B^D}$: contrainte équivalente de von Mises dans la branche B. Les paramètres qui régissent cette loi d'écoulement sont : m qui est un exposant positif supérieur à 1, $C \in [-1, 0]$ et A qui est une constante positive. Au final, il y a 7 paramètres matériaux à définir pour ce modèle. Pour plus de détails concernant ce modèle et la théorie qui le constitue, nous renvoyons le lecteur vers les références [6], [7], [8].

Mise à part les analyses où l'on fera varier la rigidité de chaque phase, le tableau III.1 présente le jeu de paramètres matériaux utilisé dans toutes les autres analyses.

matrice		agglomérat						
C_{10} (MPa)	D (MPa) ⁻¹	μ_0 (MPa)	S	λ^{lock}	m	C	A (MPa ⁻¹ s ⁻¹)	k (MPa)
0.5	0	0.6	10	2.82	4	-1	0.95	∞

TABLE III.1 – paramètres matériaux

Dans tous les calculs éléments finis qui suivent, nous utilisons des conditions de localisation de type KUBC (voir paragraphe II.5.3.b), pour lesquelles nous imposons le gradient de déformation moyen (cas grandes déformations). Nous nous focalisons uniquement sur des cas simples

de chargement : extension-compression, cisaillement en quasi-statique. Nous considérons des cas à vitesse de déformation constante et à amplitudes progressives. Typiquement, ces chargements sont composés de trois cycles d'amplitudes respectives : 12.5%, 25% et 50% voir (figure III.8).

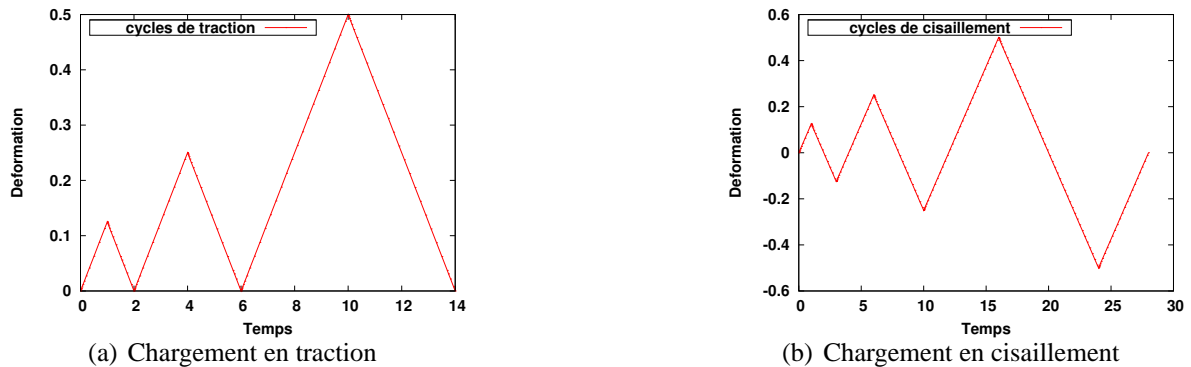


FIGURE III.8 – Chargement quasi-statique

Concernant le maillage, nous utilisons en déformations planes des éléments de type CPE8H (quadratiques en déplacement et linéaires en pression), et des éléments de type C3D20H en 3D (quadratiques en déplacement et linéaires en pression).

Après une analyse de l'influence du contraste des raideurs des phases, nous investiguons les questions suivantes :

- L'approximation de Voigt est-elle licite ?
- L'intérêt d'une modélisation en 2D : l'hypothèse des déformations planes est-elle représentative ? les phénomènes en 2D et 3D sont-ils globalement identiques ?
- Le motif de VER choisi a-t-il une réponse mécanique isotrope ?
- Comment varie la réponse mécanique quand on modifie légèrement la forme du VER ?
- Quelle est l'influence du taux de charge ?
- Quelle est l'influence de la surface spécifique ?

Ces investigations sont réalisées en observant la réponse effective du VER (réponse globale contrainte Piola-Kirchoff/élongation) et la réponse locale (déformations principales maxi).

III.4 Influence du contraste de raideur des phases

Dans cette analyse, on ne tient pas compte des effets dissipatifs, pour l'agglomérat seule la branche hyperélastique est prise en compte. On ne s'intéresse qu'à la raideur des deux phases :

matrice et agglomérat de charge. On définit le contraste r par le rapport suivant :

$$r = \frac{G}{\mu_0} = \frac{2C_{10}}{\mu_0} \quad (\text{III.5})$$

avec μ_0 le module de cisaillement initial de l'agglomérat, $2C_{10}$ le coefficient de cisaillement de la matrice. Le chargement considéré correspond à un cas de glissement simple, seule la composante 12, notée γ , du tenseur de déformation macro est non nulle. On impose $\gamma = 0.5$.

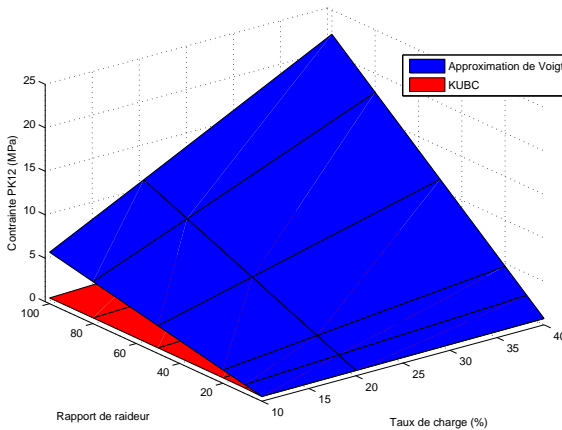


FIGURE III.9 – Influence du contraste et du taux de charge

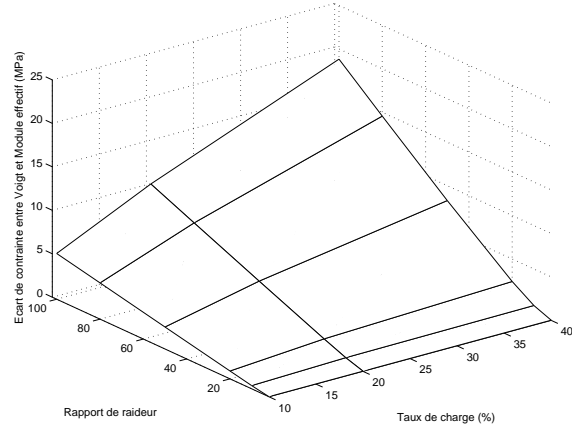


FIGURE III.10 – Ecart entre les contraintes Π_{12} de Voigt et KUBC

Les figures III.9 et III.10 présentent une comparaison des résultats obtenus par deux méthodes de localisation, à savoir KUBC et Voigt, pour différents taux de charge et différents rapports de raideurs. On remarque, sur ces figures, que l'écart entre l'approximation de Voigt et les conditions de type KUBC dépend à la fois du contraste entre les phases et du taux de charge. L'hypothèse d'affinité, qui peut être vue dans les modèles associant des branches en parallèle comme une hypothèse de Voigt est proche du résultat obtenu avec une méthode de localisation plus riche pour une plage réduite de contraste et de taux de charge. Pour un taux de charge et un contraste élevé, l'hypothèse d'affinité gomme/agglomérat semble difficile à justifier.

Il serait intéressant de disposer d'échantillons du matériau à différents taux de charges afin de confronter le numérique et l'expérimental. Malheureusement cette étude n'a pas pu être menée.

Par exemple, la figure III.11 met en évidence l'influence du taux de charge de noir de carbone sur le comportement statique d'un caoutchouc naturel pour un cas de traction (prh : « part per

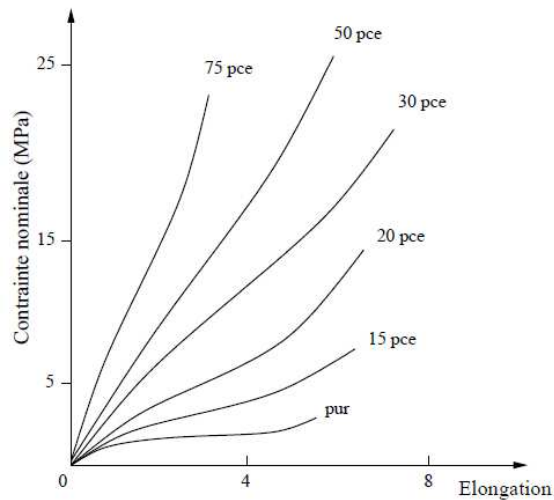


FIGURE III.11 – NR chargé de noir de carbone : traction[5]

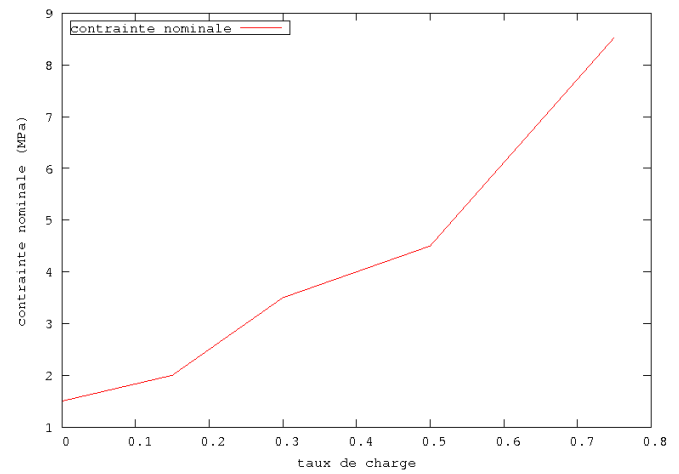


FIGURE III.12 – Evolution de la contrainte en fonction du taux de charge pour $\lambda = 2$ (d'après les résultats de [5])

hundred rubber » : partie pour cent en élastomère (pce)).

Dans la suite, on ne considère plus que des conditions de localisation de type KUBC.

III.5 Pertinence de la modélisation 2D-3D

Pour savoir si l'hypothèse de déformations planes est pertinente, dans le cas d'un agglomérat de charge supposé sphérique mais sollicité dans le plan, nous effectuons des comparaisons avec un modèle 3D. Les figures III.13 et III.14 présentent la géométrie et le maillage de chaque modèle. Dans les deux cas, le taux de charge est de 40%. Le rapport de raideur retenu pour ce calcul est de 10.

Les figures III.15 et III.16, qui présentent la réponse effective des modèles 2D et 3D dans un cas d'extension et de glissement simple, nous montrent que qualitativement les réponses sont proches. En glissement simple, le modèle 3D semble plus raide et plus dissipatif. A l'inverse, en traction, le modèle 3D est plus souple et l'énergie dissipée semble identique pour les deux modèles.

Le comportement local que ce soit en traction ou en cisaillement, montre qualitativement une localisation des déformations assez proche en déformations planes et en 3D (voir figures III.17 et III.18).

L'analyse en déformations planes semble représentative au moins qualitativement, du moins

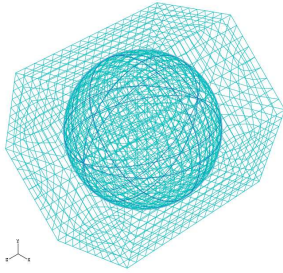


FIGURE III.13 – Maillage en 3D

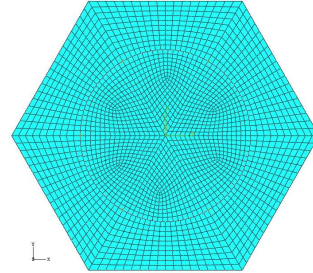


FIGURE III.14 – Maillage en 2D

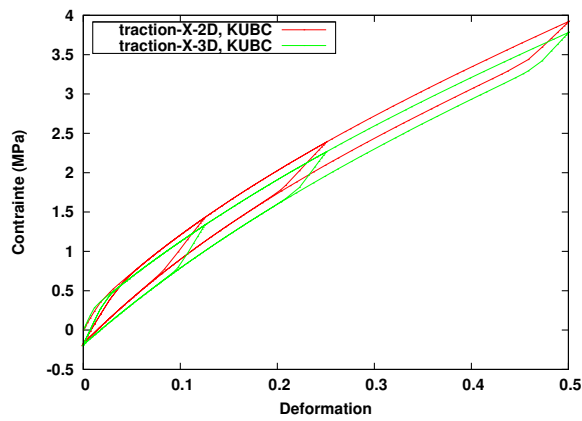


FIGURE III.15 – Traction 2D-3D

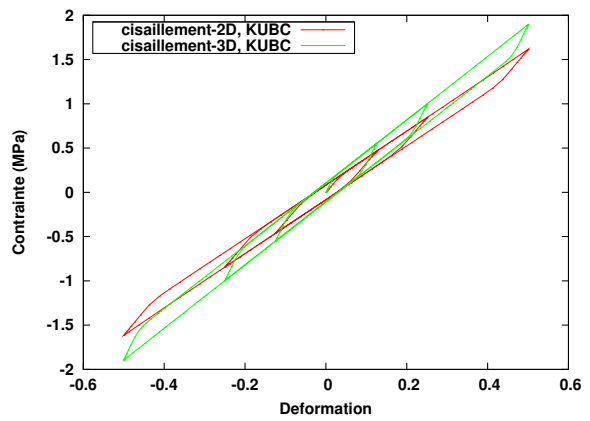


FIGURE III.16 – Cisaillement 2D-3D

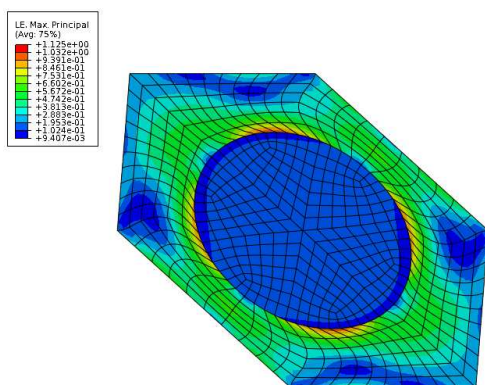


FIGURE III.17 – Cisaillement XY, 2D

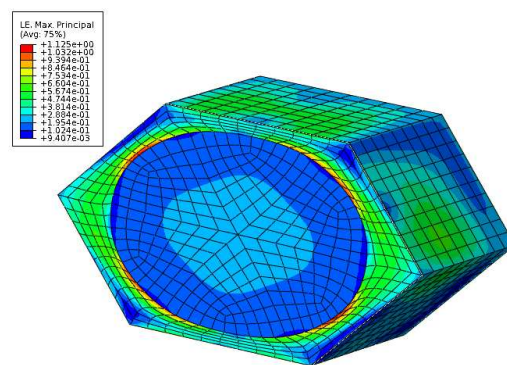


FIGURE III.18 – Cisaillement XY, 3D

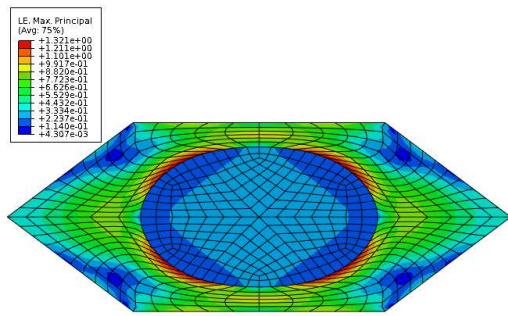


FIGURE III.19 – Traction selon X, 2D

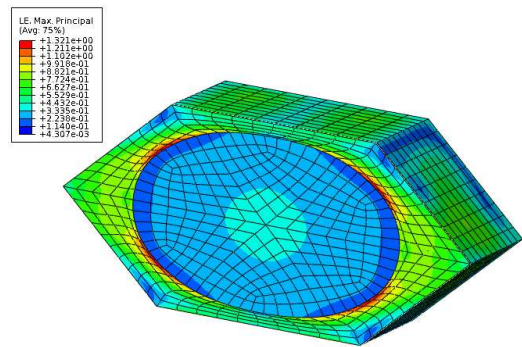


FIGURE III.20 – Traction selon X, 3D

pour ce rapport de raideur et ce taux de charge.

III.6 Analyse de l'isotropie

L'analyse de l'isotropie se fait en appliquant le chargement dans différentes directions du repère géométrique. Pour enrichir l'analyse, on a également appliqué le même chargement mais sur une configuration initiale tournée d'un certain angle. Comme dans le cas précédent, nous considérons un taux de charge de 40% et un rapport de raideur de 10. Cette étude est réalisée en déformations planes, en tridimensionnel, et pour deux types de chargement : extension et glissement simple. Dans le cas bidimensionnel et pour un chargement de cisaillement, les réponses

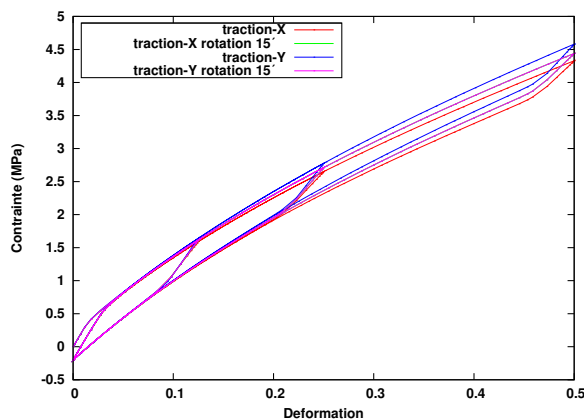


FIGURE III.21 – Traction-2D

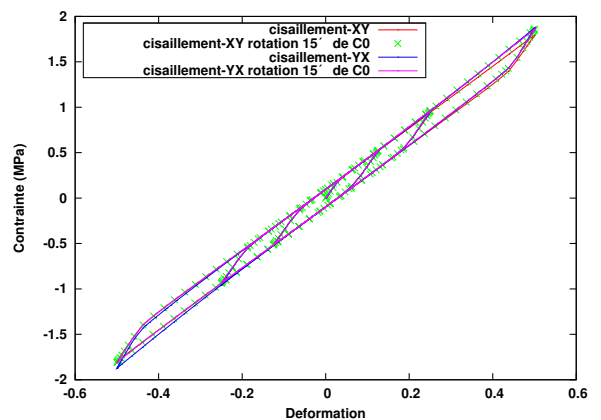


FIGURE III.22 – Cisaillement-2D

mécaniques globales du VER semblent être identiques pour les différentes directions de chargement (voir figure III.22). Les réponses en traction sont légèrement différentes au fur et à mesure

qu'on varie la direction de sollicitation (voir figure III.21). Cette différence réside essentiellement au niveau de la variation de la rigidité, la dissipation étant quasi inchangée. Les résultats

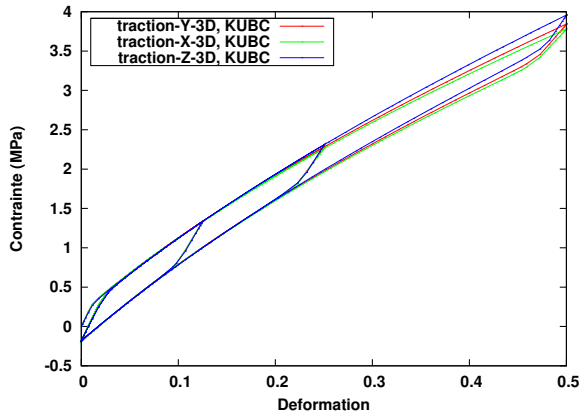


FIGURE III.23 – Traction 3D

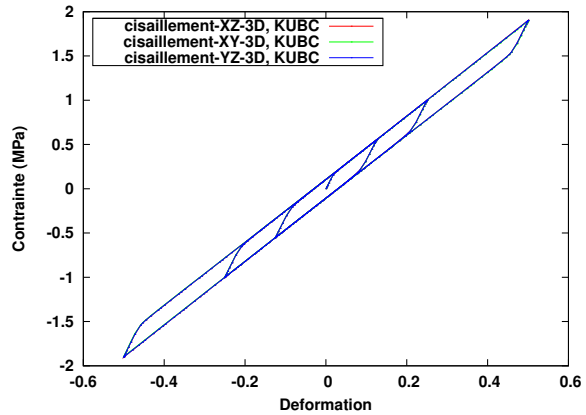


FIGURE III.24 – Cisaillement 3D

de l'analyse de l'isotropie en 3D sont pratiquement identiques à ceux obtenus en bidimensionnel (voir figures III.23 et III.24). En effet, le décalage entre les réponses mécaniques suivant les différentes directions n'est pas significatif. Les réponses en cisaillement dans les différents plans sont identiques. On note juste un faible écart, en traction, pour les différentes directions de chargement. Globalement, on peut considérer que la réponse mécanique de ces VER est

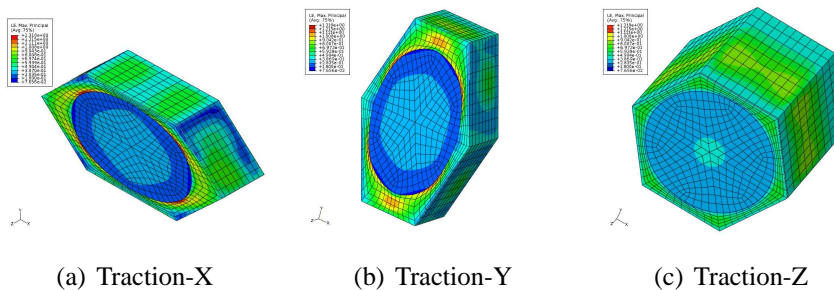


FIGURE III.25 – coupe transversale du VER : comportement local en traction (déformation logarithmique principale maxi)

quasiment isotrope.

III.7 Influence du taux de charge

Nous considérons uniquement le VER en déformations planes et nous faisons varier le taux de charge de 10 à 40% avec un rapport de raideur fixé à 10.

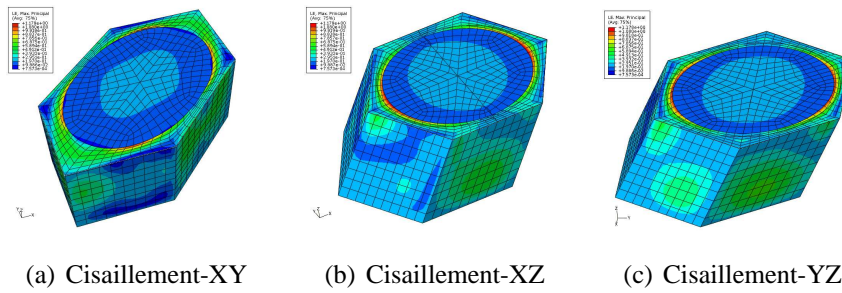


FIGURE III.26 – coupe transversale du VER :comportement local en cisaillement (déformation logarithmique principale maxi)

L'augmentation du taux de charge conduit à un élargissement des boucles de l'hystérésis. En effet plus l'élastomère est chargé plus la dissipation est importante (voir figures III.27 et III.27). L'augmentation du taux de charge fait croître la rigidité du matériau d'une façon significative en traction et en cisaillement (voir figures III.29 et III.30). On constate que cette rigidification

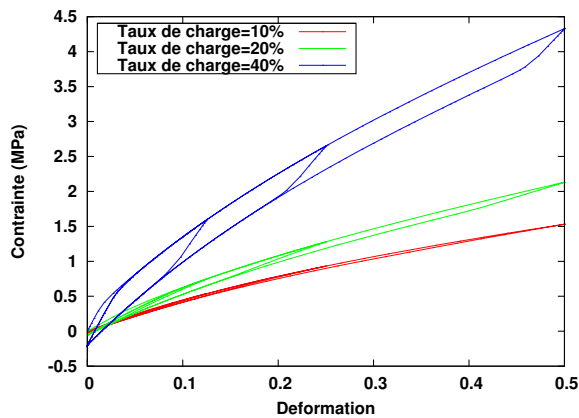


FIGURE III.27 – Traction

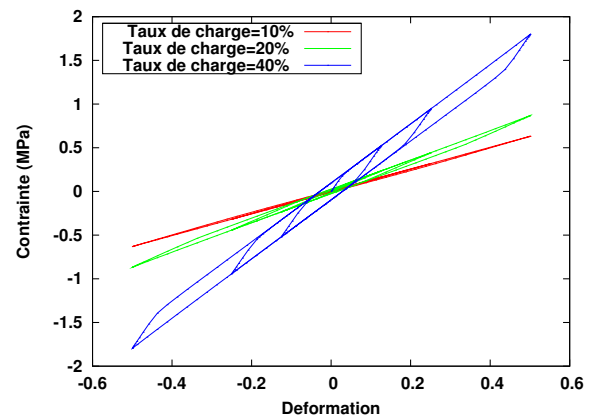


FIGURE III.28 – Cisaillement

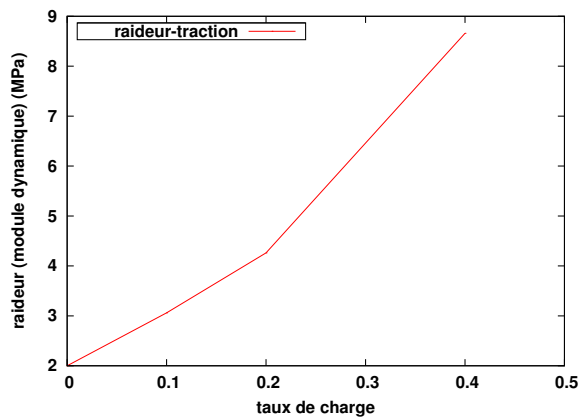


FIGURE III.29 – raideur : traction

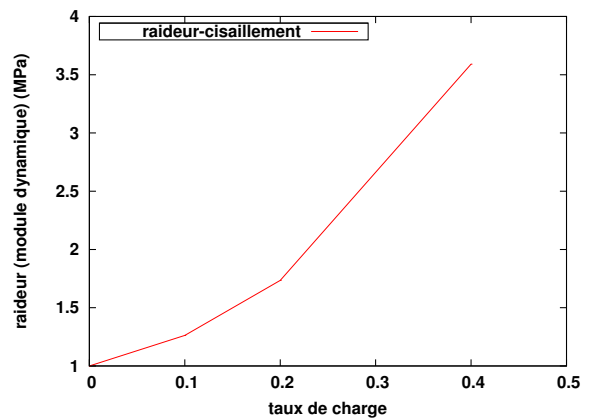


FIGURE III.30 – raideur : cisaillement

est non linéaire, ce qui est classiquement observé expérimentalement.

III.8 Influence de la surface spécifique

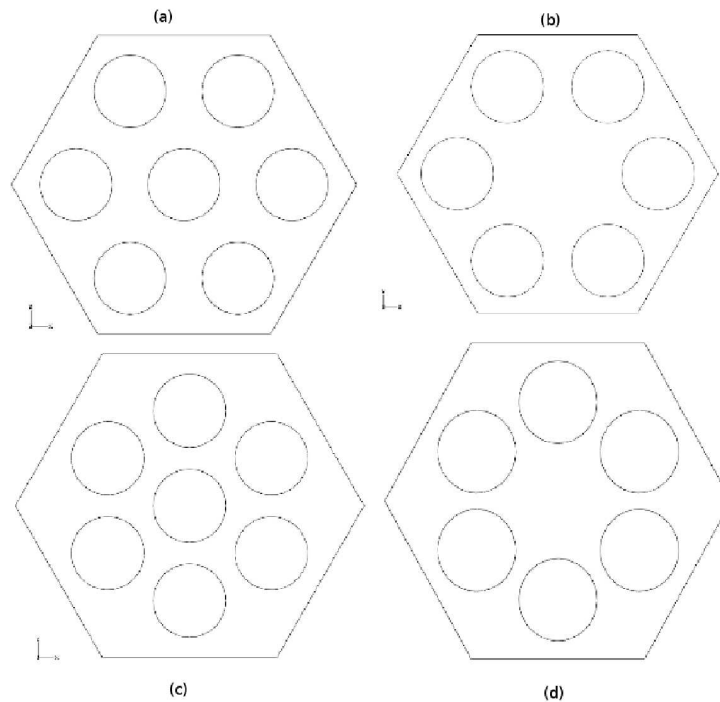


FIGURE III.31 – Différentes surfaces spécifiques

Dans ce paragraphe, la surface spécifique est définie comme le rapport de la somme de toutes les surfaces des charges noyées dans la matrice divisée par le volume total. Elle est exprimée en mm^{-1} . La figure III.31 présente des motifs de VER à différentes surfaces spécifiques.

L'idée est de saisir l'influence de l'augmentation de la zone de contact pour un même taux de charge. Dans notre étude, on considère que la masse volumique de la charge est fixe : seuls son volume et sa surface varient. De même, le taux de charge est fixé dans tous les cas à 40% et le rapport des raideurs est fixé à 10. On remarque que la rigidité et l'énergie dissipée semblent être directement reliées au confinement de la gomme. En effet, pour le cas multi-inclusions le VER (c) est le plus raide et le plus dissipatif et il se distingue des VER (d) et (b) par la présence d'une inclusion au centre. Il se distingue également du VER (a) par une plus faible épaisseur de gomme entre les inclusions. Cependant, le cas mono charge conduit à une rigidité

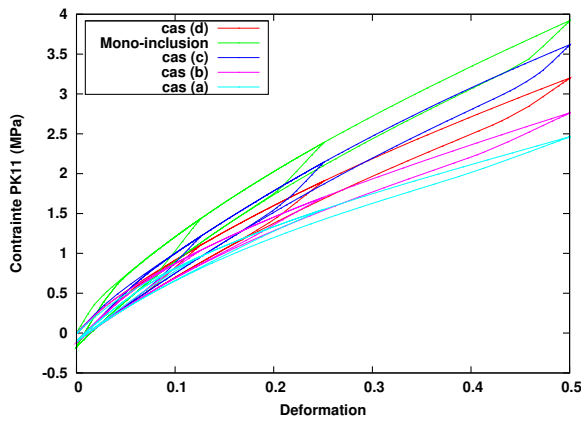


FIGURE III.32 – Traction

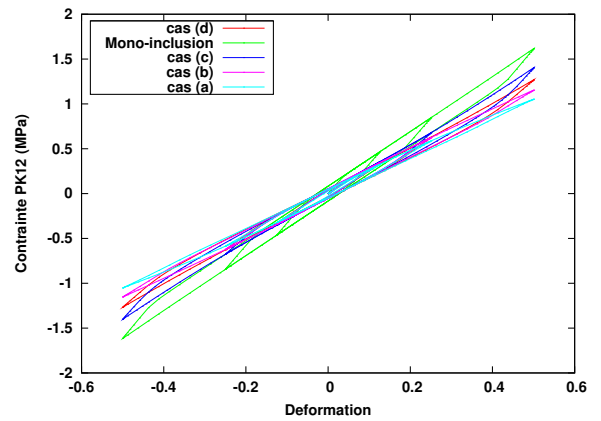


FIGURE III.33 – Cisaillement

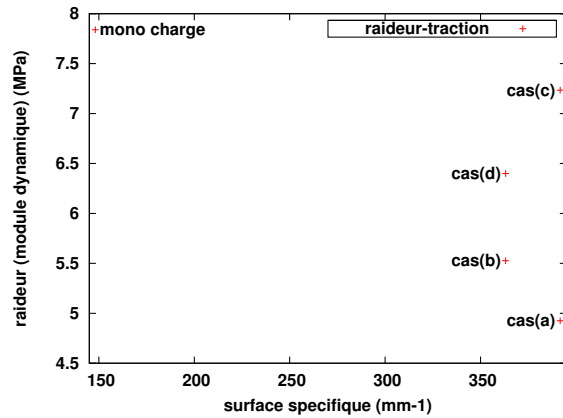


FIGURE III.34 – raideur : traction

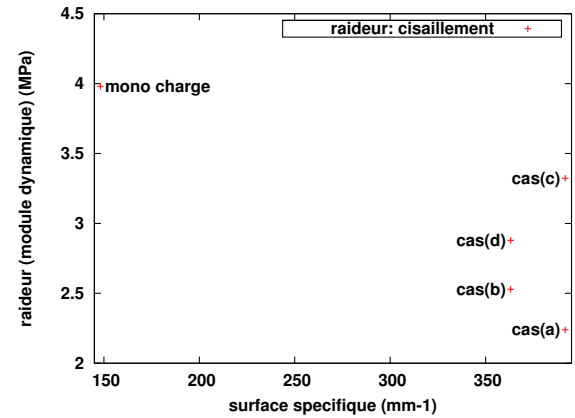


FIGURE III.35 – raideur : cisaillement

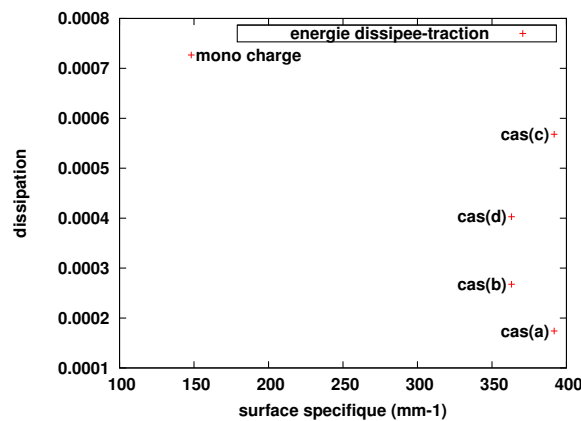


FIGURE III.36 – Energie dissipée : traction

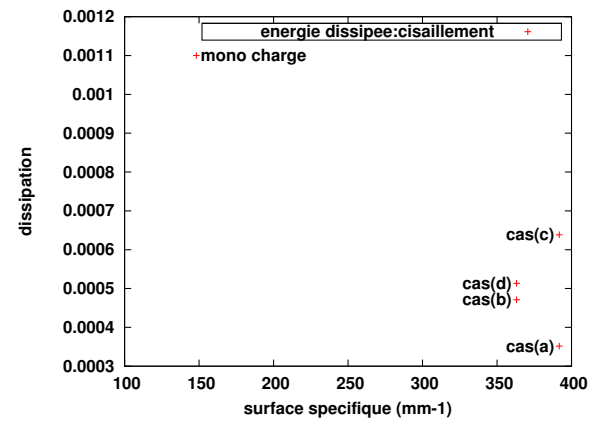


FIGURE III.37 – Energie dissipée : cisaillement

plus importante que les cas multi-inclusions ce qui reste à expliquer. Localement (voir figures III.38, III.39, III.40 et III.41), on constate que le cas (c) présente une localisation plus importante que les autres cas.

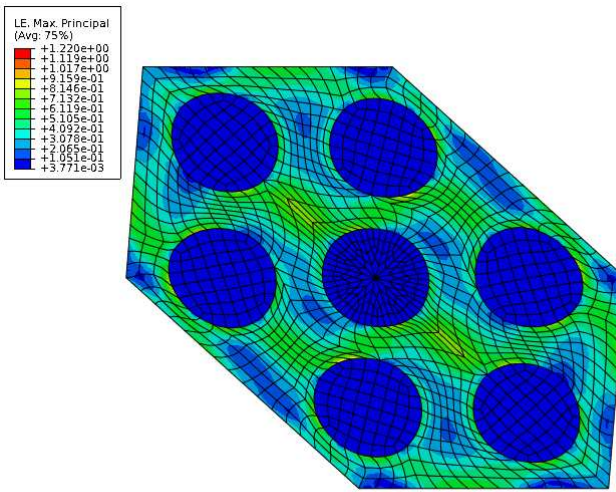


FIGURE III.38 – cas (a)

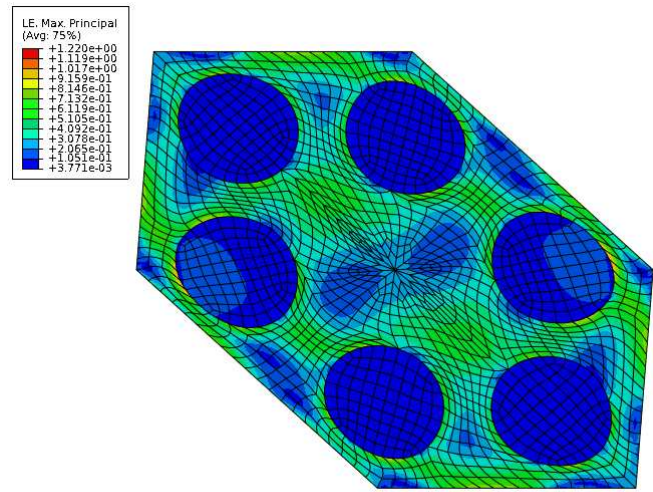


FIGURE III.39 – cas (b)

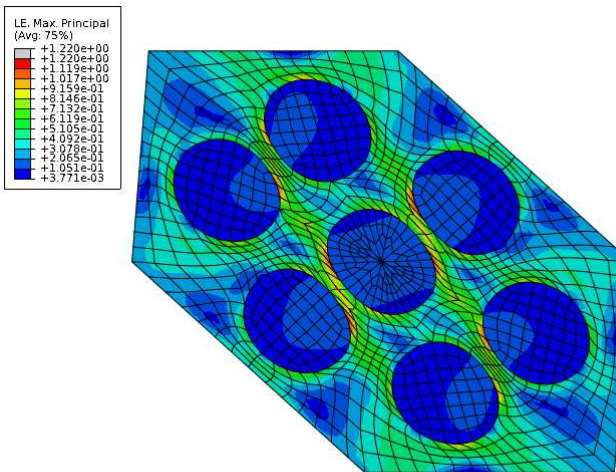


FIGURE III.40 – cas (c)

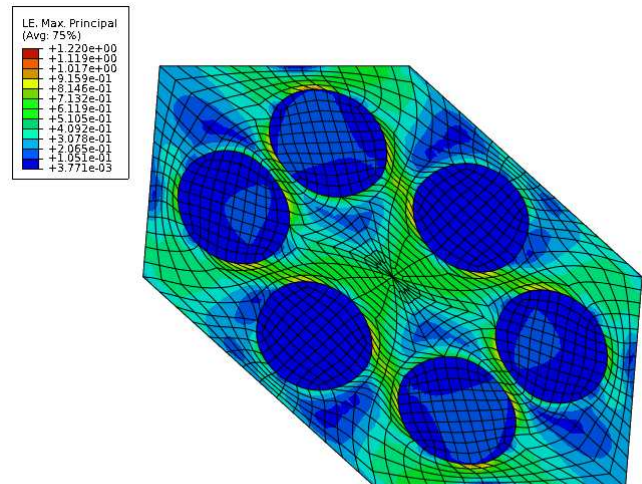


FIGURE III.41 – cas (d)

III.9 Bilan de la modélisation mésoscopique

Les analyses menées, dans ce premier volet, nous ont permis de dégager les constats suivants :

- l’hypothèse d’affinité, couramment employée dans la modélisation, semble peu justifiée dans le cas d’un agglomérat de charge sphérique noyé dans une matrice dense lorsque le contraste des raideurs est supérieur à 10. Ceci est d’autant plus vrai que le taux de charge est élevé ;
- qualitativement, le VER retenu à cette échelle conduit à une réponse isotrope ;
- la présence de zones de confinement de la gomme semble jouer un rôle très important sur les caractéristiques effectives, ceci est sans aucun doute du à l’hypothèse de l’incompressibilité.

L’absence d’ordre de grandeur de la raideur de l’agglomérat, dans la littérature, ne nous permet pas de donner une estimation précise du contraste. C’est donc un point qui reste ouvert.

Expérimentalement, nous avons constaté la présence de zones de décohésion à l’interface agglomérat - matrice et qui semblent survenir pour un faible nombre de cycle de chargement et certainement à faible déformation. De ce fait, nous avons réalisé des calculs sur ce modèle mésoscopique de VER en supposant que l’interface entre l’agglomérat de charge et la matrice est décohésive. Néanmoins, dans ce cas, on obtient bien souvent un arrêt précoce des calculs et des problèmes de convergence. Les figures III.44 et III.46 présentent un exemple de résultats de calcul d’un cas décohésif.

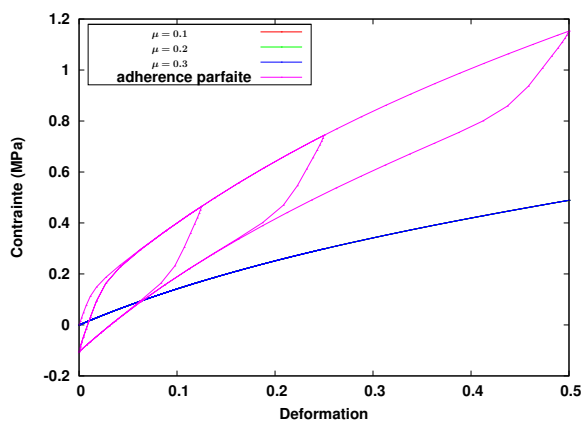


FIGURE III.42 – Traction

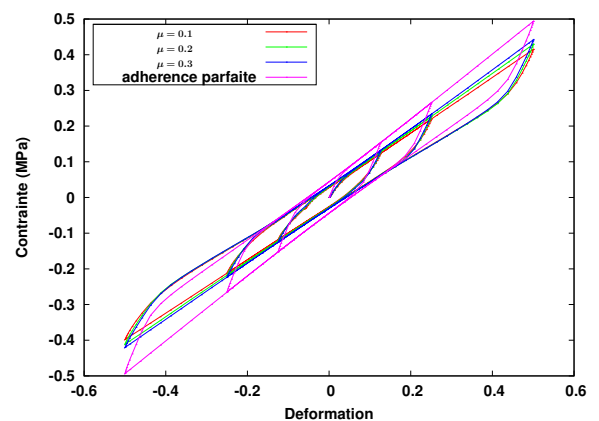


FIGURE III.43 – Cisaillement

Le comportement effectif montre que, dans le cas d’une interface décohésive, le modèle ne dissipe pas en traction et la variation du coefficient du frottement n’a pas d’influence. Dans le cas du cisaillement et pour un contact décohésif, le modèle dissipe et le coefficient de frottement joue sur la raideur et sur la dissipation. Le comportement local montre une décohésion nette en

traction qui est moins visible en cisaillement. Etant donné que dans notre modèle on a supposé que la matrice ne dissipe pas, un chargement de traction qui conduit à une décohésion très importante isole l'agglomérat de la sollicitation mécanique et nous n'avons plus dans notre modèle de source de dissipation.

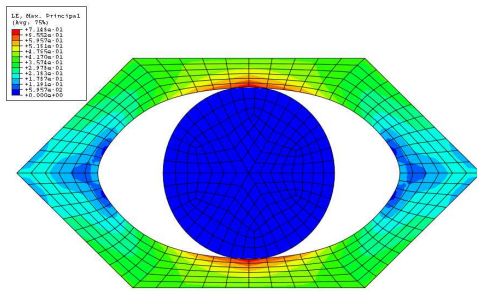


FIGURE III.44 – Traction

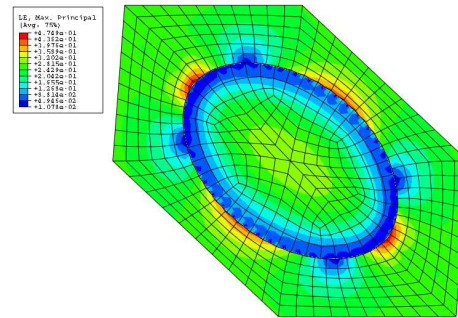


FIGURE III.45 – Cisaillement

La présence de ce phénomène de décohésion persiste même dans le cas multi-agglomérats, comme le montre la figure III.46.

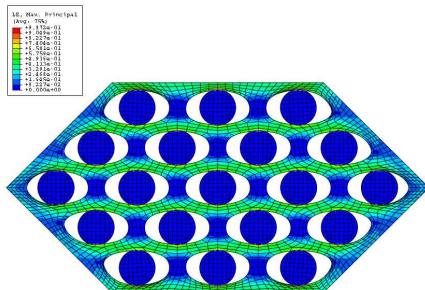


FIGURE III.46 – Traction

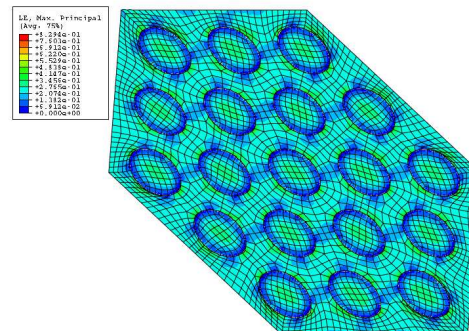


FIGURE III.47 – Cisaillement

Cette modélisation, n'est qu'un premier pas et il nous faudrait une étude expérimentale poussée afin, d'une part, de mieux comprendre les mécanismes de décohésion et/ou de frottement et, d'autre part, de déterminer des ordres de grandeur des paramètres qui gouvernent la décohésion.

En ce qui concerne l'agglomérat, il nous reste à explorer quels sont les phénomènes qui pourraient expliquer une dissipation visqueuse au sein d'une structure qui voit à priori une faible déformation, c'est l'objet du chapitre qui suit.

Modélisation à une échelle microscopique : charges élémentaires + élastomères liés

Ce chapitre propose un modèle d'agglomérat constitué de particules de charge interconnectées par une fine couche de gomme. Des Volumes Elémentaires sont générés de manière aléatoire, en se basant sur un motif de polygones de Voronoï représentant les grains de silice, afin de dégager, d'une part, un VER et, d'autre part, d'appréhender les mécanismes de dissipation dus au confinement de l'élastomère lié. L'objectif, in-fine consiste à déterminer le comportement effectif d'un agglomérat.

PLAN DU CHAPITRE IV

IV.1 Introduction	75
IV.2 Modèles considérés	77
IV.3 Cas de l'élasticité linéaire	83
IV.3.1 Caractère homogénéisable des VER	83
IV.3.2 Isotropie dans le cas périodique	86
IV.4 Cas de grandes déformations	87
IV.4.1 Analyse de la convergence en fonction du maillage	87
IV.4.2 Analyse de l'influence des paramètres matériaux	89
IV.4.3 Analyse de l'influence de la morphologie	94
IV.5 Bilan de la modélisation microscopique	99

IV.1 Introduction

Nous proposons, dans cette partie, d'explorer une échelle plus fine en s'intéressant à la composition d'un agglomérat ou d'un ensemble d'agrégats. Dans la littérature, des observations microscopiques montrent des agglomérats en abondance dans la matrice élastomérique. Ils sont constitués d'un regroupement de particules de charge avec une interface de gomme élastomérique, appelée élastomère lié et ayant des caractéristiques mécaniques différentes de la matrice. L'épaisseur de cette interface est fonction des interactions charge-charge et charge-matrice et des paramètres de mise en œuvre.

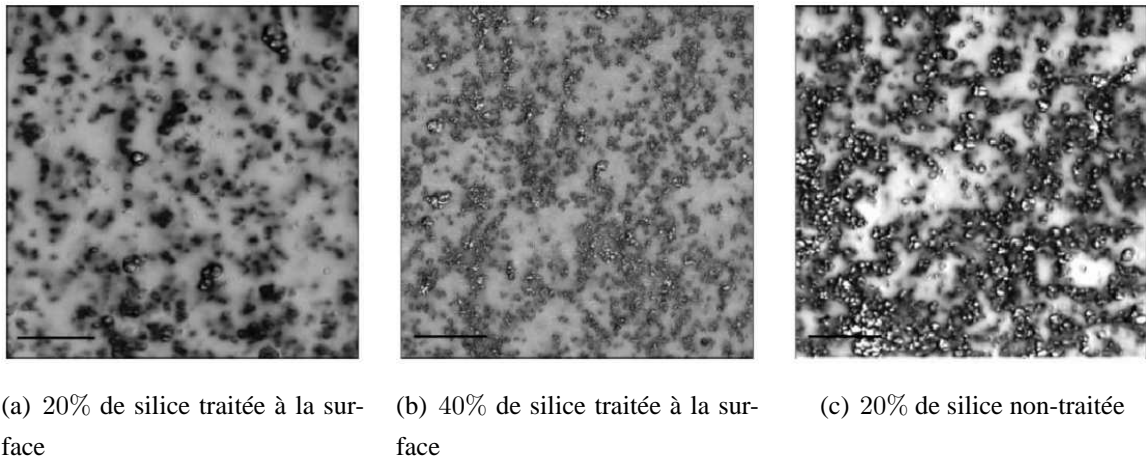


FIGURE IV.1 – Dispersion de la silice dans un silicone (TEM) (le trait dans chaque image correspond à une longueur de $1\mu m$) [26]

La figure IV.1 montre la dispersion des charges de silice dans un élastomère silicone observée par microscopie électronique à transmission (TEM). En fonction du taux de charge et des propriétés surfaciques de la silice, on trouve des morphologies différentes. Dans le cas (a), on constate la formation d'agrégats et un milieu non percolé, dans le cas (b) suite au traitement surfacique des charges de silice on obtient une plus grande dispersion des charges. Dans le cas (c), l'absence de traitement de surface conduit à une agrégation des particules plus importante et à la formation d'un réseau d'agrégats qui semble percoler pour un plus faible taux de charge que dans les cas où la surface est traitée.

Ces observations et les résultats expérimentaux de Gert Heinrich et Manfred Klüppel [25], montrent qu'il existe une mince couche d'élastomère lié entre les particules de charge. Pour un caoutchouc naturel chargé avec des particules de noir de carbone, l'épaisseur de cette couche

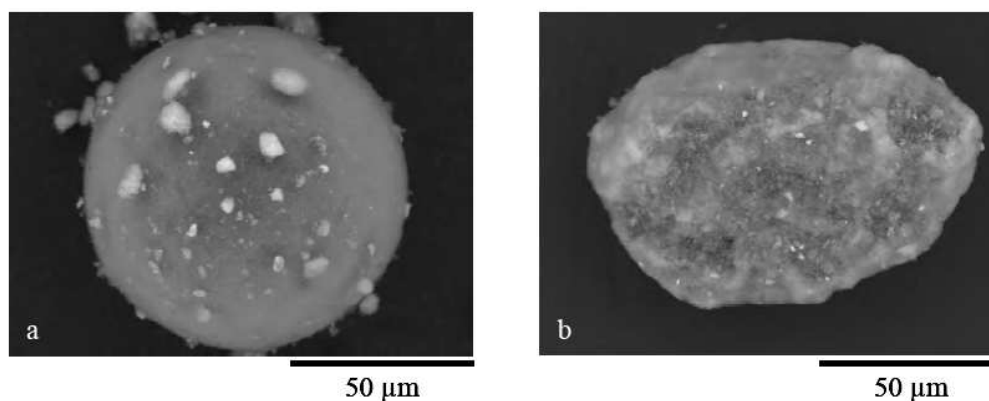


FIGURE IV.2 – Agglomérat de charge de silice (MEB) [52]

est comprise entre 2 à 5 nm (voir [25]). Ainsi, certains auteurs ont proposé des modèles qui supposent une forme polygonale des grains interconnectés avec une fine couche d'élastomère comme le montre la figure II.11. Les travaux de C. Nadot-Martin et A. Dragon et al., ([24], [23], [46]) sont inspirés du modèle de particules interconnectées proposé par Christofferson.

Dans ce chapitre, nous proposons de considérer l'agglomérat de charge comme bi-phasique : les particules de charge sont représentées à l'aide de polygones de Voronoï avec une interphase en élastomère faiblement réticulé (qui n'a donc pas le comportement de la gomme). Nous allons chercher à étudier l'influence des paramètres relatifs à la microstructure sur la réponse macroscopique, en effectuant des tirages aléatoires de microstructure. En effet, on peut générer plusieurs motifs de microstructures via l'algorithme de construction de notre VER. C'est essentiellement les paramètres géométriques caractérisant la microstructure qui changent d'un tirage à un autre :

- le rayon moyen des particules ;
- la distribution des particules et leurs orientations ;
- le nombre des particules (on peut avoir plusieurs microstructures pour un taux de charge donné) ;
- l'épaisseur de l'interface qui peut être variable dans le cas où le nombre de particules et le rayon moyen sont fixés.

Vu le contraste de raideur entre la gomme et les particules de silice, nous considérons ces dernières comme infiniment rigides. L'élastomère lié est supposé faiblement réticulé et il est modélisé par un comportement hyper-viscoplastique. Les différents VER sont analysés par des

calculs utilisant différentes méthodes de localisation à savoir KUBC, SUBC ou PBC. Enfin, nous considérons à la fois des analyses en petites et grandes déformations.

IV.2 Modèles considérés

La génération aléatoire d'un VER est réalisée à l'aide d'une interface et de scripts python intégrés à ABAQUS-CAE (voir figure IV.3). Ces scripts sont basés sur l'algorithme suivant :

1. tirage aléatoire d'un nombre de germes donné par l'utilisateur avec des contraintes de distance mini entre germes. Ce tirage est réalisé dans un domaine carré, rectangulaire, circulaire ou ellipsoïdale ;
2. génération à partir des germes d'un diagramme de Voronoï ;
3. ajout d'une épaisseur uniforme entre chaque polygone de Voronoï. Cette épaisseur peut être soit directement spécifiée par l'utilisateur, soit déterminée par l'algorithme de manière à obtenir un taux de charge fixé ;
4. dans le cas de conditions KUBC ou SUBC, une épaisseur de gomme est ajoutée sur le bord, voir figure IV.5. Dans le cas de condition PBC, le VER est périodisé comme le montre la figure IV.4 ;
5. les propriétés de solide rigide des grains sont automatiquement générées en affectant un point de référence à chaque grain, ces derniers correspondent aux germes initiaux.

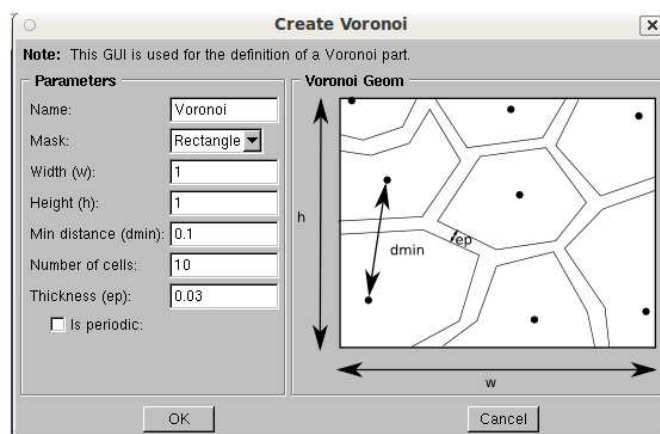


FIGURE IV.3 – Génération automatique de la morphologie

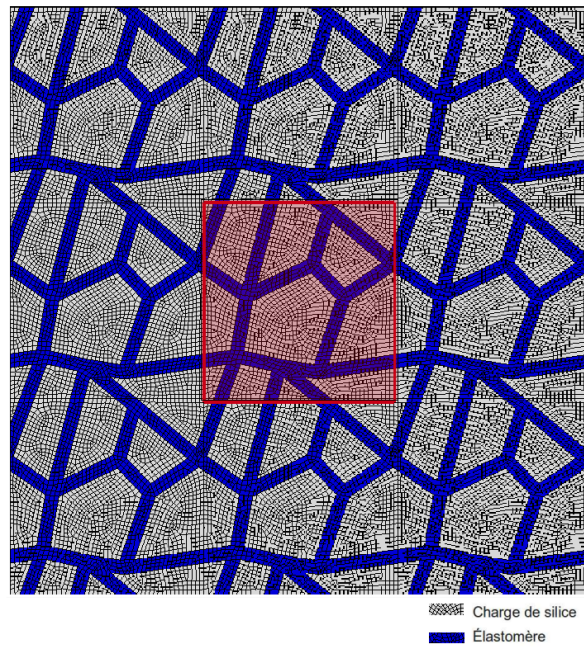


FIGURE IV.4 – Mosaïque de voronoï périodique 2D

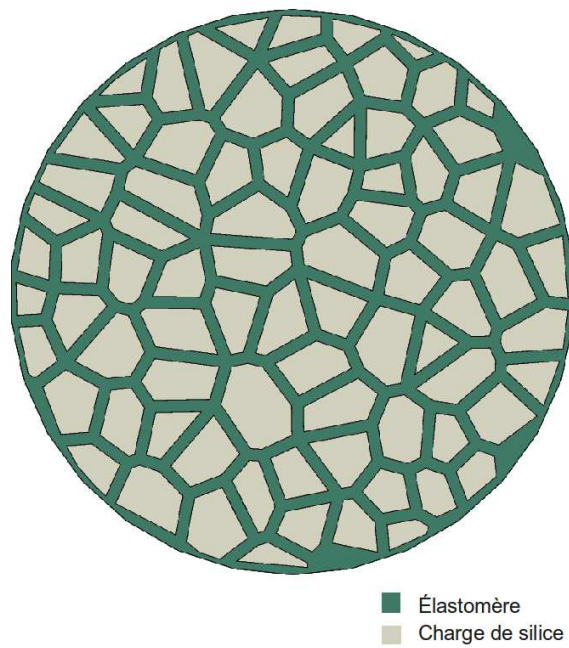


FIGURE IV.5 – Modèle d'un agglomérat de charges à bord déformable

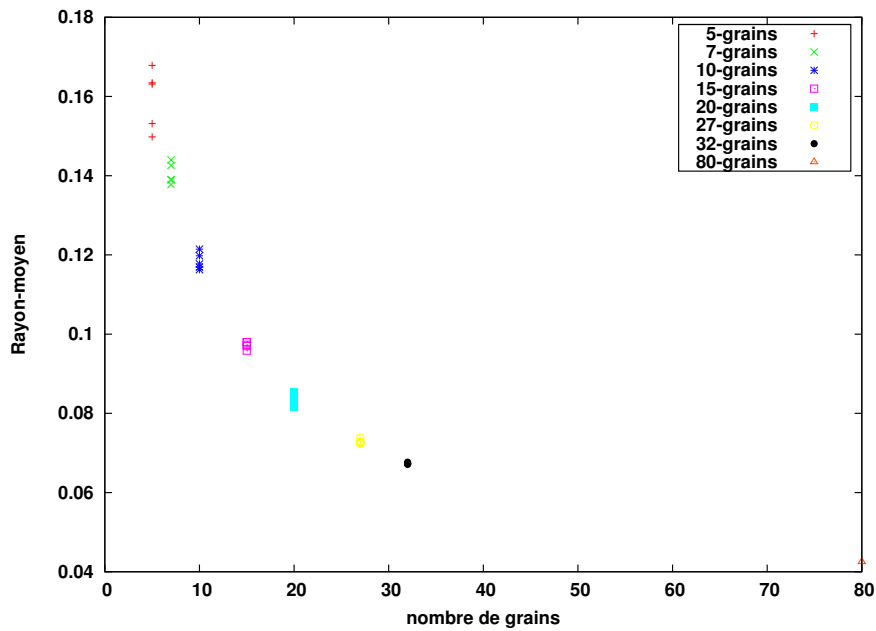


FIGURE IV.6 – Variation du rayon moyen des grains

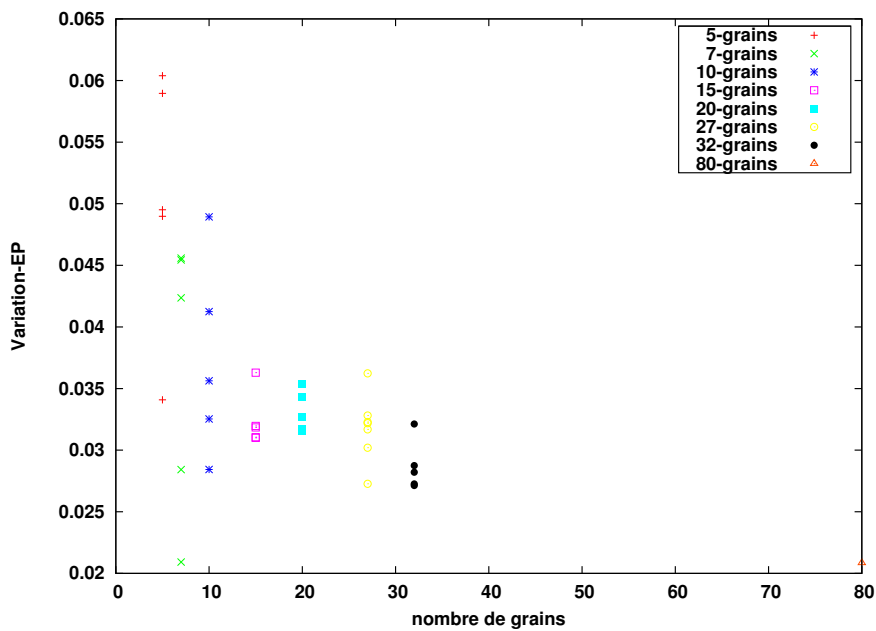


FIGURE IV.7 – Variation d'épaisseur de la couche d'élastomère

Les figures IV.6 et IV.7 présentent la variation du rayon moyen⁽¹⁾ et de l'épaisseur en fonction du nombre de grains pour différents tirages. Ces courbes ont été obtenues à partir de tirages où l'on

(1). le rayon moyen est défini comme la moyenne des rayons calculés à partir des cercles circonscrits aux polygones de Voronoi

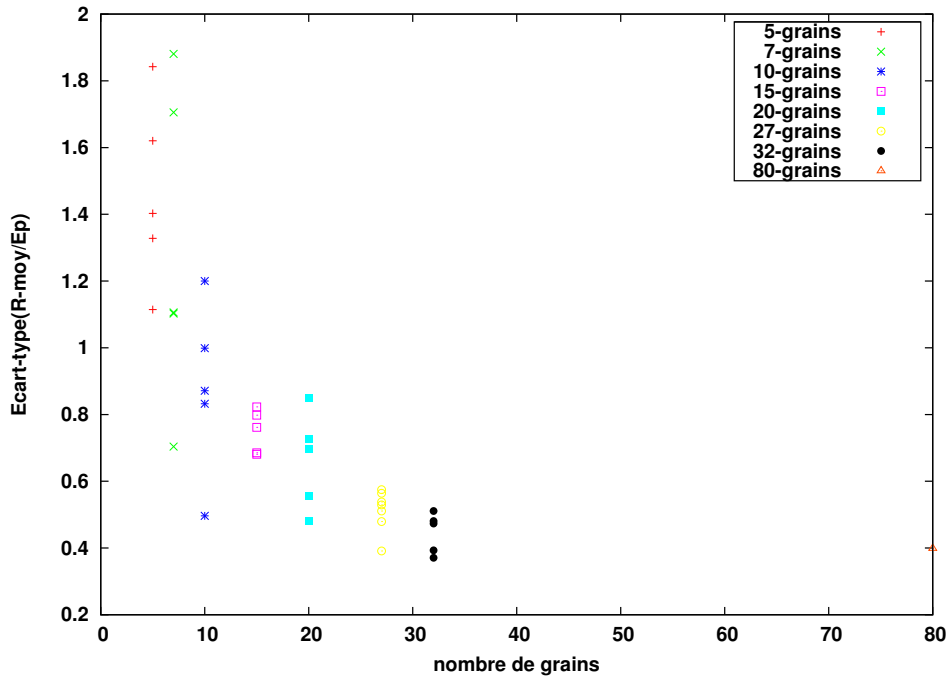


FIGURE IV.8 – Ecart type sur le rayon moyen

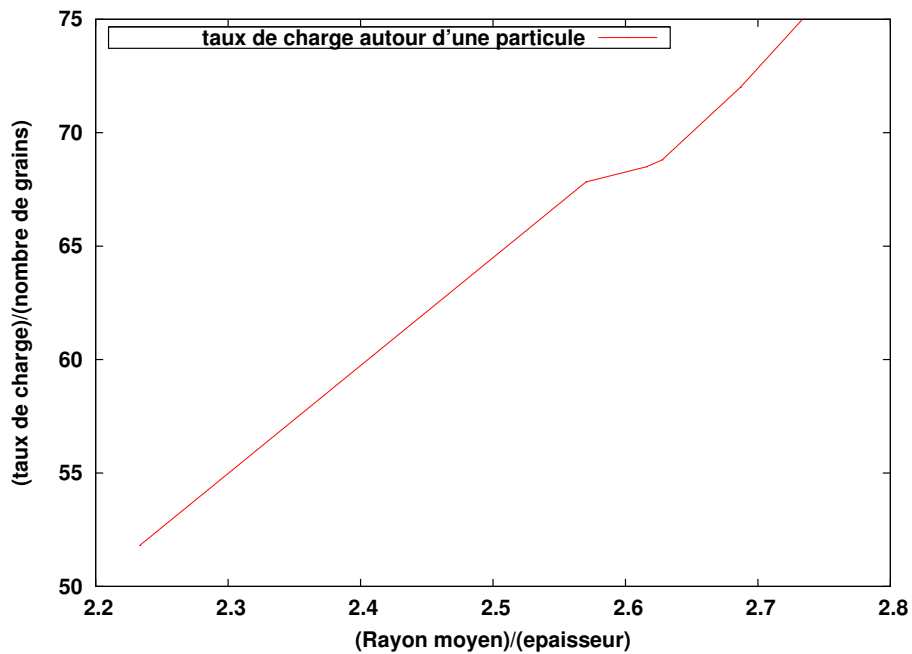


FIGURE IV.9 – Taux de charge normalisé en fonction du rayon moyen normalisé

a imposé un taux de charge de 60% et un nombre de grains. Elles nous permettent de remarquer que si l'épaisseur présente bien un caractère aléatoire, le rayon moyen semble être déterminé

par le nombre de grains. La figure IV.8 nous permet néanmoins de vérifier que l'écart type du rayon des particules au rayon moyen (normalisé par l'épaisseur) n'est pas nul lorsque le nombre de grains augmente. On conserve bien un caractère aléatoire sur la taille des particules pour des tirages à grand nombre de grains et taux de charge important. Bien entendu, ces courbes ne nous permettent pas complètement de quantifier le caractère aléatoire de la morphologie (orientation des grains, facteur d'aspect,...). Enfin, la figure IV.9 nous donne une caractéristique de notre algorithme de génération de microstructures à savoir que le taux de charge ramené au nombre de grains est quasiment linéaire en fonction du rayon moyen des grains divisé par l'épaisseur. Le taux de charge, le rayon moyen et l'épaisseur ne sont donc pas indépendants.

On génère également d'une façon automatique les conditions aux limites relatives aux trois techniques d'homogénéisation (voir annexe B). Cette étude se fait dans le cadre de l'hypothèse des déformations planes, dans le soucis de limiter la taille des calculs et en considérant que les résultats du chapitre précédent sur la comparaison 2D et 3D restent valables. Les calculs en petites déformations font intervenir une loi de comportement élastique pour l'élastomère lié. Dans le cas grandes déformations, nous utilisons une loi de comportement hyper-viscoplastique basé sur le modèle rhéologique décrit à la figure IV.10, que nous avons implémenté dans abaqus via une subroutine UMAT. Le détail de la formulation de ce modèle et de son implémentation numérique se trouve dans l'article [33].

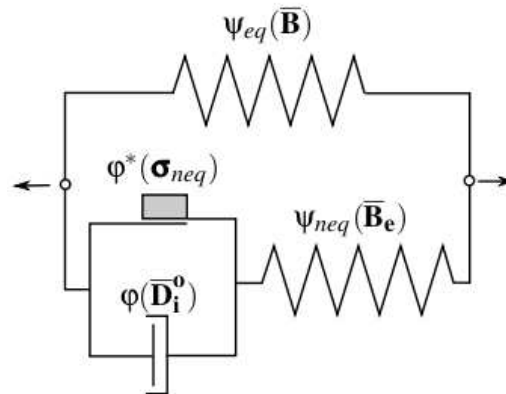


FIGURE IV.10 – Modèle viscoplastique [39] [33]

Ce modèle se base sur la décomposition suivante du gradient de déformation :

$$\mathbf{F} = (J^{\frac{1}{3}}\mathbf{1}) \cdot \bar{\mathbf{F}} = J^{\frac{1}{3}} \cdot \bar{\mathbf{F}}_e \cdot \bar{\mathbf{F}}_i \quad (\text{IV.1})$$

Avec $\bar{\mathbf{F}}$ la partie incompressible du gradient de déformation, $\bar{\mathbf{F}}_e$ la partie élastique incompressible du gradient de déformation et $\bar{\mathbf{F}}_i$ la partie inélastique incompressible du gradient de déformation. Ce modèle suppose aussi une décomposition additive de l'énergie libre en une partie volumique, « équilibrée » (réponse élastique instantanée) et une partie « non-équilibrée » (réponse différée).

$$\psi = \psi_{eq}(\bar{\mathbf{B}}) + \psi_{neq}(\bar{\mathbf{B}}_e) + \psi_{vol}(J) \quad (IV.2)$$

La loi de comportement de ce modèle est défini par :

$$\boldsymbol{\sigma} = \overbrace{(2\rho_0 J^{-1} \bar{\mathbf{B}} \frac{\partial \psi_{eq}}{\partial \bar{\mathbf{B}}})^D}^{\boldsymbol{\sigma}_{eq}} + \overbrace{(2\rho_0 J^{-1} \bar{\mathbf{B}}_e \frac{\partial \psi_{neq}}{\partial \bar{\mathbf{B}}_e})^D}^{\boldsymbol{\sigma}_{neq}} + \overbrace{\rho_0 \frac{\partial \psi_{vol}}{\partial J} \mathbf{1}}^{\boldsymbol{\sigma}_{vol}} \quad (IV.3)$$

et la loi d'écoulement est donnée par :

$$\dot{\bar{\mathbf{B}}}_e = \mathbf{L} \cdot \bar{\mathbf{B}}_e + \bar{\mathbf{B}}_e \cdot \mathbf{L}^T - \frac{2}{3} (\mathbf{1} : \mathbf{L}) \bar{\mathbf{B}}_e - 2 \frac{\langle f(\boldsymbol{\sigma}_{neq}) \rangle}{\eta} \frac{\boldsymbol{\sigma}_{neq}}{\|\boldsymbol{\sigma}_{neq}\|} \bar{\mathbf{B}}_e \quad (IV.4)$$

avec $f(\boldsymbol{\sigma}_{neq}) = \|\boldsymbol{\sigma}_{neq}\| - \chi$, $\langle \cdot \rangle$ est définie par : $\langle f \rangle = f$ si $f \geq 0$ et $\langle f \rangle = 0$ si $f < 0$. On fait les choix suivant pour les énergies libres :

$$\psi_{eq}(\bar{\mathbf{B}}) = C_{10}(I_1(\bar{\mathbf{B}}) - 3) + C_{01}(I_2(\bar{\mathbf{B}}) - 3) + C_{30}(I_1(\bar{\mathbf{B}}) - 3)^3 \quad (IV.5)$$

$$\psi_{neq}(\bar{\mathbf{B}}_e) = G(I_1(\bar{\mathbf{B}}_e) - 3) \quad (IV.6)$$

$$\psi_{vol}(J) = \frac{k}{2}(J - 1)^2 \quad (IV.7)$$

Les tableaux IV.1 et IV.2 présentent les jeux de paramètres matériaux utilisés dans la suite.

élastomère lié	
$E(\text{MPa})$	ν
3	0.45

TABLE IV.1 – paramètres matériaux du modèle d'agglomérat : cas de petites déformations

élastomère lié						
$C_{10}(\text{MPa})$	$C_{01}(\text{MPa})$	$C_{30}(\text{MPa})$	$G(\text{MPa})$	$K(\text{MPa})$	$\eta(\text{MPa.s})$	$\chi(\text{MPa})$
$1.e^{-5}$	0	0	0.01	200	0.6	0.012

TABLE IV.2 – paramètres matériaux du modèle d'agglomérat : cas de grandes déformations

Nous avons retenu l'hypothèse d'un élastomère lié faiblement compressible mais avec un module de compressibilité plus faible que celui de la gomme. Nous ne disposons pas de résultats

expérimentaux nous permettant d'avoir un ordre de grandeur de ce module. Néanmoins, nous pensons que l'aspect faiblement réticulé peut se traduire par un module de compressibilité plus faible. Dans le cas élastique, le coefficient de poisson a été pris à 0.45.

IV.3 Cas de l'élasticité linéaire

IV.3.1 Caractère homogénéisable des VER

Nous cherchons tout d'abord à déterminer si les VER idéalisés, que nous avons choisi pour représenter l'agglomérat sont homogénéisables ou non. Pour ce faire, nous effectuons un grand nombre de tirages et nous analysons la réponse effective avec les trois méthodes de localisation retenues : PBC, KUBC et SUBC. Bien entendu le VER utilisé pour le calcul avec PBC n'est pas strictement équivalent à ceux utilisés dans les autres cas, puisque ces derniers ne sont pas périodiques et comprennent une fine couche d'élastomère lié sur le bord. Néanmoins, dans le cas de milieux aléatoires homogénéisables, les trois techniques de localisation tendent à donner un résultat identique lorsque la taille du VER est suffisamment grande. Tous les tirages sont réalisés en contraignant le taux de charge à 60%. La taille des VER ne change pas, seul le nombre de grains évolue. Pour chaque tirage, nous effectuons trois calculs afin de déterminer le module de cisaillement et le module de compressibilité transverse. En effet, partant de la relation générale contraintes-déformations :

$$\begin{pmatrix} \sigma_{11} \\ \sigma_{22} \\ \sigma_{12} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} a_{1111} & a_{1122} & a_{1112} \\ a_{1122} & a_{2222} & a_{2212} \\ a_{1211} & a_{1222} & a_{1212} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \varepsilon_{11} \\ \varepsilon_{22} \\ 2\varepsilon_{12} \end{pmatrix}$$

Le module de compressibilité plan et le module de cisaillement noté successivement \tilde{K}_T et $\tilde{\mu}_T$ s'écrivent (voir [10]) :

$$\tilde{K}_T = \frac{a_{1111} + a_{2222} + a_{2211} + a_{1122}}{4} \quad (\text{IV.8})$$

$$\tilde{\mu}_T = \frac{a_{1111} + a_{2222}}{8} - \frac{a_{1122} + a_{2211}}{8} + \frac{a_{1212}}{2} \quad (\text{IV.9})$$

Les figures IV.11 et IV.12 présentent le module de compressibilité et de cisaillement en fonction du nombre de grains. On retrouve bien la classification des méthodes de localisation à savoir que KUBC est une borne sup, SUBC est une borne inf et PBC est entre les deux. D'autre part, pour un nombre de grains supérieur à 30, il semble que les bornes commencent à converger vers la même limite (ceci est plus vrai pour K que G) ce qui tend à montrer que nos VER

correspondent à un milieu homogénéisable. On remarque également que les méthodes SUBC et PBC donnent très vite la même borne et que la méthode KUBC exhibe plus fortement une dépendance au caractère aléatoire.

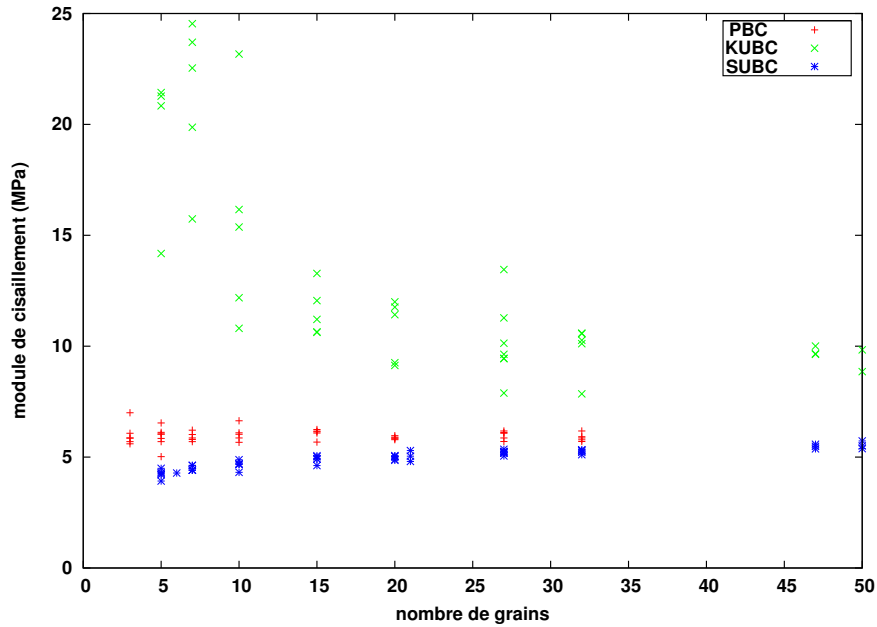


FIGURE IV.11 – Module de cisaillement

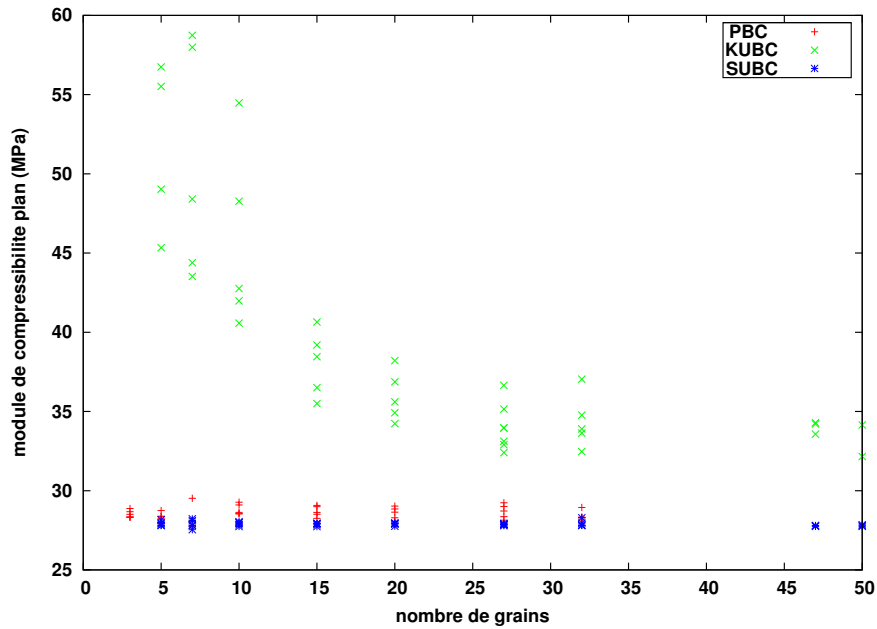


FIGURE IV.12 – Module de compressibilité

Nombre de particules : 32, Tirage 1		
KUBC	SUBC	PBC
Nombre de particules : 32, Tirage 2		
Nombre de particules : 32, Tirage 3		
Nombre de particules : 32, Tirage 4		
KUBC	SUBC	PBC
Nombre de particules : 32, Tirage 5		

TABLE IV.3 – Déformation principale maxi (même échelle d'isocouleurs)

Le tableau IV.3 présente les isocouleurs de déformation principale maxi de 5 tirages différents à 32 grains. On remarque que le niveau de déformation local est très élevé par rapport à celui imposé macroscopiquement. De plus, dans les trois cas, la déformation est très localisée. Enfin, il semble que les conditions de type KUBC conduisent à une localisation plus forte que les cas PBC et SUBC.

IV.3.2 Isotropie dans le cas périodique

En partant du comportement effectif obtenu par trois calculs élémentaires (deux extensions et un cisaillement) nous pouvons définir un écart à l'isotropie transverse en calculant l'écart relatif entre le tenseur de comportement obtenu à partir des modules de cisaillement et de compressibilité donnés par les formules IV.8 et IV.9 et le tenseur de comportement effectif. Comme précédemment, nous considérons un taux de charge de 60% et nous nous focalisons sur le cas périodique. Le calcul de l'écart par rapport à l'isotropie transverse est donné par la figure IV.13.

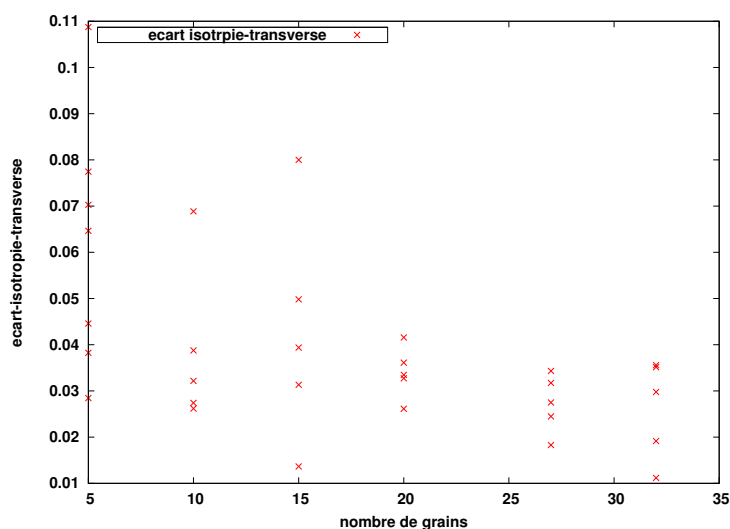


FIGURE IV.13 – Ecart par rapport à l'isotropie transverse

On remarque que l'écart par rapport à l'isotropie se stabilise pour un nombre de grains élevé. Par contre, pour un faible nombre de grains, l'écart est important (jusqu'à 10%). Le cas périodique nous permet d'obtenir une réponse quasi-isotrope pour un faible nombre de grains (à partir de 20).

IV.4 Cas de grandes déformations

Dans ce qui suit, nous utilisons uniquement la condition de localisation de type SUBC. En effet, les résultats obtenus, dans le cas de l'élasticité linéaire, nous ont montré que ces conditions sont, d'une part, les moins sensibles au caractère aléatoire et, d'autre part, elles convergent plus rapidement vers la limite asymptotique donnée par les bornes. Le taux de charge est fixé au alentour de 60% (il peut légèrement varier suivant les tirages). Hormis les calculs où l'on fait varier explicitement le nombre de grains, on utilise des tirages de VER comprenant 80 grains.

IV.4.1 Analyse de la convergence en fonction du maillage

Les ligaments d'élastomère lié tel qu'ils sont modélisés dans le VER constituent une matière confinée, l'aspect de grandes déformations conjugué avec le caractère faiblement compressible nous indique qu'il faut regarder attentivement l'effet du maillage. On va donc mener une analyse de la convergence pour un tirage et une sollicitation donnée. On va donc faire varier la taille des mailles et mesurer l'évolution de l'énergie de déformation totale pour un cas de cisaillement.

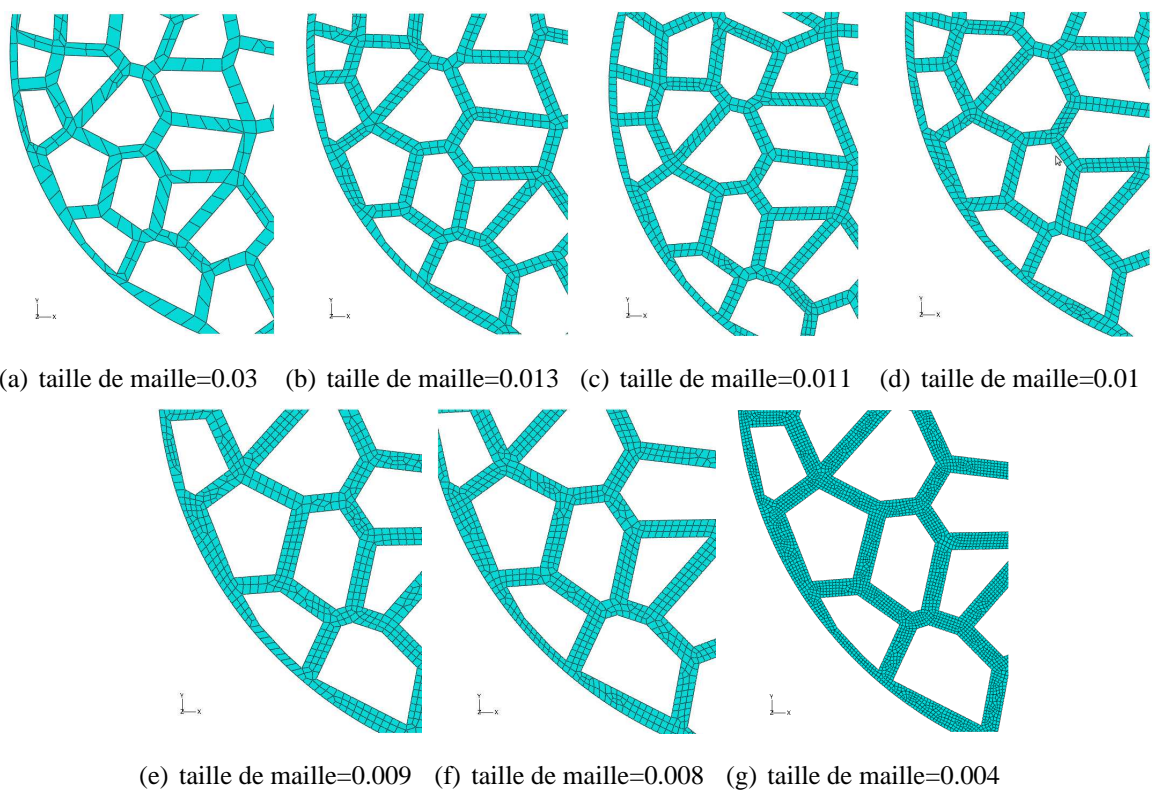


FIGURE IV.14 – Différentes tailles de maillage

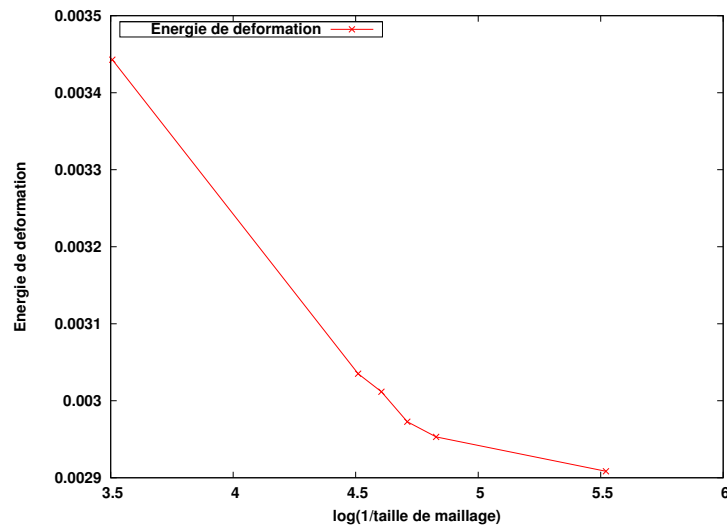
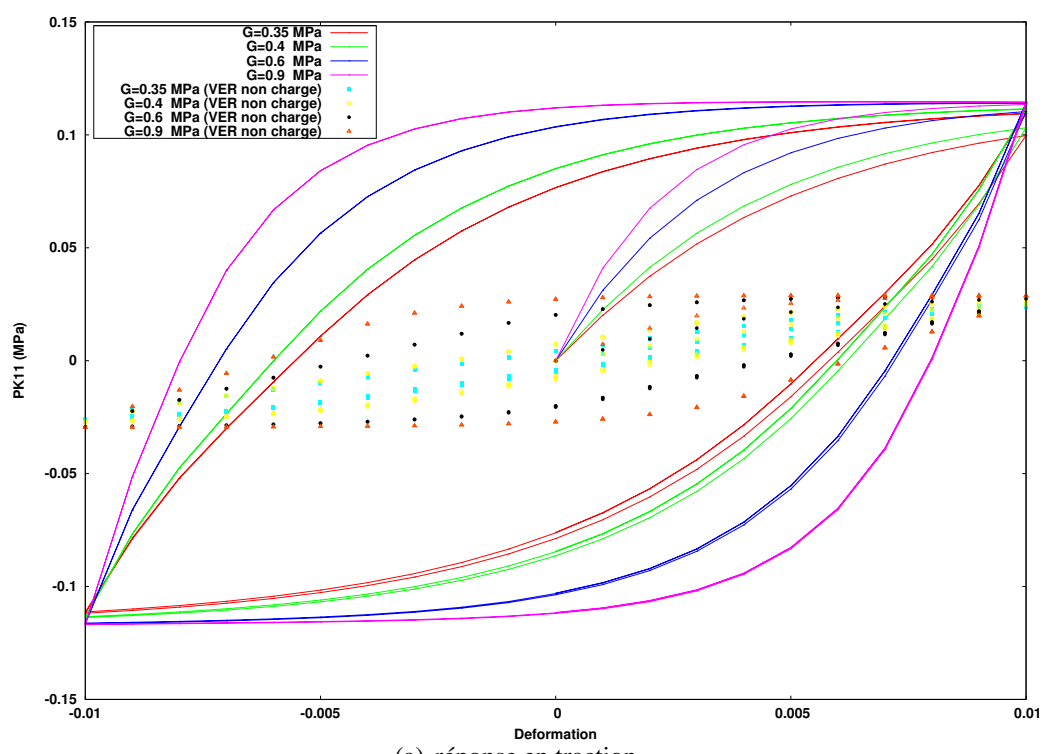


FIGURE IV.15 – Variation de l'énergie de déformation en fonction de la finesse du maillage

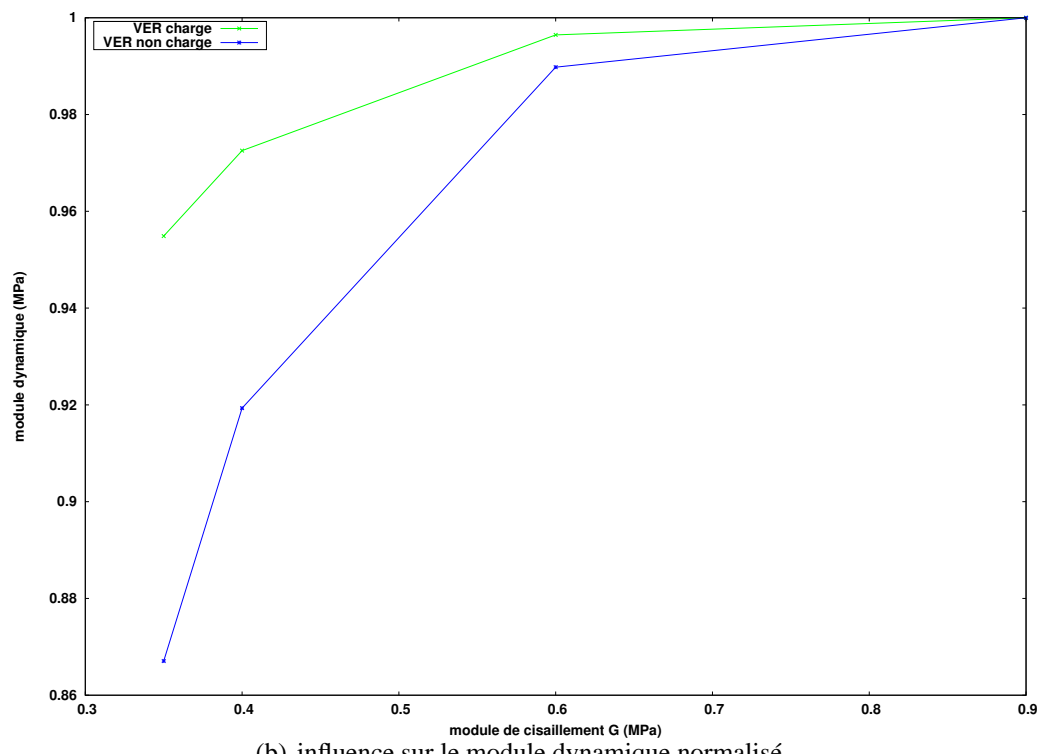
La courbe de la figure IV.15 montre que l'énergie de déformation tend à se stabiliser avec la finesse de maillage. Une taille de maille de 0.008 nous semble donc raisonnable pour les études qui suivent. Cette taille de maille doit être adaptée en fonction de l'épaisseur de l'élastomère lié. En effet, il semble que trois éléments dans l'épaisseur soient suffisants pour obtenir des résultats convergés au sens de la discrétisation en espace.

IV.4.2 Analyse de l'influence des paramètres matériaux

En considérant le cas d'un chargement cyclique triangulaire de traction avec une amplitude de 0.01 et une vitesse $\dot{\gamma} = 0.01s^{-1}$, nous faisons varier les paramètres matériaux du modèle hyper-viscoplastique et nous comparons la réponse effective du VER avec celle d'un VER constitué uniquement d'élastomère lié. De manière générale, on constate que le confinement de l'élastomère qui conduit à des niveaux de déformations locaux importants nous donne une réponse effective plus raide et beaucoup plus dissipative que le VER homogène. La figure IV.16, nous montre que le module de cisaillement de la branche dissipative influe essentiellement sur la dissipation (dans la plage explorée). On le voit notamment sur la figure de droite, qui montre l'influence des paramètres matériaux sur la raideur normalisée, calculée en divisant par la raideur maximale obtenue pour chaque type de VER. On constate que lorsqu'on fait varier le module de cisaillement de 0.35 à 0.9 MPa, le module dynamique varie de 13% pour le VER non chargé et de 5% pour le VER chargé. Les figures IV.18 et IV.19 nous montrent que les paramètres η et χ jouent à la fois sur la raideur et la dissipation et cette évolution est plus prononcée dans le cas d'un VER avec grains. Enfin, la figure IV.17 montre que le module de compressibilité ($D = 2/k$) influe de manière significative sur la raideur et la dissipation dans le cas d'un VER avec grains, ce qui n'est pas le cas d'un VER homogène en cisaillement.

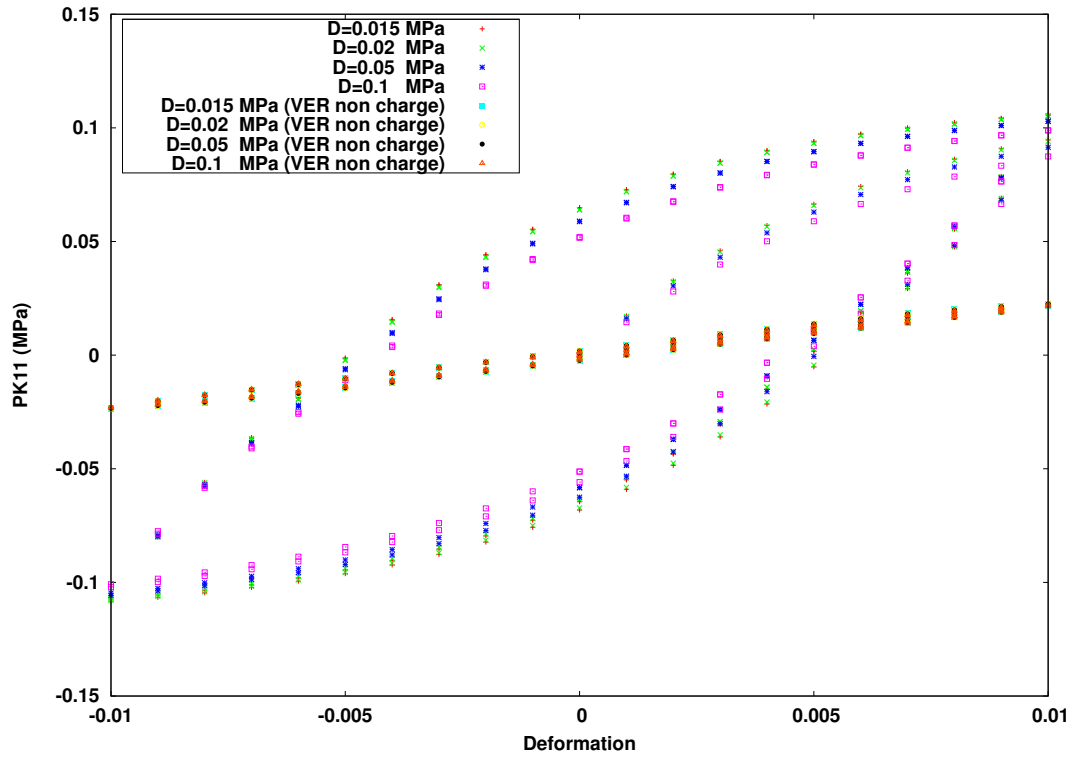


(a) réponse en traction

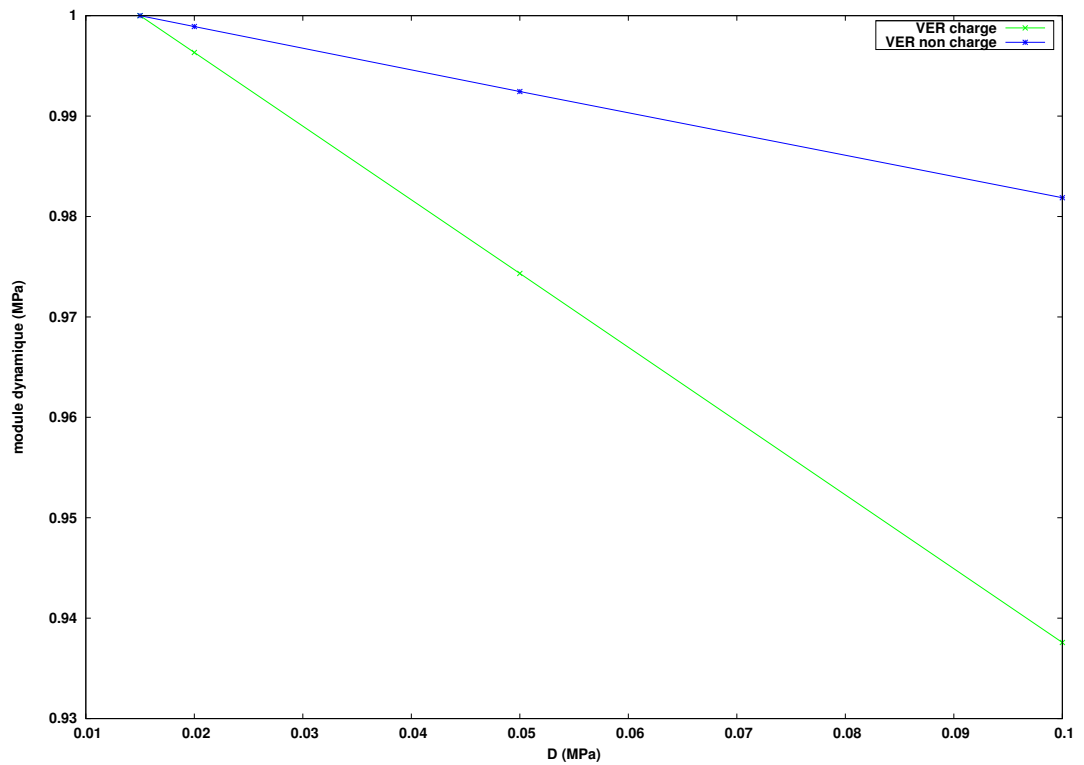


(b) influence sur le module dynamique normalisé

FIGURE IV.16 – Influence du paramètre : G



(a) réponse en traction



(b) influence sur le module dynamique normalisé

FIGURE IV.17 – Influence du paramètre : D

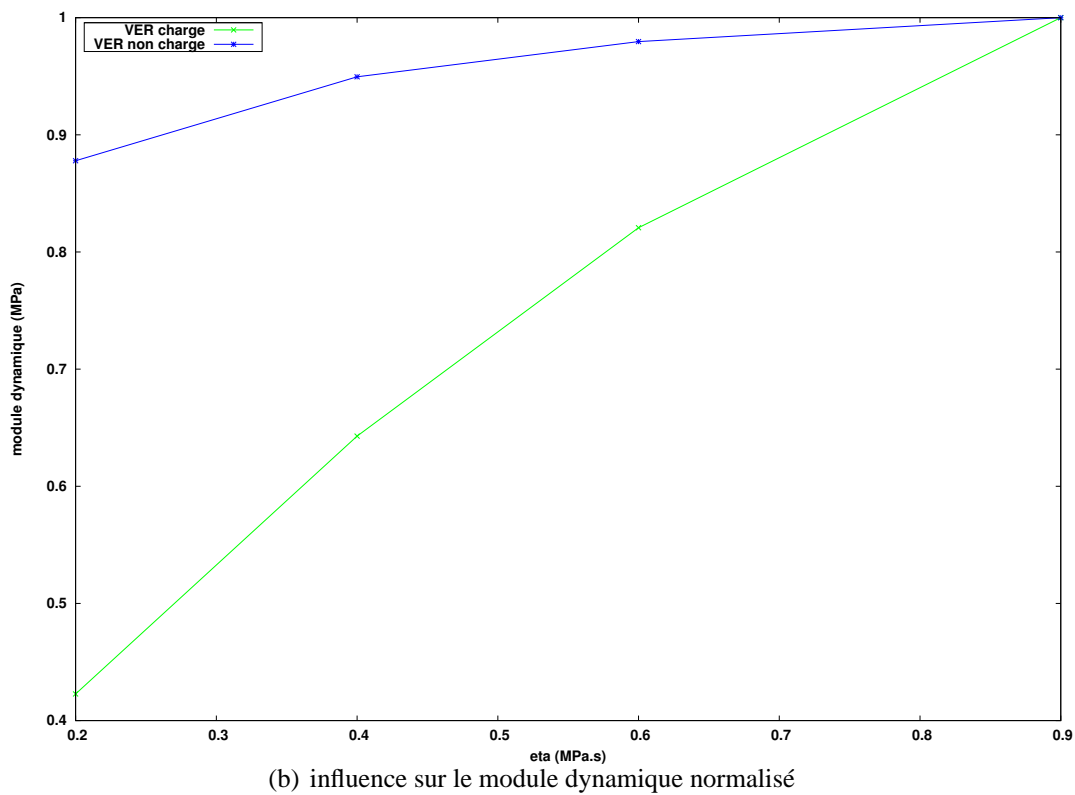
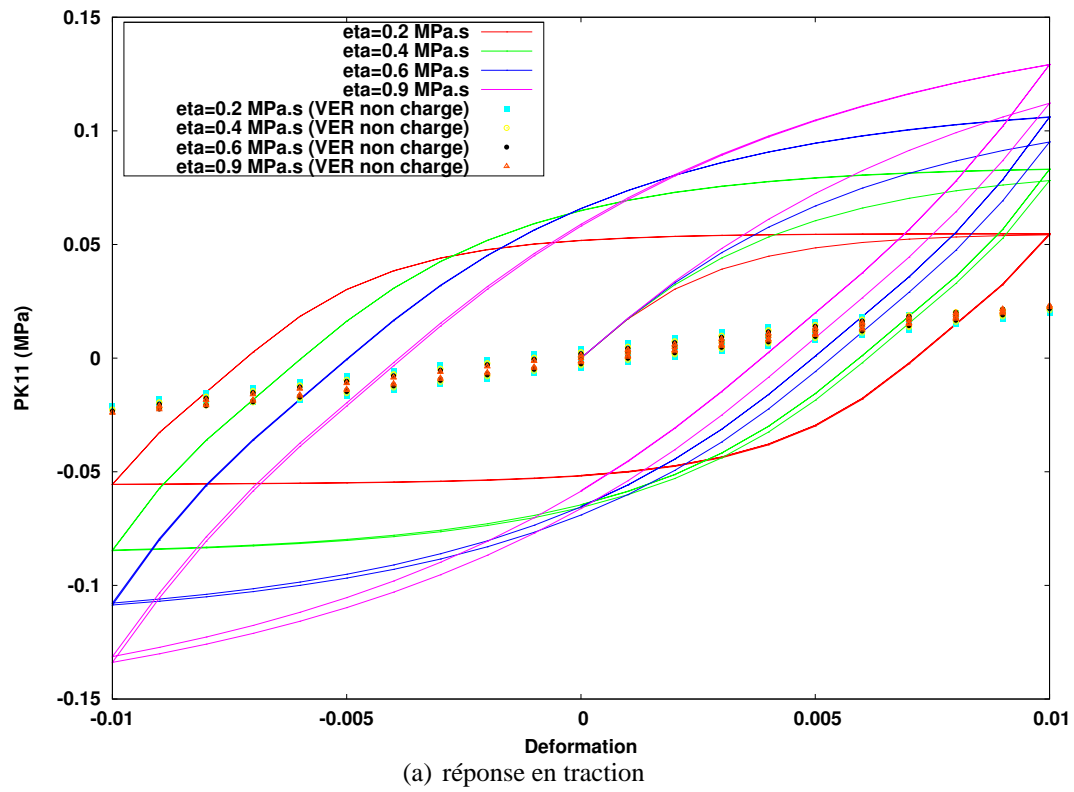
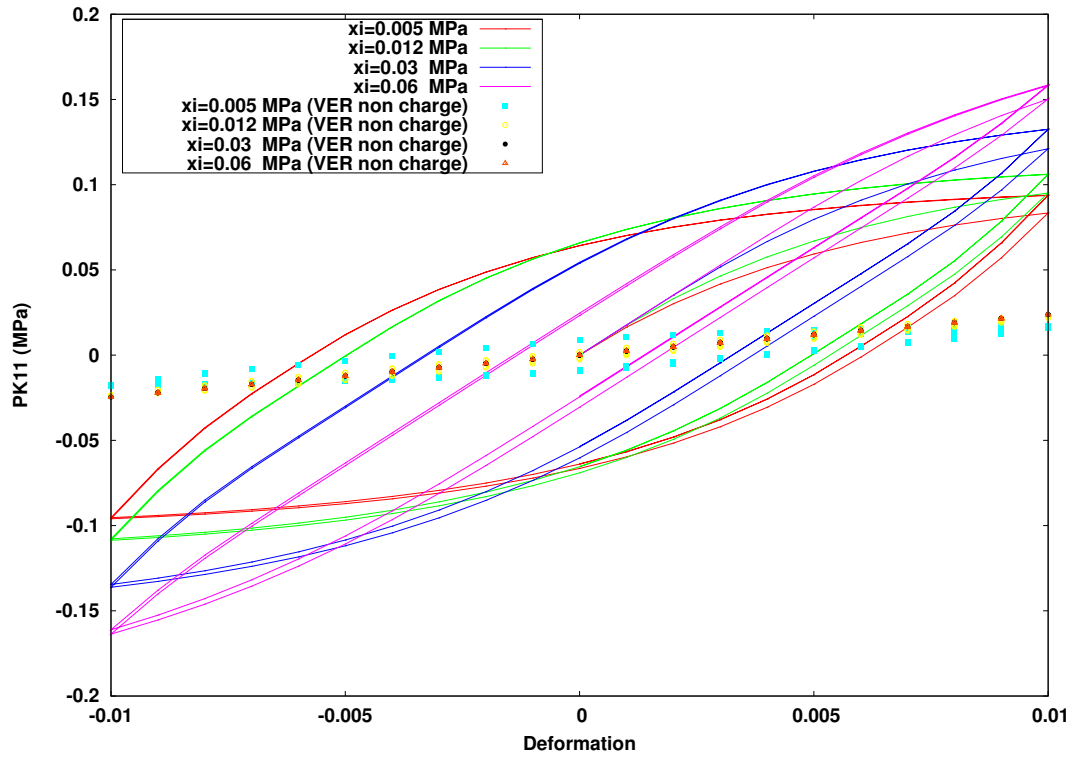
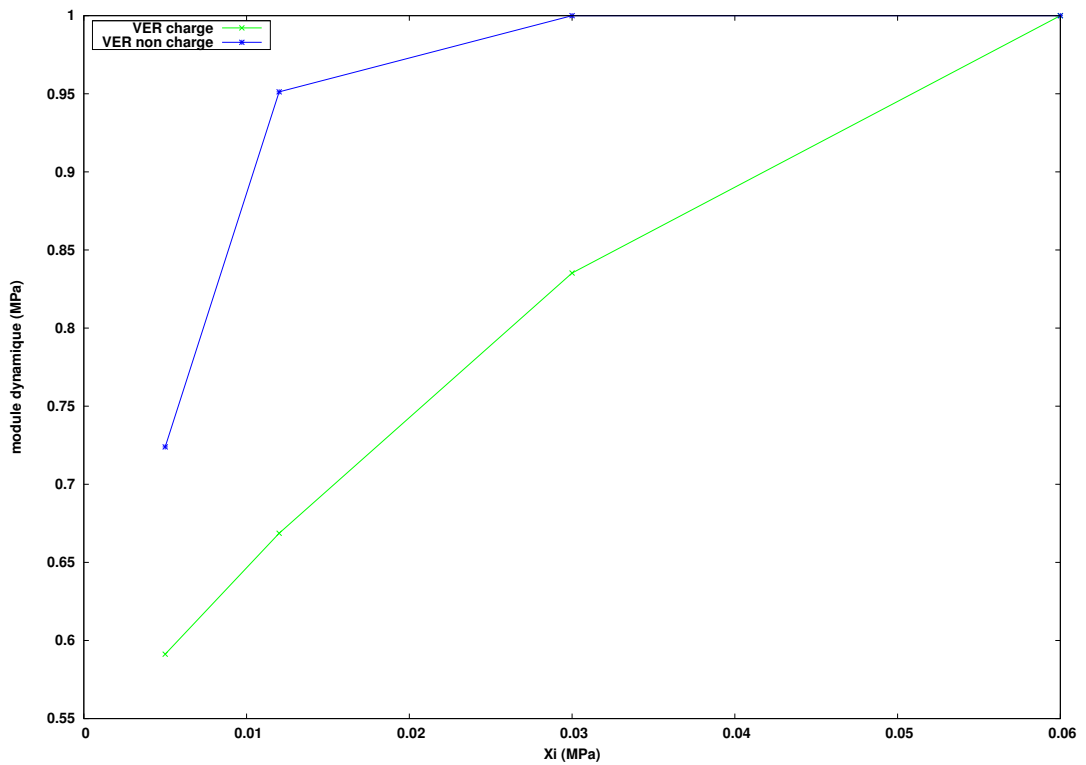


FIGURE IV.18 – Influence du paramètre : η



(a) réponse en traction



(b) influence sur le module dynamique normalisé

FIGURE IV.19 – Influence du paramètre : χ

IV.4.3 Analyse de l'influence de la morphologie

Dans ce paragraphe, nous considérons un test d'extension cyclique (toujours dans la même direction du plan), à vitesse constante (signal triangulaire) et sur différents tirages pour lesquelles on a fixé l'épaisseur à une valeur de 0.015 en essayant de conserver le taux de charge compris entre 62 et 68%. Les figures IV.20 présentent les VER correspondant aux différents tirages.

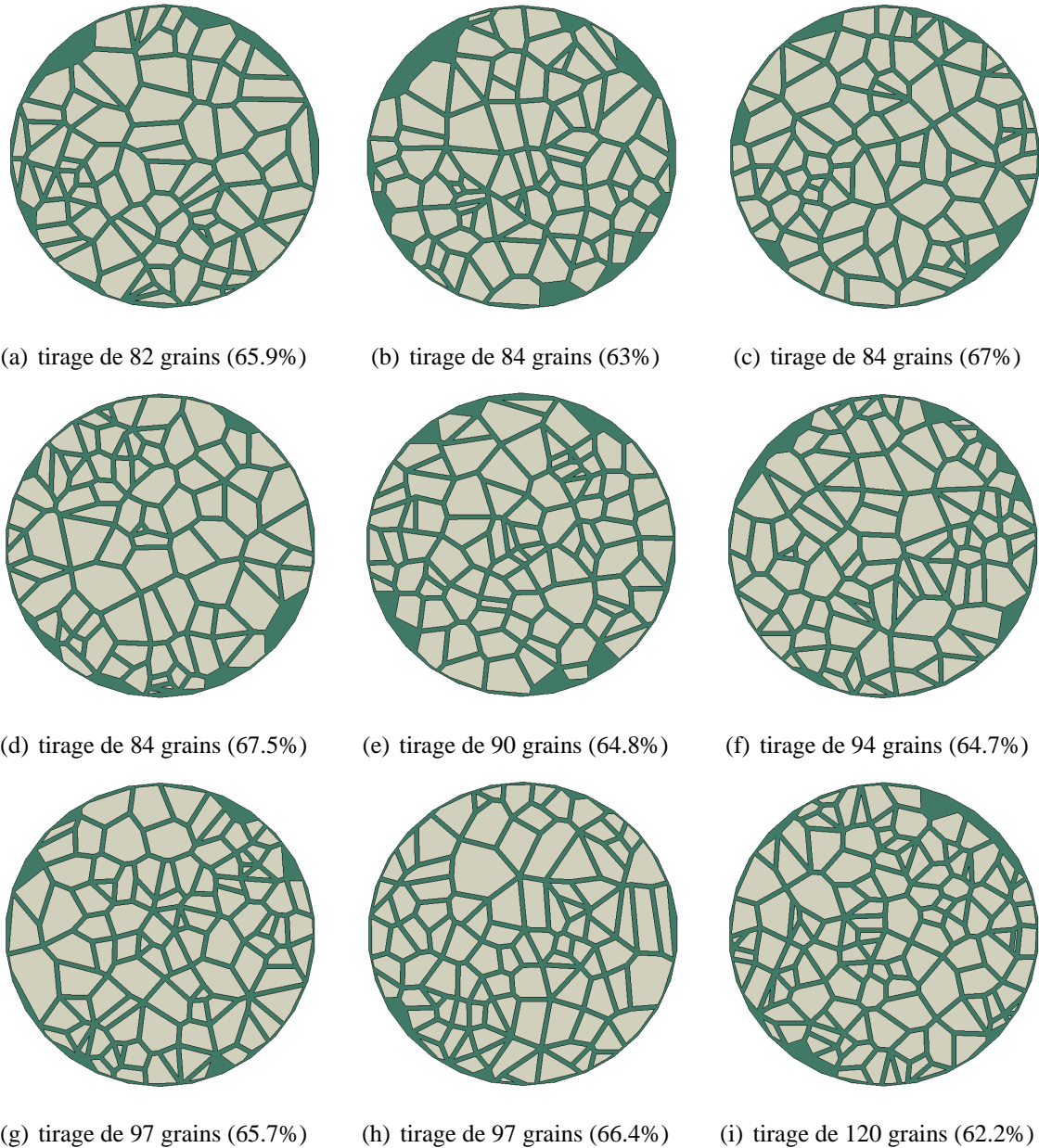


FIGURE IV.20 – Différents tirages à épaisseur fixe ($e_p=0.015$)

Les figures IV.21, IV.22, IV.23 et IV.24 présentent l'évolution du module dynamique en fonc-

tion des caractéristiques morphologiques simples à calculer à savoir : le taux de charge, le rayon moyen normalisé (rayon moyen des particules/épaisseur), l'écart type du rayon moyen, la surface spécifique moyenne et l'écart type de la surface spécifique. Sur les figures IV.21, IV.22, IV.23 et IV.24, chaque point désigne le couple nombre de grains et taux de charge (exemple sur la figure IV.21 : le couple (120,62.20) désigne un tirage de 120 grains avec un taux de charge de 62.20. On peut faire les constats suivants :

- le taux de charge semble directement contrôler la raideur dynamique, on remarque sur la figure IV.21 une corrélation linéaire du module en fonction du taux de charge. Il y a néanmoins deux tirages qui ne vérifient pas cette corrélation ;
- le rayon moyen normalisé ne semble pas être un paramètre pertinent pour décrire la variation du module dynamique, hormis le tirage à 120 grains, tous les autres tirages ont un rayon moyen normalisé qui varie peu ;
- l'écart type sur le rayon moyen a beaucoup plus d'influence, cependant nous ne pouvons pas dégager une tendance claire. En effet, si l'on considère les tirages qui ont le même taux de charge (couleurs identiques) on peut les regrouper par couple. Les deux tirages de 84 grains possèdent un écart important sur l'écart type de rayon moyen qui n'a pas d'influence sur le module dynamique. Les tirages à 97 et 82 grains qui ont un taux de charge aux alentours de 66% montrent qu'une diminution de l'écart type du rayon moyen engendre une diminution du module dynamique, ce qui est contredit par les tirages de 120 et 84 grains dont le taux de charge est au voisinage de 63%.
- la surface spécifique et son écart type agissent de la même manière sur le module dynamique, on ne peut dégager d'influence claire de ces paramètres.

L'analyse réalisée sur le module dynamique mériterait, d'une part, d'être élargie à plus de tirages de manière à voir si aucune tendance ne peut être dégagée en fonction du rayon moyen et de la surface spécifique, et, d'autre part, elle devrait aussi être réalisée pour une autre sollicitation (cisaillement par exemple) afin de confirmer ou d'infirmer l'influence du taux de charge. Nous pouvons également nous poser la question de la pertinence des indicateurs morphologiques très simples que nous avons utilisés : le rayon moyen normalisé et son écart type ainsi que la surface spécifique n'apportent en effet aucune information concernant l'orientation des polygones de Voronoï ou de leur facteur d'aspect. Enfin, la détermination d'un ou plusieurs paramètres morphologiques gouvernant l'évolution du module dynamique doit également être validée en observant l'évolution de la dissipation globale. Dans cette analyse, nous avons choisi de construire nos VER en fixant l'épaisseur, ce choix peut également être remis en question car il peut

paraître tout aussi naturel de fixer le rayon moyen normalisé. En conclusion, le taux de charge est le seul paramètre qui semble pertinent pour décrire l'évolution du module dynamique, parmi tous les paramètres qui ont été explorés.

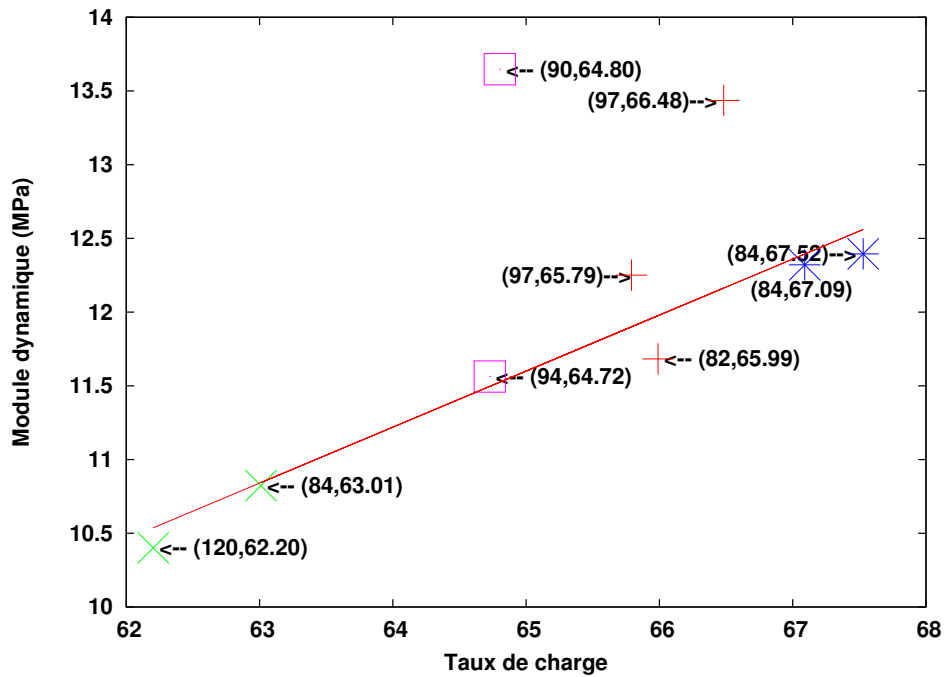


FIGURE IV.21 – Evolution du module dynamique en fonction du taux de charge

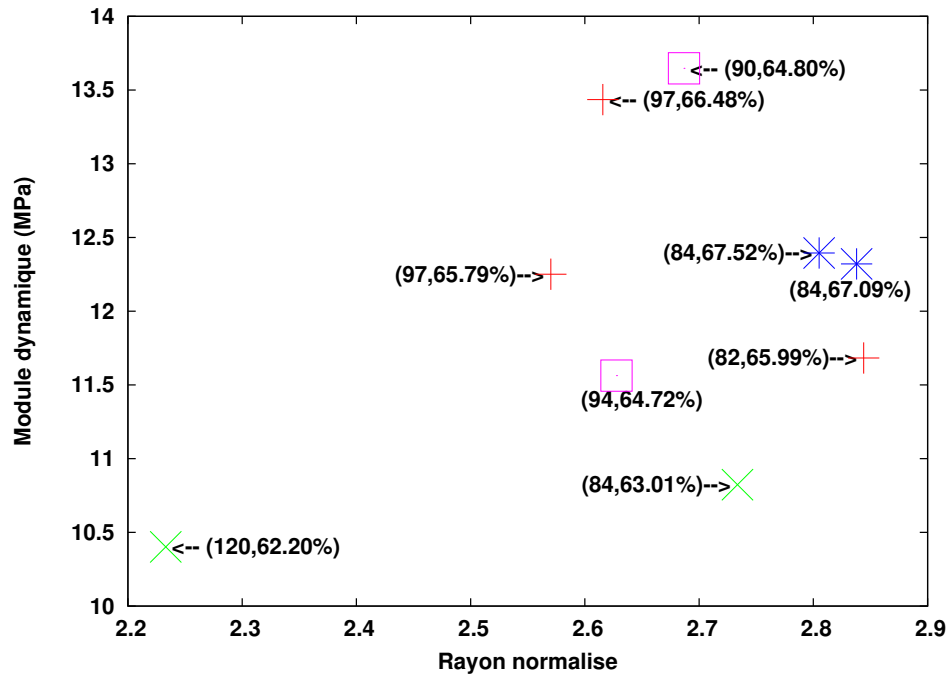


FIGURE IV.22 – Evolution du module dynamique en fonction du rayon moyen

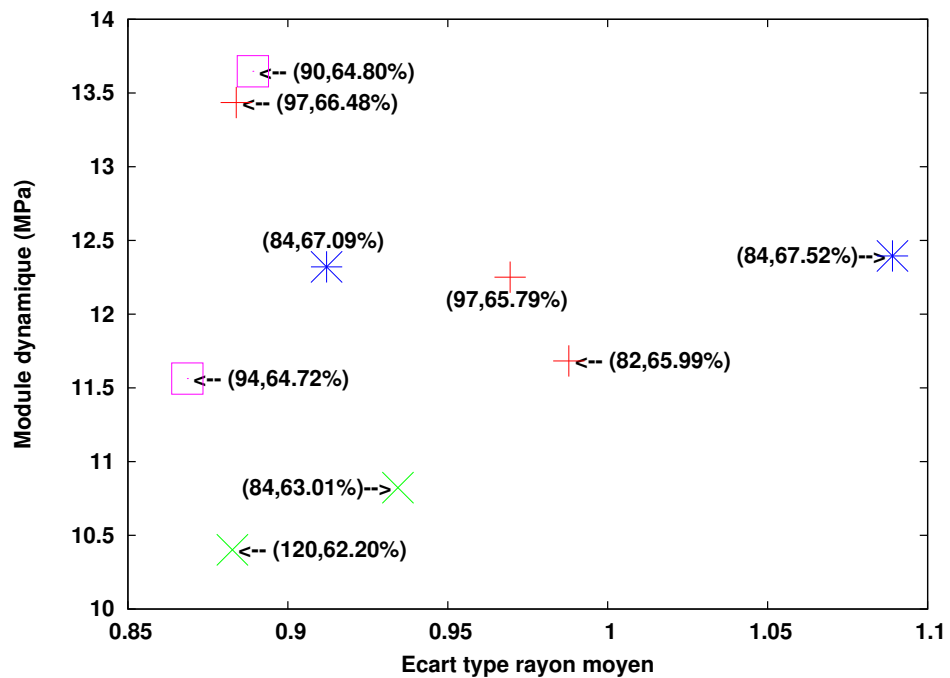


FIGURE IV.23 – Evolution du module dynamique en fonction de l'écart type sur le rayon

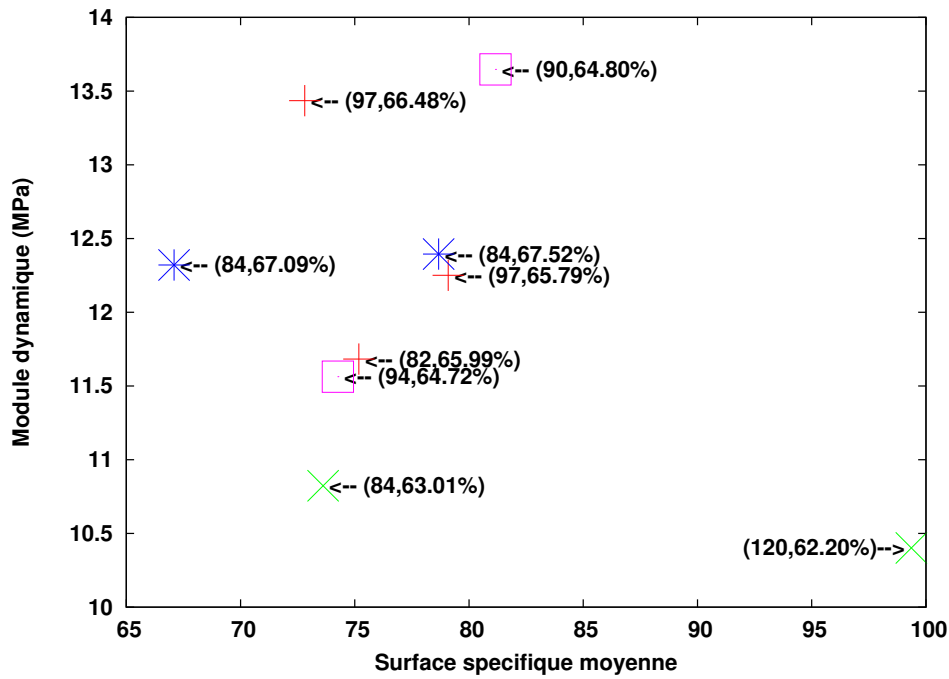


FIGURE IV.24 – Evolution du module dynamique en fonction de la surface spécifique moyenne

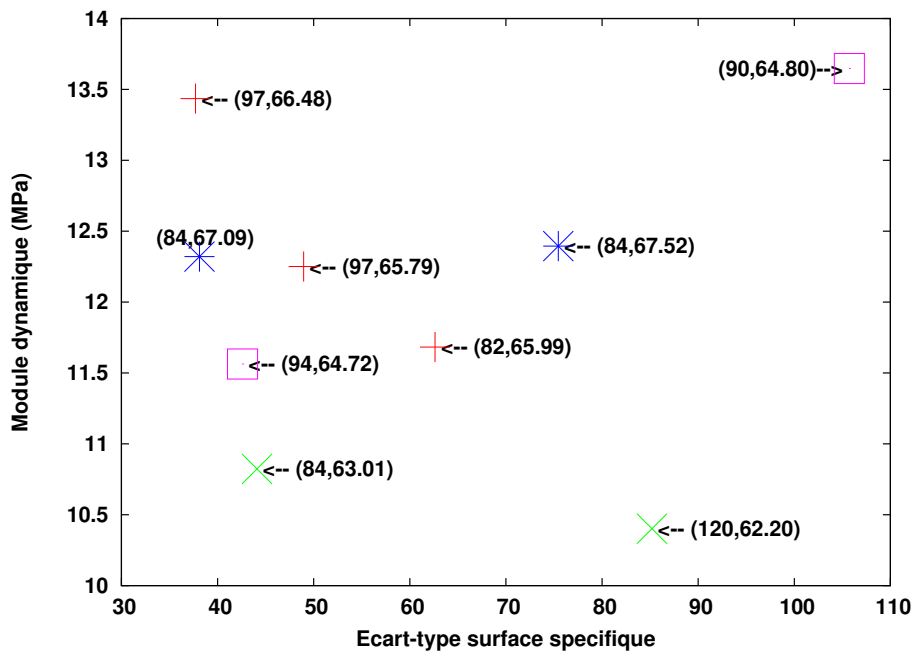


FIGURE IV.25 – Evolution du module dynamique en fonction de l'écart type la surface spécifique

IV.5 Bilan de la modélisation microscopique

Dans ce chapitre, nous avons proposé un modèle d'agglomérat constitué de particules de silices infiniment rigides et idéalisées sous la forme de polygones de Voronoï interconnectés par une fine couche d'élastomère supposée faiblement réticulé. Nous avons ainsi développé un plugin rattaché à ABAQUS-CAE qui nous permet de générer de manière aléatoire un modèle d'agglomérat. L'algorithme de construction du VER est paramétré par le nombre de grains, le taux de charge et/ou l'épaisseur de la couche d'élastomère. Enfin, cet algorithme nous permet de générer aussi bien des VER périodiques (avec particules sur le bord) que des VER adaptés aux conditions de localisation de type KUBC ou SUBC (sans particules sur le bord).

Dans une première partie, nous avons traité le cas élastique linéaire (en petites perturbations). Nous avons ainsi mené une campagne d'essais numériques sur différents VER à taux de charge fixe et épaisseur d'élastomère liée mais en faisant varier le nombre de grains. Nous avons pu comparer les différentes techniques de localisation (KUBC, SUBC et PBC) à partir des modules de cisaillement et compressibilité homogénéisés. On constate que à grand nombre de grains les trois techniques semblent converger vers une même limite. De plus, les cas SUBC et PBC convergent plus rapidement vers cette limite que le cas KUBC. Il semble donc que pour ces deux techniques on puisse considérer des VER avec peu de grains comparativement au cas KUBC. Enfin, le cas PBC semble être le moins sensible au caractère aléatoire des tirages. L'analyse de l'écart à l'isotropie dans le cas PBC, nous montre que les VER à partir d'une vingtaine de grains présentent une réponse quasi-isotrope (moins de 6% d'écart relatif). Ces calculs en petites déformations nous ont confortés dans l'idée de mener des analyses en grandes déformations en utilisant une technique de localisation de type SUBC au vu, d'une part, de la forte localisation des déformations observées au cours de ces calculs et, d'autre part, de la convergence des caractéristiques homogénéisées avec SUBC.

Dans une deuxième partie, nous avons considéré le comportement de l'élastomère lié comme étant visco-plastique en grandes déformations. Nous avons donc implémenté un modèle de comportement spécifique dans ABAQUS afin de prendre en compte le caractère visco-plastique. Les premiers calculs sur un VER de 80 grains, nous ont permis d'analyser l'influence des coefficients de la loi de comportement de l'élastomère et de comparer cette dernière à un VER homogène constitué uniquement d'élastomère lié. Tout d'abord, on constate que le confinement, dans le cas d'un VER avec grains, induit une rigidité et une dissipation importante à faible déformation moyenne (comparativement au VER homogène). Ceci nous conforte dans l'idée que

le confinement au sein de l'agrégat peut être une explication de son supposé caractère dissipatif. Cette étude paramétrique nous montre notamment que le module de compressibilité de l'élastomère lié a une influence plus forte sur la rigidité effective dans le cas d'un VER chargé que dans le cas d'un VER homogène. Il est donc clair que le confinement et le caractère faiblement compressible jouent un rôle prépondérant sur le comportement de l'agrégat idéalisé. L'analyse des paramètres morphologiques est beaucoup plus complexe et nous n'avons pas pu dégager un ou plusieurs paramètres influant clairement sur le comportement effectif (hormis le taux de charge).

Pour aller plus loin, il faudrait mener une campagne numérique plus importante et introduire d'autres indicateurs morphologiques pour espérer dégager un modèle d'agrégat microphysiquement motivé. On aurait pu notamment introduire un facteur d'aspect moyen des grains et/ou un indicateur d'orientation des grains afin d'enrichir l'analyse actuelle. Une autre piste, pourrait consister à enrichir le modèle d'agrégat en introduisant de nouvelles phases qui sont constatées expérimentalement. Ainsi, on pourrait introduire une interphase entourant l'agglomérat, elle-même étant entourée d'une zone de matrice (non dissipative), et des portions d'élastomère entre les grains et l'élastomère lié (nommés gomme occluse). La figure IV.26 en est un exemple. Enfin, tous les calculs de ce chapitre ont été menés en déformations planes, on peut donc se poser la question de la représentativité de ces résultats par rapport à des calculs en 3D. Il faudrait donc développer un algorithme de génération de VER tridimensionnel.

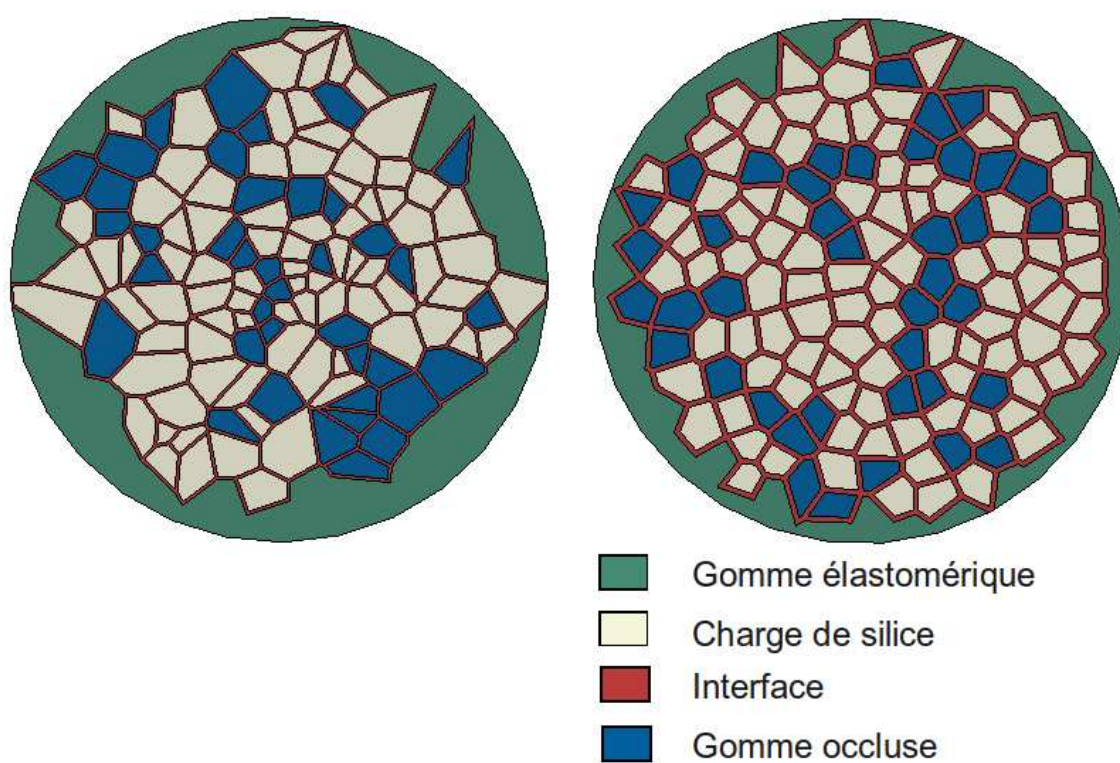


FIGURE IV.26 – Un modèle d'agrégat



Conclusion générale

Ce travail concerne l'étude du comportement d'un élastomère silicone chargé de silice en prenant en compte l'effet de la microstructure. Plus précisément, ce travail exploratoire a tenté d'identifier un certain nombre de paramètres et de mécanismes microscopiques pouvant rendre compte du comportement effectif d'un tel élastomère chargé, par le biais de modélisations réalisées sur un volume élémentaire représentatif. L'idée était d'essayer d'expliquer notamment pourquoi l'introduction de charge augmentait le caractère dissipatif du matériau.

Les élastomères chargés sont caractérisés par la complexité de leur microstructure. Ils présentent plusieurs échelles d'hétérogénéités, allant des particules élémentaires aux réseaux de charges en passant par les agrégats et les agglomérats. La complexité de la microstructure et les interactions entre les différentes phases influent fortement sur le comportement macroscopique, comme le montrent les essais expérimentaux. Diverses approches sont utilisées pour modéliser le comportement de ces matériaux. La plupart, s'appuient sur des modèles rhéologiques mais si on veut intégrer dans les modèles les effets de la microstructure, les approches basées sur des méthodes d'homogénéisation constituent un outil d'investigation pertinent. La complexité des lois de comportements (grandes déformations, visco-hyperélasticité, plasticité, endommagement) rend difficile l'utilisation des méthodes d'homogénéisation classiquement utilisées pour obtenir des bornes et des estimations. Nous avons donc choisi une approche basée sur des techniques d'homogénéisation numériques, s'appuyant sur la résolution de problèmes posés sur un VER..

Nous nous sommes focalisés sur deux échelles d'hétérogénéités :

- une échelle où les agglomérats de charges peuvent être considérés homogènes, permettant d'étudier le comportement d'un élastomère chargé d'agglomérats (échelle mésoscopique),
- une échelle à laquelle on étudie le comportement d'un agglomérat, considéré comme un ensemble de particules rigides reliées par une fine couche d'élastomère (échelle microscopique)

A l'échelle mésoscopique, le VER est constitué d'un agglomérat de charge noyé dans une matrice. L'agglomérat a une forme sphérique régulière de comportement viscoélastique et une matrice hyperélastique de forme hexagonale. Une campagne de calculs numériques a été menée sur ce VER en appliquant des conditions de type « déformation homogène au contour ». Les résultats montrent que la méthode de Voigt peut être utilisée jusqu'à un contraste des phases inférieur à 10 (rapport de la plus grande raideur sur la plus petite). On notera que dans les modèles rhéologiques constitués de branches en parallèle où chaque branche tente de rendre compte de l'effet d'une phase, l'hypothèse liée à la méthode de Voigt (déformation uniforme dans le VER) est sous-jacente. Des simulations numériques montrent que la présence de zones de confinement de la gomme agit sur les caractéristiques effectives. Cet effet est du essentiellement à la contrainte d'incompressibilité. A la fin de ce premier volet d'étude, nous avons tenté de traiter le cas d'une interface décohésive entre l'agglomérat et la matrice pour son influence sur la dissipation effective. La décohésion résiduelle observée expérimentalement est retrouvée numériquement. Numériquement, elle est nettement plus marquée pour un chargement en traction que pour un chargement en cisaillement. En traction, la décohésion entraîne un isolement de l'agglomérat, seule source de dissipation, et la réponse globale devient hyperélastique. Il est donc difficile d'envisager que la dissipation puisse trouver son origine dans les phénomènes de décohésion.

La seconde partie de notre travail avait l'objectif d'explorer les phénomènes micro-structuraux qui peuvent avoir lieu au sein de l'agglomérat de charges. Nous avons proposé un modèle d'agglomérat constitué de particules de silice infiniment rigides et idéalisées sous la forme de polygones de Voronoi interconnectés par une fine couche d'élastomère supposée faiblement réticulé. Ce modèle d'agglomérat est généré d'une façon aléatoire, avec comme paramètres de contrôle le nombre de grains, le taux de charge et/ou l'épaisseur de la couche d'élastomère. Les VER générés peuvent être périodiques ou non, permettant d'utiliser différents types de conditions limites aux bords : homogénéisation périodique (PBC) ou conditions de contraintes ou déformations homogènes sur le bord (respectivement SUBC et KUBC). La génération des microstructures et la mise en données des différentes méthodes d'homogénéisation ont été au-

tomatisés via la création d'interfaces conviviales (plugins) intégrées dans le menu de l'interface CAE d'Abaqus. Ces développements permettent de mener simplement un grand nombre de simulations.

Notre étude a débuté par une campagne de simulations numériques en petites déformations pour analyser l'évolution des caractéristiques élastiques homogénéisées en fonction du nombre de grains et de la méthode de localisation, à différents taux de charges et différentes épaisseurs de gomme liée. On constate qu'à grand nombre de grains, les trois techniques semblent converger vers une même limite. De plus, les approches SUBC et PBC convergent plus rapidement vers cette limite que le cas KUBC. Il semble donc que pour ces deux premières approches, on puisse considérer des VER avec peu de grains comparativement au cas KUBC. Enfin, le cas PBC semble être le moins sensible au caractère aléatoire des tirages. L'analyse de l'écart à l'isotropie dans le cas PBC, nous montre que les VER à partir d'une vingtaine de grains présentent une réponse quasi-isotrope (moins de 6% d'écart relatif). Ces calculs en petites déformations nous ont confortés dans l'idée de mener des analyses en grandes déformations en utilisant une technique de localisation de type SUBC.

Pour l'analyse en grandes déformations, nous avons considéré un comportement plus réaliste pour l'élastomère lié. En effet, des observations expérimentales montrent que ce dernier se distingue de la matrice par son caractère visco-plastique. Nous avons implémenté un modèle hyperviscoplatique dans Abaqus via l'utilisation d'une SUBROUTINE UMAT. Des calculs sur un VER de 80 grains avec des conditions de localisation de type SUBC nous ont permis d'étudier l'influence des paramètres matériaux de cette loi de comportement sur la réponse macroscopique et de la comparer avec la réponse de l'élastomère seul. Nous constatons que le confinement induit par la présence de grains conduit à une rigidité et une dissipation importante à faible déformation moyenne (comparativement à l'élastomère seul). Nous avons tenté de caractériser l'influence de certains paramètres morphologiques (rayons moyens des grains et leur écart type, surfaces spécifiques moyennes et son écart type, taux de charge). A part pour le taux de charge, nous n'avons pas pu dégager de paramètres caractéristiques de la microstructure gouvernant clairement la rigidité effective.

Ce travail a permis de montrer l'effet combiné du confinement et de la faible compressibilité du matériau sur le caractère dissipatif du comportement effectif. Il reste à confirmer cette tendance avec des modèles d'agrégats tridimensionnels. A long terme, l'identification des mé-

canismes microscopiques et la caractérisation de microstructure pertinentes devront mener à des volumes élémentaires suffisamment représentatifs pour être intégrés dans une modélisation multi-échelles (méthode des éléments finis au carré...). La définition du VER devra s'appuyer sur une analyse fine de la microstructure, via des outils d'analyse morphologique par exemple, et devra tenir compte des différentes échelles et populations d'hétérogénéités.



Bibliographie

- [1] F. Andrieux, K. Saanouni, and F. Sidoroff. Sur les solides hyperélastiques à compressibilité induite par l'endommagement. *C. R. Acad. Sci*, (324) :281–288, 1997.
- [2] A. Ansarifar, A. Azhar, N. Ibrahim, S. F Shiah, and J.M.D. Lawton. The use of a silanised silica filler of reinforced and crosslink natural rubber. *International journal of adhesion & adhesives*, (25) :77–86, 2005.
- [3] J. Aurélie. *Etude d'un élastomère chargé de la nanostructure au macro-comportement*. PhD thesis, Ecole nationale supérieure des Mines de Paris, 2009.
- [4] A. Bennani. *Elaboration, Comportement et durée de vie en fatigue du caoutchouc naturel renforcé de silice*. PhD thesis, Centre des matériaux P.M Fourt de l'école des Mines de Paris, 2009.
- [5] O. Benoît. *Modélisation micromécanique du comportement d'élastomères chargés*. PhD thesis, Université de Bretagne Sud, 2007.
- [6] Jörgen S. Bergström. *Large strain time-dependent behavior of elastomeric materials*. PhD thesis, Massachusetts institute of technology, 1999.
- [7] J.S. Bergström and M. C. Boyce. Constitutive modeling of the large strain time-dependent behavior of elastomers. *J. Mech. Phys. Solids*, (46) :931–954, 1998.

-
- [8] J.S. Bergström and M. C. Boyce. Constitutive modeling of time-dependent and cyclic loading of elastomers and application to soft biological tissues. *Mechanics of materials*, (33) :523–530, 2001.
- [9] M. Bornert, T. Bretheau, and P. Gilormini and. *J. C. Michel, H. Moulinec, P. Suquet, Composites à microstructure périodique, Homogénéisation en mécanique des matériaux*. Hermes edition, 2001, Paris.
- [10] M. Bornert, T. Bretheau, and P. Gilormini. *Homogénéisation en mécanique des matériaux (volume1, volume2)*. Hermes Science, 2001, Paris.
- [11] V. Bouchart, M. Brieu, D. Kondo, and M. Naÿt Abdelaziz. Implementation and numerical verification of a non-linear homogenization method applied to hyperelastic composites. *Computational Materials Science*, (43) :670–680, 2008.
- [12] A. Boukamel. *Modélisations mécaniques et numériques des matériaux et structures en élastomères*. PhD thesis, Université de la méditerranée Aix-Marseille II, HDR,2006.
- [13] A. Boukamel, S. Méo, O. Débordes, and M. Jaeger. A thermo-viscoelastic model for elastomeric behaviour and its numerical application. *Archive of Applied Mechanics*, (76) :785–801, 2001.
- [14] M. Burn, O. Lopez-Pamies, and P. Ponte Castaneda. Homogenization estimates for fiber-reinforced elastomers with periodic microstructures. *International journal of solids and structures*, 44 :5953–5979, 2007.
- [15] Jes Christoffersen. Bonded granulates. *J. Mech. Phys. Solids*, 31(1) :55–83, 1983.
- [16] S. Courtois. *Une approche physiquement motivée pour l'endommagement des élastomères*. PhD thesis, Université de la méditerranée Aix-Marseille II, 2003.
- [17] O. Débordes. *Homogénéisation périodique*. Unit, 2001.
- [18] S. Govindjee et J. C. Simo. A micro-mechanically based continuum damage model of carbon black-filled rubbers incorporating mullins'effect. *J. Mech. Phys. Solids*, 39 :87–112, 1991.
- [19] Frédéric Feyel. Multiscale fe2 elastoviscoplastic analysis of composite structures. *Computational Materials Science*, (16) :344–354, 1999.

-
- [20] J. Fish and R. Fan. Mathematical homogenization of nonperiodic heterogeneous media subjected to large deformation transient loading. *International Journal of Numerical Methods in Engineering*, pages 1044–1064, 2008.
- [21] J. Fröhlich, W. Niedermeir, and H. D. Luginsland. The effect of filler-filler and filler-elastomer interaction on rubber reinforcement. *Composites Part A : applied science and manufacturing*, 36 :449–460, 2005.
- [22] Julie Grandcoin. *Contribution à la modélisation du comportement dissipatif des élastomères chargés : d'une modélisation micro-physiquement motivée vers la caractérisation de la fatigue*. PhD thesis, Université d'Aix-Marseille II, 2008.
- [23] Boris Guiot, Carole Nadot-Martin, and André Dragon. A multiscale (visco)-hyperelastic modelling for particulate composites. *Mechanics Research Communications*, 33 :441–449, 2006.
- [24] Boris Guiot, Carole Nadot-Martin, and André Dragon. Towards a non-linear micromechanics-based analysis for particulate composites. *Composites Science and Technology*, 66 :2726–2735, 2006.
- [25] Gert Heinrich, Manfred Klüppel, and Thomas A. Vilgis. Reinforcement of elastomers. *Solid state and Materials science*, (6) :195–203, 2002.
- [26] Nguyen Duc Hoang. *Etude des propriétés électriques des élastomères silicones utilisés pour l'isolation électrique*. PhD thesis, Université Joseph Fourier Grenoble 1, 2005.
- [27] Shinzo Kohjiya and Atsushi Kato Yuko Ikeda. Visualization of nanostructure of soft matter by 3d-tem : nanoparticules in a natural rubber matrix. *Progress in polymer science*, (33) :979–997, 2008.
- [28] D.J Kohls and G.Beaucage. Rational design of reinforced rubber. *Current opinion in solide state and materials science*, (6) :183–194, 2002.
- [29] Noël Lahellec. *Homogénéisation et étude expérimentale de composites hyperélastiques et visco-hyperélastiques*. PhD thesis, Université d'Aix-Marseille II, 2001.
- [30] Noël Lahellec and Pierre Suquet. Nonlinear composites : a linearization procedure, exact to second-order in contrast and for which the strain-energy and affine formulations coincide. *Comptes Rendus Mécanique*, (332) :693–700, 2004.

-
- [31] Jean L. Leblanc. Rubber-filler interactions and rheological properties in filled compounds. *Progress in polymer science*, pages 627–687, 2001.
- [32] S. Lejeunes. *Modélisation des structures lamifiées élastomère-métal à l'aide d'une méthode de réduction de modèles*. PhD thesis, Université de la méditerranée Aix-Marseille II, 2006.
- [33] S. Lejeunes, A. Boukamel, and S. Méo. Finite element implementation of nearly-incompressible rheological models based on multiplicative decompositions. *Computers and structures*, 89 :411–421, 2011.
- [34] A. Lion. On the large deformation behaviour of reinforced rubber at different temperatures. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 45, 1997.
- [35] O. Lopez-Pamies and P. Ponte Castaneda. Second-order estimates for the macroscopic response and loss of ellipticity in porous rubbers at large deformations. *Journal of elasticity*, (76) :247–287, 2004.
- [36] O. Lopez-Pamies and P. Ponte Castaneda. On the overall behavior, microstructure evolution and macroscopic stability in reinforced rubbers at large deformations : I- theory. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 54 :807–830, 2006.
- [37] J. M. Martinez. *Modélisation et caractérisation du comportement hyper-visco-plastique d'un élastomère sous sollicitations multi-harmoniques et à différentes températures*. PhD thesis, Université de la méditerranée Aix-Marseille II, 2005.
- [38] Johan G. Meier and Manfred Klüppel. Carbon black networking in elastomers monitored by dynamic mechanical and dielectric spectroscopy. *Macromolecular materials and engineering*, (293) :12–38, 2008.
- [39] S. Lejeunes A. Boukamel S. Méo. A direct numerical integration scheme for visco-hyperelastic models using radial return relaxation. *European journal of computational mechanics*, (19) :129–140, 2010.
- [40] J.C. Michel, O. Lopez-Pamies, P. Ponte Castaneda, and N. Triantafyllidis. Microscopic and macroscopic instabilities in finitely strained fiber-reinforced elastomers. *J. Mech. Phys. Solids*, (58) :1776–1803, 2010.
- [41] J.C. Michel and P. Suquet. Nonuniform transformation field analysis. *International journal of solids and structures*, (40) :6937–6955, 2003.

-
- [42] C. Miehe. Discontinuous and continuous damage evolution in ogden-type large-strain elastic materials. *Europran Journal of Mechanics A/Solids*, 14 :697–720, 1995.
- [43] C. Miehe. Multilevel fem for heterogeneous structures : from homogenization to multigrid solvers. *Lecture Notes in applied and Computational Mechanics*, pages 361–397, 2006.
- [44] C. Miehe, J. Schröder, and C. G. Bayreuther. On the homogenization analysis of composite materials based on discretized fluctuations on the microstructure. *Acta Mechanica*, pages 1–16, 2002.
- [45] C. Moreau. *Etude expérimentale et numérique de l'hyperélasticité avec prise en compte de la compressibilité. -Identification paramétrique inverse. -Application aux élastomères compacts : polychloroprène, mélanges à base de caoutchouc naturel.* Thèse, Université de Bretagne Sud, 2000.
- [46] Carole Nadot-Martin, Hervé Trumel, and André Dragon. Morphology-based homogenization for viscoelastic particulate composites : Part i : Viscoelasticity sole. *Europran Journal of Mechanics A/Solids*, 22 :89–106, 2002.
- [47] B. Omnès, S. Thuillier, P. Pilvin, Y. Grohens, and S. Gillet. Effective properties of carbon black filled natural rubber : Experiments and modeling. *Composites*, (39) :1141–1149, 2008.
- [48] Vikranth Racherla, O. Lopez-Pamies, and P. Ponte Castaneda. Macroscopic response and stability in lamellar nanostructured elastomers with "oriented" and "unoriented" polydomain microstructures. *Mechanics of materials*, (42) :451–468, 2010.
- [49] J. Ramier. *Comportement mécanique d'élastomères chargés, influence de l'adhésion charge - polymère, influence de la morphologie.* PhD thesis, L'institut national des sciences appliquées de Lyon, 2004.
- [50] A. Robisson. *Comportement d'un élastomère SBR chargé de silice et d'un PU cellulaire : prévision de la durée de vie en fatigue.* PhD thesis, Ecole des mines de Paris, 2000.
- [51] S. Roussette, J.C. Michel, and P. Suquet. Nonuniform transformation field analysis of elastic-viscoplastic composites. *Composites Science and Technology*, (69) :22–27, 2009.
- [52] Céline Roux. *Caractérisation in-situ des mécanismes de dispersion de la silice dans une matrice élastomère soumise à un cisaillement.* PhD thesis, Ecole nationale supérieure des Mines de Paris, 2008.

-
- [53] J. C. Simo. On a fully three dimensional finite strain viscoelastic damage model : formulation and computational aspects. *Comput. Methods Appl. Mech. Engrg*, (60) :153–163, 1987.
- [54] F. Sosson. *Evolution des propriétés viscoélastiques d'élastomères chargés soumis à des sollicitations mécaniques dynamiques*. PhD thesis, Université du sud Toulon Var, 2007.
- [55] I. Temizer and P. Wriggers. On the computation of the macroscopic tangent for multiscale volumetric homogenization problems. *Computers Methods in Applied Mechanics and Engineering*, pages 495–510, 2008.
- [56] J. Yvonnet and Q.-C. He. The reduced model multiscale method (r3m) for the non-linear homogenization of hyperelastic media at finite strains. *Journal of Computational Physics*, (223) :341–368, 2007.



Table des figures

I.1	Monomère de base d'une chaîne macromoléculaire	7
I.2	Variation du module d'élasticité d'un élastomère vulcanisé en fonction de la température [5]	8
I.3	Différentes structures des charges, d'après [31]	10
I.4	Influence de la surface spécifique, cas du noir de carbone [21]	12
I.5	Etat chimique de la surface du silice [4]	13
I.6	Structure ramifiée d'agrégat de noir de carbone [28]	14
I.7	Différentes échelles de taille des charges	15
I.8	Gomme occluse, gomme liée	15
I.9	Influence de la couche mince entre les particules de charges [25]	16
I.10	Echantillons d'élastomère chargé de silices à 60% [2]	17
I.11	Pelotes statistiques de chaînes [37]	19
I.12	Réseau de chaînes	19
I.13	Vulcanisation au soufre : réseau tridimensionnel des chaînes dans l'élastomère [54]	20
I.14	Contribution de l'entropie et de l'énergie interne à la force de traction en fonction de l'élongation [12]	21
I.15	Effet Mullins	21

I.16	Interprétation microscopique de l'effet Mullins [22]	22
I.17	Mécanismes d'endommagement par fatigue dans un matériau chargé [22]	23
I.18	Forme idéalisée de la courbe du module élastique [21]	24
I.19	Effet du taux de charge sur l'effet de Payen [22]	24
I.20	Influence de la fréquence de sollicitation [12]	25
I.21	Raideur globale [37]	25
I.22	Dissipation globale [37]	25
I.23	Influence de la température [37]	26
I.24	Raideur globale [37]	26
I.25	Dissipation globale [37]	26
II.1	Configuration intermédiaire	33
II.2	Modèle de POYNTING-THOMSON	34
II.3	Modèle de ZENER	35
II.4	Représentation d'une chaîne de polymère [32]	36
II.5	Modèle de huit chaînes de ARRUDA et BOYCE (1993)	37
II.6	Modélisation rhéologique du VER [12]	39
II.7	Modèle statistique hyper-élasto-visco-plastique discret [39]	40
II.8	Modèles statistiques hyper-élasto-visco-plastique [12],[13]	40
II.9	Facteur de forme pour deux structures de charges [54]	43
II.10	Description d'une cellule de base	46
II.11	Grains interconnectés par une couche de matériau selon Christofferson (1983)B. Guiot et al.[24] [23] [46]	51
II.12	Modèles rhéologiques : groupement des branches en parallèle	52
III.1	Différents motifs d'un silicone [26]	55
III.2	Eprouvette vierge observée sans sollicitation (MEB) [16]	56
III.3	Eprouvette endommagée à 100.000 cycles observée sans sollicitation (MEB) [16]	57
III.4	Mécanismes de décohésion (MEB) [16]	58
III.5	VER correspondant à l'analyse mésoscopique : 2D	59
III.6	VER correspondant à l'analyse mésoscopique : 3D	59
III.7	Modèle de Zener	60
III.8	Chargement quasi-statique	61
III.9	Influence du contraste et du taux de charge	62

III.10	Ecart entre les contraintes Π_{12} de Voigt et KUBC	62
III.11	NR chargé de noir de carbone : traction[5]	63
III.12	Evolution de la contrainte en fonction du taux de charge pour $\lambda = 2$ (d'après les résultats de [5])	63
III.13	Maillage en 3D	64
III.14	Maillage en 2D	64
III.15	Traction 2D-3D	64
III.16	Cisaillement 2D-3D	64
III.17	Cisaillement XY, 2D	64
III.18	Cisaillement XY, 3D	64
III.19	Traction selon X, 2D	65
III.20	Traction selon X, 3D	65
III.21	Traction-2D	65
III.22	Cisaillement-2D	65
III.23	Traction 3D	66
III.24	Cisaillement 3D	66
III.25	coupe transversale du VER : comportement local en traction (déformation log- arithmique principale maxi)	66
III.26	coupe transversale du VER :comportement local en cisaillement (déformation logarithmique principale maxi)	67
III.27	Traction	67
III.28	Cisaillement	67
III.29	raideur : traction	67
III.30	raideur : cisaillement	67
III.31	Différentes surfaces spécifiques	68
III.32	Traction	69
III.33	Cisaillement	69
III.34	raideur : traction	69
III.35	raideur : cisaillement	69
III.36	Energie dissipée : traction	69
III.37	Energie dissipée : cisaillement	69
III.38	cas (a)	70
III.39	cas (b)	70
III.40	cas (c)	70

III.41 cas (d)	70
III.42 Traction	71
III.43 Cisaillement	71
III.44 Traction	72
III.45 Cisaillement	72
III.46 Traction	72
III.47 Cisaillement	72
IV.1 Dispersion de la silice dans un silicone (TEM) (le trait dans chaque image correspond à une longueur de $1\mu m$) [26]	75
IV.2 Agglomérat de charge de silice (MEB) [52]	76
IV.3 Génération automatique de la morphologie	77
IV.4 Mosaique de voronoï périodique 2D	78
IV.5 Modèle d'un agglomérat de charges à bord déformable	78
IV.6 Variation du rayon moyen des grains	79
IV.7 Variation d'épaisseur de la couche d'élastomère	79
IV.8 Ecart type sur le rayon moyen	80
IV.9 Taux de charge normalisé en fonction du rayon moyen normalisé	80
IV.10 Modèle viscoplastique [39] [33]	81
IV.11 Module de cisaillement	84
IV.12 Module de compressibilité	84
IV.13 Ecart par rapport à l'isotropie transverse	86
IV.14 Différentes tailles de maillage	87
IV.15 Variation de l'énergie de déformation en fonction de la finesse du maillage	88
IV.16 Influence du paramètre : G	90
IV.17 Influence du paramètre : D	91
IV.18 Influence du paramètre : η	92
IV.19 Influence du paramètre : χ	93
IV.20 Différents tirages à épaisseur fixe ($ep=0.015$)	94
IV.21 Evolution du module dynamique en fonction du taux de charge	96
IV.22 Evolution du module dynamique en fonction du rayon moyen	97
IV.23 Evolution du module dynamique en fonction de l'écart type sur le rayon	97
IV.24 Evolution du module dynamique en fonction de la surface spécifique moyenne	98
IV.25 Evolution du module dynamique en fonction de l'écart type la surface spécifique	98
IV.26 Un modèle d'agrégat	101

A.1 Transformation d'un élément matériel en grande déformation 122

B.1 Le module homogénéisation 133



Liste des tableaux

I.1	Composition du latex indépendamment du lieu de plantation [5]	18
III.1	paramètres matériaux	60
IV.1	paramètres matériaux du modèle d'agglomérat : cas de petites déformations . .	82
IV.2	paramètres matériaux du modèle d'agglomérat : cas de grandes déformations .	82
IV.3	Déformation principale maxi (même échelle d'isocouleurs)	85
B.1	Traitements des conditions limites pour les problèmes de localisation en grandes déformations	132
B.2	Points forts/point faible de l'interface	134
B.3	Tâches de chaque moteur	135

ANNEXE

A

Grandes déformations : rappel

A.1 Gradient de déformation

Supposons que le matériau occupe le domaine Ω^0 à l'état initial, non déformé. Après sollicitation le même matériau occupe le domaine Ω' . Le repère $R(O, X, Y, Z)$ est supposé lié à la

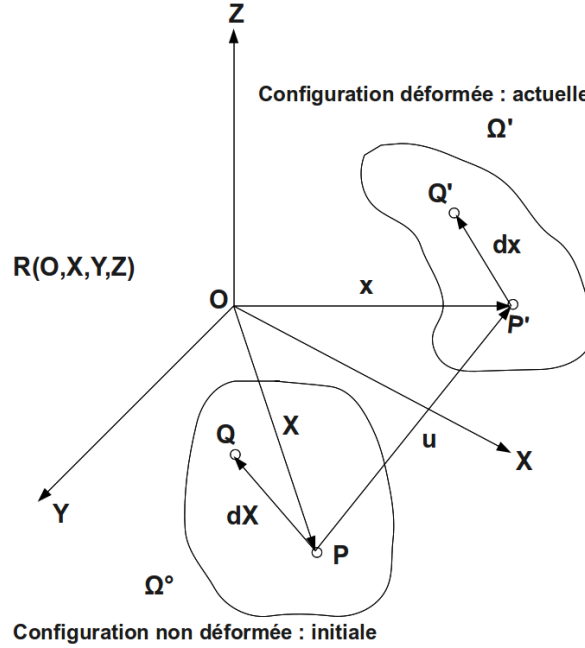


FIGURE A.1 – Transformation d'un élément matériel en grande déformation

configuration initiale, toutes les mesures sont évaluées dans ce repère.

$$\vec{x} = \vec{X} + \vec{u}(\vec{X}, t) \quad (\text{A.1})$$

Le vecteur infinitésimal $d\vec{X}$ dans la configuration initiale est transformé en $d\vec{x}$ dans la configuration déformée par le gradient de transformation $\bar{\bar{\mathbf{F}}}$.

$$d\vec{x} = \bar{\bar{\mathbf{F}}} \cdot d\vec{X} \quad (\text{A.2})$$

Cette expression peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\begin{pmatrix} dx \\ dy \\ dz \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} F_{xx} & F_{xy} & F_{xz} \\ F_{yx} & F_{yy} & F_{yz} \\ F_{zx} & F_{zy} & F_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} dX \\ dY \\ dZ \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{\partial x}{\partial X} & \frac{\partial x}{\partial Y} & \frac{\partial x}{\partial Z} \\ \frac{\partial y}{\partial X} & \frac{\partial y}{\partial Y} & \frac{\partial y}{\partial Z} \\ \frac{\partial z}{\partial X} & \frac{\partial z}{\partial Y} & \frac{\partial z}{\partial Z} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} dX \\ dY \\ dZ \end{pmatrix} \quad (\text{A.3})$$

Le gradient de transformation $\bar{\bar{\mathbf{F}}}$ fournit une description complète de la transformation. Le tenseur gradient de transformation $\bar{\bar{\mathbf{F}}}$ ne mesure pas la déformation, il n'est pas nul à l'état initial non déformé.

A.2 Mesure de la déformation

Soit un vecteur $d\vec{X}$ dans la configuration initiale, son image $d\vec{x}$ dans la configuration actuelle s'obtient par la relation suivante :

$$d\vec{x} = \bar{\bar{\mathbf{F}}}.d\vec{X}, \quad (\text{A.4})$$

L'écriture indicielle donne :

$$F_{ij} = \frac{\partial x_i}{\partial X_j} = \frac{\partial u_i}{\partial X_j} + \delta_{ij} \quad (\text{A.5})$$

L'application $\bar{\bar{\mathbf{F}}}$ est inversible et conserve l'orientation :

$$J = \det(\bar{\bar{\mathbf{F}}}) > 0. \quad (\text{A.6})$$

Localement, le transport d'un élément de volume dV dans la configuration initiale à son image dv dans la configuration actuelle s'écrit :

$$dv = JdV \quad (\text{A.7})$$

Le transport d'un élément de surface $\vec{N}dS$ dans la configuration initiale est $\vec{n}ds$ qui s'écrit :

$$\vec{n}ds = J\bar{\bar{\mathbf{F}}}^{-T}.\vec{N}dS = (\text{Cof}\bar{\bar{\mathbf{F}}}).\vec{N}dS \quad (\text{A.8})$$

– Description lagrangienne des déformations

Soit $d\vec{X}$ et $d\vec{Y}$ deux vecteurs de la configuration initiale qui deviennent $d\vec{x}$ et $d\vec{y}$ dans la configuration actuelle. Le produit scalaire de ces deux vecteurs s'écrit :

$$d\vec{x}.d\vec{y} = (\bar{\bar{\mathbf{F}}}.d\vec{X}).(\bar{\bar{\mathbf{F}}}.d\vec{Y}) = d\vec{X}.\bar{\bar{\mathbf{F}}}^T.\bar{\bar{\mathbf{F}}}.d\vec{Y} \quad (\text{A.9})$$

On introduit aussi le tenseur $\bar{\bar{\mathbf{C}}}$ des dilatations, appelé aussi tenseur de CAUCHY-GREEN droit s'écrit :

$$\bar{\bar{\mathbf{C}}} = \bar{\bar{\mathbf{F}}}^T.\bar{\bar{\mathbf{F}}} \quad (\text{A.10})$$

La variation du produit scalaire s'écrit :

$$d\vec{x}.d\vec{y} - d\vec{X}.d\vec{Y} = d\vec{X}.\bar{\bar{\mathbf{F}}}^T.\bar{\bar{\mathbf{F}}} - \bar{\bar{\mathbf{1}}}).d\vec{Y} \quad (\text{A.11})$$

On définit le tenseur des déformations de GREEN-LAGRANGE par :

$$\bar{\bar{\mathbf{E}}} = \frac{1}{2}(\bar{\bar{\mathbf{C}}} - \bar{\bar{\mathbf{1}}}) \quad (\text{A.12})$$

– **Description eulérienne des déformations**

Dans la configuration actuelle, le tenseur de CAUCHY-GREEN gauche s'écrit :

$$\bar{\mathbf{B}} = \bar{\mathbf{F}} \cdot \bar{\mathbf{F}}^T \quad (\text{A.13})$$

avec : $d\vec{X} \cdot d\vec{Y} = d\vec{x} \cdot \bar{\mathbf{B}}^{-1} \cdot d\vec{y}$

La variation de produit scalaire est définie par le tenseur d'EULER-ALMANSI $\bar{\mathbf{A}}$:

$$\bar{\mathbf{A}} = \frac{1}{2}(\bar{\mathbf{I}} - \bar{\mathbf{B}}^{-1}) \quad (\text{A.14})$$

– **Décomposition polaire du tenseur gradient de transformation**

Le tenseur gradient de la transformation $\bar{\mathbf{F}}$ englobe les rotations rigides et les déformations pures. La décomposition polaire du tenseur gradient de transformation est unique, elle permet de définir la déformation pure.

$$\bar{\mathbf{F}} = \bar{\mathbf{V}} \cdot \bar{\mathbf{R}} = \bar{\mathbf{R}} \cdot \bar{\mathbf{U}} \quad (\text{A.15})$$

avec $\bar{\mathbf{V}}$ et $\bar{\mathbf{U}}$ sont respectivement sont respectivement les tenseurs des déformations pures droit et gauche. Ils sont symétriques définis positifs. $\bar{\mathbf{R}}$ est le tenseur rotation.

A.3 Vitesse de déformation

Soit \vec{v} le vecteur vitesse défini comme la dérivée par rapport au temps de $\vec{x}(\vec{X}, t)$:

$$d\vec{v} = d\dot{\vec{x}} = \dot{\bar{\mathbf{F}}} \cdot d\vec{X} = \bar{\mathbf{L}} \cdot d\vec{x} \quad (\text{A.16})$$

Le tenseur gradient de vitesse s'écrit :

$$\bar{\mathbf{L}} = \dot{\bar{\mathbf{F}}} \cdot \bar{\mathbf{F}}^{-1} \quad (\text{A.17})$$

$\bar{\mathbf{L}}$ est décomposé en une partie symétrique $\bar{\mathbf{D}}$ (tenseur eulérien taux de déformation) et une partie antisymétrique $\bar{\mathbf{W}}$ (tenseur eulérien taux de rotation).

$$\bar{\mathbf{L}} = \bar{\mathbf{D}} + \bar{\mathbf{W}} \quad (\text{A.18})$$

avec :

$$\bar{\mathbf{D}} = \frac{1}{2}(\bar{\mathbf{L}} + \bar{\mathbf{L}}^T) \quad (\text{A.19})$$

$$\bar{\mathbf{W}} = \frac{1}{2}(\bar{\mathbf{L}} - \bar{\mathbf{L}}^T) \quad (\text{A.20})$$

A.4 Description des contraintes

On distingue trois descriptions de l'état de contrainte : eulérienne, mixte et lagrangienne.

– Description eulérienne

Les efforts intérieurs de cohésion \vec{dt} exercés par une partie du solide sur l'autre à travers un élément de surface de la configuration actuelle $\vec{n}ds$ s'écrivent :

$$\vec{dt} = \bar{\bar{\sigma}} \cdot \vec{n}ds \quad (\text{A.21})$$

Le tenseur des contraintes de CAUCHY $\bar{\bar{\sigma}}$ est symétrique. Il représente les efforts de cohésion exercés à travers un élément de surface déformée et par unité de surface déformée.

– Description mixte

Le transport de l'élément de surface $\vec{n}ds$ dans la configuration initiale permet d'écrire autrement la relation de l'équation A.21 :

$$\vec{dt} = \bar{\bar{\sigma}} \cdot J\bar{\bar{\mathbf{F}}}^{-T} \cdot \vec{N}dS \quad (\text{A.22})$$

On définit le premier tenseur de PIOLA-KIRCHHOFF $\bar{\bar{\pi}}$:

$$\bar{\bar{\pi}} = J\bar{\bar{\sigma}} \cdot \bar{\bar{\mathbf{F}}}^{-T} \quad (\text{A.23})$$

avec $\vec{dt} = \bar{\bar{\pi}} \cdot \vec{N}dS$

– Description lagrangienne

L'effort de cohésion dans la configuration initiale s'écrit :

$$d\vec{T} = \bar{\bar{\mathbf{F}}}^{-1} \cdot \vec{dt} \quad (\text{A.24})$$

Le second tenseur de PIOLA-KIRCHHOFF $\bar{\bar{\mathbf{S}}}$ s'écrit :

$$\bar{\bar{\mathbf{S}}} = J\bar{\bar{\mathbf{F}}}^{-1} \cdot \bar{\bar{\sigma}} \cdot \bar{\bar{\mathbf{F}}}^{-T} = \bar{\bar{\mathbf{F}}}^{-1} \cdot \bar{\bar{\pi}} \quad (\text{A.25})$$

tel que : $d\vec{T} = \bar{\bar{\mathbf{S}}} \cdot \vec{N}dS$.

A.5 Hypothèse des petites perturbations

Cette hypothèse signifie que le déplacement $\|\nabla \vec{u}\|$ est faible, et que la configuration actuelle peut être confondue avec la configuration initiale ($\vec{X} = \vec{x}$). On a :

$$\bar{\bar{\epsilon}} = \frac{1}{2}((\nabla u)^T + \nabla u), \quad \bar{\bar{\mathbf{C}}} = \bar{\bar{\mathbf{B}}} = \bar{\bar{\mathbf{I}}} + 2\bar{\bar{\epsilon}} \quad \text{et} \quad \bar{\bar{\mathbf{E}}} = \bar{\bar{\mathbf{A}}} = \bar{\bar{\epsilon}} \quad (\text{A.26})$$

et $\bar{\bar{\sigma}} = \bar{\bar{\pi}} = \bar{\bar{\mathbf{S}}}$.

ANNEXE

B

**Une toolbox Abaqus pour le
calcul de propriétés effectives de
milieux hétérogènes**

Remarque

Cette Toolbox Abaqus pour le calcul de propriétés effectives de milieux hétérogènes est développée par S. Lejeunes et S. Bourgeois. A long terme, elle fera l'objet de tout un module qui sera intégré dans Abaqus pour des calculs en homogénéisation numérique.

B.1 Introduction

La mise en œuvre de problèmes d'homogénéisation numériques dans un code de calcul par éléments finis requiert l'écriture de conditions aux limites spécifiques sur le contour du volume élémentaire représentatif (VER) et l'imposition d'un chargement en moyenne. La mise en œuvre de ces problèmes peut s'avérer particulièrement lourde. La motivation principale de l'interface que nous proposons est d'automatiser et de simplifier au maximum cette mise en données dans un logiciel commercial assez largement utilisé (Abaqus). Dans sa version courante, l'interface développée offre la possibilité de mettre en œuvre les théories d'homogénéisation classiquement utilisées : déformation homogène au contour (KUBC⁽¹⁾), contrainte homogène au contour (SUBC⁽²⁾) et homogénéisation périodique (PBC⁽³⁾), en petites perturbations et grandes déformations (2D ou 3D).

La stratégie retenue et implémentée consiste à formuler les problèmes de localisation associés aux différentes méthodes en introduisant des ddls supplémentaires supportant les composantes des déformations macroscopiques (cf. [17]). Les conditions aux limites spécifiques aux différents problèmes (KUBC, SUBC ou PBC) sont alors imposées via des relations linéaires entre les degrés de liberté des nœuds du contour et ces ddls supplémentaires. On peut alors montrer que les forces nodales associées aux ddls supportant les composantes des déformations moyennes sont égales aux composantes de la contrainte moyenne (au volume du VER près). Le pilotage à déformation ou contrainte moyenne imposée revient alors à imposer la valeur des ddls supplémentaires ou les forces nodales associées. L'obtention de la réponse effective du VER ne nécessite donc aucun post-traitement particulier. Dans Abaqus, les relations linéaires entre ddls sont prises en compte par une méthode d'élimination. Dans la littérature, on peut trouver d'autres méthodes. Par exemple, on peut introduire les conditions aux limites par pénalisation [43, 55, 20]. Pour les problèmes périodiques, certains auteurs introduisent une discrétisation des champs fluctuants plutôt que des champs totaux [9, 44]. La méthode retenue

(1). Kinematically Uniform Boundary Conditions

(2). Statically Uniform Boundary Conditions

(3). Periodic Boundary Conditions

ici a le mérite de pouvoir être implémentée simplement dans le logiciel Abaqus et de pouvoir profiter ainsi de l'ensemble des lois de comportement disponibles pour les constituants du VER.

B.2 Problème de localisations sur le Volume Élémentaire Représentatif

B.2.1 Petites déformations

On considère un Volume Élémentaire Représentatif (VER), assimilable à une microstructure hétérogène occupant un domaine V de frontière ∂V . La loi de comportement caractérisant le matériau en un point \mathbf{x} du volume, reliant le tenseur des contraintes $\bar{\boldsymbol{\sigma}}(\mathbf{x})$ et le tenseur des déformations $\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}(\mathbf{x})$, n'est pas précisée. On écarte cependant la présence de pores et de constituants rigides, même si ces cas peuvent être traités sous certaines conditions par l'interface. Le comportement effectif est caractérisé classiquement par la relation entre les déformations et les contraintes moyennes définies par :

$$\bar{\mathbf{E}} = \langle \bar{\boldsymbol{\varepsilon}} \rangle = \frac{1}{|V|} \int_V \bar{\boldsymbol{\varepsilon}} dV, \quad \bar{\boldsymbol{\Sigma}} = \langle \bar{\boldsymbol{\sigma}} \rangle = \frac{1}{|V|} \int_V \bar{\boldsymbol{\sigma}} dV \quad (\text{B.1})$$

où $|V|$ désigne le volume du VER. Supposant que le champ de déformation est compatible avec un champ de déplacement $\mathbf{u}(\mathbf{x})$ continu, on peut utiliser la définition équivalente suivante pour la moyenne des déformations

$$\bar{\mathbf{E}} = \frac{1}{|V|} \int_{\partial V} \mathbf{u} \otimes_S \mathbf{n} dV \quad (\text{B.2})$$

où \otimes_S désigne le produit tensoriel symétrisé et $\mathbf{n}(\mathbf{x})$ le vecteur normal sortant. Les problèmes de localisation peuvent être menés à contrainte moyenne imposée $\bar{\boldsymbol{\Sigma}}^d$ ou déformation moyenne imposée $\bar{\mathbf{E}}^d$. Le choix de la méthode de localisation revient ensuite à faire un choix de conditions limites. On envisage dans la suite trois méthodes : déformation homogène au contour (KUBC), contrainte homogène au contour (SUBC) et conditions périodiques. Omettant la loi de comportement, on peut résumer le problème (KUBC) de la façon suivante :

$$P_{\text{KUBC}} : \text{div} \bar{\boldsymbol{\sigma}}(\mathbf{x}) = 0 \text{ dans } V, \quad \mathbf{u}(\mathbf{x}) - \bar{\mathbf{E}} \cdot \mathbf{x} = 0 \text{ sur } \partial V, \quad \bar{\mathbf{E}} = \bar{\mathbf{E}}^d \text{ ou } \bar{\boldsymbol{\Sigma}} = \bar{\boldsymbol{\Sigma}}^d. \quad (\text{B.3})$$

La résolution du problème P_{KUBC} à déformation imposée dans un code de calcul par éléments finis classique peut généralement être mise en œuvre assez facilement. Il nécessite simplement l'introduction de conditions limites dépendant des coordonnées des noeuds du contour.

Il est cependant souvent nécessaire de développer un post-traitement spécifique pour calculer la moyenne des contraintes. On remarquera aussi que le pilotage à contrainte moyenne imposée est plus délicat. Un moyen de contourner ces difficultés techniques liées au chargement en moyenne est d'introduire les composantes de la déformation moyenne comme des degrés de libertés supplémentaires du problème. La condition limite $\mathbf{u}(\mathbf{x}) - \bar{\mathbf{E}} \cdot \mathbf{x} = 0$ sur ∂V se traduit alors par des relations linéaires entre ddls. La formulation variationnelle associée au problème P_{KUBC} devient alors, en tenant compte des relations linéaires introduites :

$$P_{\text{KUBC}} : \text{pour tout } \mathbf{u}^*(\mathbf{x}) \text{ et } \bar{\mathbf{E}}^* \text{ vérifiant } \mathbf{u}^* - \bar{\mathbf{E}}^* \cdot \mathbf{x} = 0 \text{ sur } \partial V, \int_V \bar{\boldsymbol{\sigma}} : \bar{\boldsymbol{\varepsilon}}(\mathbf{u}^*) \, dV = |V| \bar{\boldsymbol{\Sigma}} : \bar{\mathbf{E}}^*. \quad (\text{B.4})$$

La formulation (B.4) montre que les forces nodales associées aux nouveaux ddls sont égales aux contraintes moyennes multipliées par le volume du VER. Avec cette formulation, le pilotage à déformation moyenne (resp. à contrainte moyenne) s'effectue en imposant simplement la valeur des ddls supplémentaires (resp. la valeur des forces nodales aux ddls supplémentaires). On remarquera que la formulation (B.4) ne dépend pas de la loi de comportement des constituants du VER.

Considérons maintenant le problème à contrainte homogène au contour :

$$P_{\text{SUBC}} : \text{div } \bar{\boldsymbol{\sigma}}(\mathbf{x}) = 0 \text{ dans } V, \bar{\boldsymbol{\sigma}}(\mathbf{x}) \cdot \mathbf{n} - \bar{\boldsymbol{\Sigma}} \cdot \mathbf{n} = 0 \text{ sur } \partial V, \bar{\mathbf{E}} = \bar{\mathbf{E}}^d \text{ ou } \bar{\boldsymbol{\Sigma}} = \bar{\boldsymbol{\Sigma}}^d. \quad (\text{B.5})$$

Pour le problème P_{SUBC} , il est naturel de mener les calculs à contrainte moyenne imposée et de calculer en post-traitement la déformation moyenne. Le pilotage à déformation moyenne imposée est délicat. Une approche analogue à celle exposée pour traiter le problème P_{KUBC} peut être adoptée. Elle consiste de même à introduire des ddls supplémentaires supportant les composantes de la déformation moyenne. Les relations linéaires introduites correspondent à la version discrétisée de l'équation (B.2), permettant de définir la déformation moyenne à partir des déplacements des noeuds du contour. La formulation variationnelle associée au problème P_{KUBC} s'écrit alors :

$$P_{\text{SUBC}} : \text{pour tout } \mathbf{u}^*(\mathbf{x}) \text{ et } \bar{\mathbf{E}}^* \text{ vérifiant } \frac{1}{|V|} \int_{\partial V} \mathbf{u}^* \otimes_S \mathbf{n} \, dS - \bar{\mathbf{E}}^* = 0, \int_V \bar{\boldsymbol{\sigma}} : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}^*) \, dV = |V| \bar{\boldsymbol{\Sigma}} : \bar{\mathbf{E}}^*. \quad (\text{B.6})$$

Cette formulation variationnelle est équivalente aux deux premières équations de (B.5). L'introduction des relations linéaires associées à l'équation (B.2) permet ainsi d'imposer par dualité les conditions de contrainte homogène au contour.

Pour les milieux périodiques, on choisit classiquement de mener les calculs sur une cellule de base qui génère le milieu par périodicité. Cette périodicité est définie par la donnée de vecteurs permettant de construire le milieu par translation de la cellule de base le long de ceux-ci. Le problème associé s'écrit (toujours en omettant de préciser la loi de comportement des constituants) :

$$P_{PBC} : \operatorname{div} \bar{\bar{\sigma}}(\mathbf{x}) = 0 \text{ dans } V, \bar{\bar{\sigma}}(\mathbf{x}) \cdot \mathbf{n} = \# \text{ sur } \partial V, \mathbf{u}(\mathbf{x}) - \bar{\bar{\mathbf{E}}}\mathbf{x} = \# \text{ sur } \partial V, \bar{\bar{\mathbf{E}}} = \bar{\bar{\mathbf{E}}}^d \text{ ou } \bar{\bar{\Sigma}} = \bar{\bar{\Sigma}}^d, \quad (\text{B.7})$$

où les symboles « # » (resp. « -# ») caractérisent des champs qui prennent des valeurs égales (resp. opposées) en deux points qui se correspondent par translation suivant les vecteurs de périodicités sur des parties opposées du contour. La même démarche conduit à introduire des relations linéaires entre des dds additionnels supportant les composantes de la déformation moyenne et les déplacements des noeuds du bords, traduisant la condition $\mathbf{u}(\mathbf{x}) - \bar{\bar{\mathbf{E}}}\mathbf{x} = \#$ sur ∂V . La formulation variationnelle associée

$$P_{PBC} : \text{pour tout } \mathbf{u}^*(\mathbf{x}) \text{ et } \bar{\bar{\mathbf{E}}}^* \text{ vérifiant } \mathbf{u}^* - \bar{\bar{\mathbf{E}}}^*\mathbf{x} = \# \text{ sur } \partial V, \int_V \bar{\bar{\sigma}} : \boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{u}^*) \, dV = |V| \bar{\bar{\Sigma}} : \bar{\bar{\mathbf{E}}}^* \quad (\text{B.8})$$

permet notamment d'assurer par dualité la condition $\bar{\bar{\sigma}}(\mathbf{x}) \cdot \mathbf{n} = \#$ sur ∂V .

B.2.2 Grandes déformations

Contrairement au cas des petites perturbations, en grandes déformations, le choix de la mesure des déformations et des contraintes se pose. Dans la littérature, le comportement effectif est souvent défini à l'aide des moyennes, sur le VER, du tenseur gradient de la transformation $\bar{\bar{\mathbf{f}}}$ du premier tenseur de Piola-Kirchoff $\bar{\bar{\boldsymbol{\pi}}}$ (cf [43, 55, 20]) :

$$\bar{\bar{\mathbf{F}}} = \langle \bar{\bar{\mathbf{f}}} \rangle = \frac{1}{|V_0|} \int_{V_0} \bar{\bar{\mathbf{f}}} \, dV, \quad \bar{\bar{\boldsymbol{\Pi}}} = \langle \bar{\bar{\boldsymbol{\pi}}} \rangle = \frac{1}{|V_0|} \int_{V_0} \bar{\bar{\boldsymbol{\pi}}} \, dV, \quad (\text{B.9})$$

où V_0 désigne le domaine occupé par le VER dans la configuration initiale de référence et $|V_0|$ son volume. On note \mathbf{x}_0 le vecteur position initiale d'un point matériel dans cette configuration. Introduisant le champ de déplacement $\mathbf{u}(\mathbf{x}_0)$ associé au tenseur gradient de la transformation, on peut utiliser la définition équivalente suivante :

$$\bar{\bar{\mathbf{F}}} = \bar{\bar{\mathbf{1}}} + \frac{1}{|V_0|} \int_{\partial V_0} \mathbf{u} \otimes \mathbf{n}_0 \, dS, \quad (\text{B.10})$$

avec $\bar{\bar{\mathbf{1}}}$ le tenseur identité et \mathbf{n}_0 la normale extérieure au domaine occupé par le VER dans sa configuration initiale. Les trois méthodes de localisation classiquement utilisées (conditions homogènes en déformations et en contraintes, conditions périodiques) peuvent être utilisées dans

ce cadre. Le tableau B.1 précisent les conditions limites associées à chacune des méthodes et les relations linéaires à mettre en œuvre après introduction des ddls supplémentaires supportant les composantes du gradient de transformation moyen.

Problèmes	Conditions limites	Relations linéaires
P_{KUBC}	$\mathbf{u}(\mathbf{x}_0) - (\bar{\bar{\mathbf{F}}} - \bar{\mathbf{1}}) \cdot \mathbf{x}_0 = 0$ sur ∂V_0	$\mathbf{u}(\mathbf{x}_0) - (\bar{\bar{\mathbf{F}}} - \bar{\mathbf{1}}) \cdot \mathbf{x}_0 = 0$ sur ∂V_0
P_{SUBC}	$\bar{\bar{\boldsymbol{\pi}}}(\mathbf{x}_0) \cdot \mathbf{n}_0 = \bar{\bar{\boldsymbol{\Pi}}} \cdot \mathbf{n}_0$ sur ∂V	$\bar{\bar{\mathbf{F}}} - \bar{\mathbf{1}} - \frac{1}{ \partial V_0 } \int_{\partial V_0} \mathbf{u} \otimes \mathbf{n}_0 \, dS = 0$
P_{PBC}	$\bar{\bar{\boldsymbol{\pi}}}(\mathbf{x}_0) \cdot \mathbf{n}_0 - \#$ et $\mathbf{u}(\mathbf{x}_0) - (\bar{\bar{\mathbf{F}}} - \bar{\mathbf{1}}) \cdot \mathbf{x}_0 \#$ sur ∂V_0	$\mathbf{u}(\mathbf{x}_0) - (\bar{\bar{\mathbf{F}}} - \bar{\mathbf{1}}) \cdot \mathbf{x}_0 \#$ sur ∂V_0

TABLE B.1 – Traitements des conditions limites pour les problèmes de localisation en grandes déformations

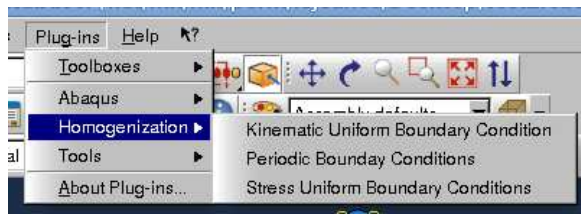
B.2.3 Une formulation unifiée pour la mise en œuvre dans Abaqus

La méthode proposée pour la mise en œuvre des problèmes de localisations, que ce soit en petites déformations ou en grandes déformations, et quelque soit la méthode (KUBC, SUBC, PBC), repose sur l'introduction de ddls supplémentaires et de relations linéaires entre degrés de liberté. Dans le logiciel, les ddls supplémentaires peuvent être introduits en créant dans l'interface CAE des points de référence (Reference Point RP). La création des relations linéaires entre ddls, spécifiques à chaque cas, est réalisée via une interface conviviale intégrée au menu de l'interface CAE.

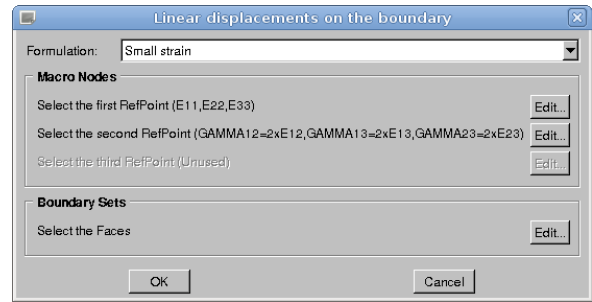
B.3 Implémentation et mode d'emploi

La "boite à outils" proposée est écrite en Python et est constituée de trois classes (trois interfaces) : KUBC, SUBC et PBC. Parallèlement à cette partie graphique qui est très simple, nous avons également trois moteurs (ou classes) de génération de conditions aux limites qui sont chargés de construire les relations linéaires propres à chaque méthode et qui peuvent être appelés par les différentes interfaces ou directement par des scripts Python⁽⁴⁾. Concrètement, pour l'utilisateur, ces interfaces sont disponibles dans le module Interaction d'Abaqus, depuis le déroulant Plug-ins (voir fig. 1(a)).

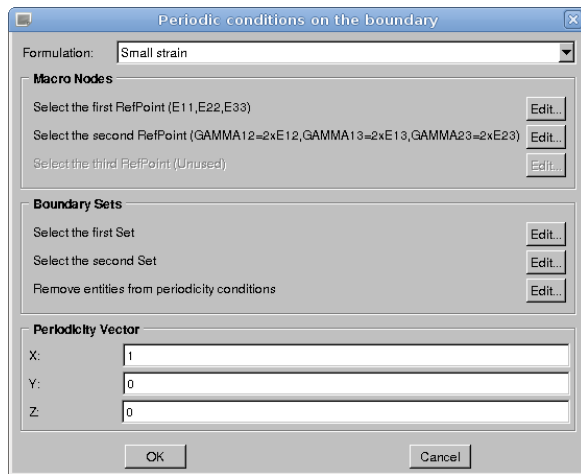
(4). L'utilisation direct des moteurs de génération peut permettre d'automatiser une mise en données du modèle, pour faire de l'optimisation par exemple.



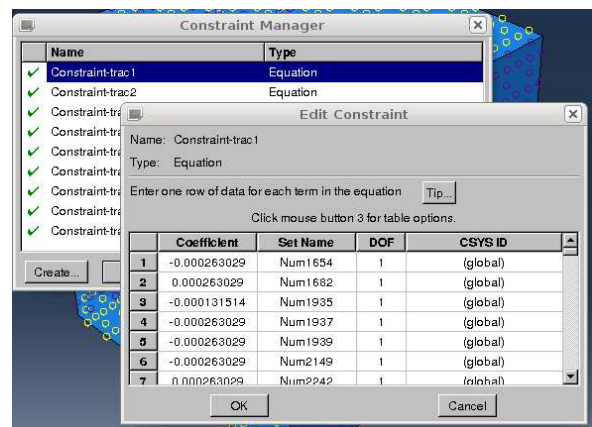
(a) le menu homogénéisation



(b) l'interface pour KUBC (idem SUBC)



(c) l'interface pour le cas périodique



(d) les équations linéaires

FIGURE B.1 – Le module homogénéisation

B.3.1 Utilisation

Tout d'abord, toutes les interfaces pré-supposent qu'un maillage du VER ait déjà été réalisé et que les points de références soient déjà créés. Au démarrage de chacune des interfaces, l'utilisateur doit préciser, via un menu déroulant, dans quel cadre il souhaite travailler : petites perturbations ou grandes déformations. Ceci permet d'être informé d'une part du nombre de points de références nécessaires et d'autre part de la signification de chaque ddl de ces points :

- en 2D HPP (déformations planes) : RP 1 $\{\bar{\bar{E}}_{11}, \bar{\bar{E}}_{22}\}$, RP 2 $\{2\bar{\bar{E}}_{12}, \text{non utilisé}\}$,
- en 2D GD (déformations planes) : RP 1 $\{\bar{\bar{F}}_{11} - 1, \bar{\bar{F}}_{12}\}$, RP 2 $\{\bar{\bar{F}}_{22} - 1, \bar{\bar{F}}_{21}\}$,
- en 3D HPP : RP 1 $\{\bar{\bar{E}}_{11}, \bar{\bar{E}}_{22}, \bar{\bar{E}}_{33}\}$, RP 2 $\{2\bar{\bar{E}}_{12}, 2\bar{\bar{E}}_{13}, 2\bar{\bar{E}}_{23}\}$,
- en 3D GD : RP 1 $\{\bar{\bar{F}}_{11} - 1, \bar{\bar{F}}_{12}, \bar{\bar{F}}_{13}\}$, RP 2 $\{\bar{\bar{F}}_{21}, \bar{\bar{F}}_{22} - 1, \bar{\bar{F}}_{23}\}$, RP 3 $\{\bar{\bar{F}}_{31}, \bar{\bar{F}}_{32}, \bar{\bar{F}}_{33} - 1\}$.

Dans le cas SUBC et KUBC (voir 1(b)), l'utilisateur doit fournir les entrées suivantes :

- les points de références (la sélection se fait à la souris),

– les faces, arrêtes ou nœuds formant le contour du VER (toujours à la souris).

Dans le cas périodique (voir 1(c)), l'interface doit être appelée pour chaque paire géométrique se correspondant par périodicité (soit au minimum 2 fois en 2D et 3 fois en 3D). On doit fournir :

- les points de références (la sélection se fait à la souris),
- les faces, arrêtes ou nœuds se correspondant par périodicité (toujours à la souris),
- le vecteur de périodicité (au clavier).

Après validation de l'interface, les relations linéaires générées se retrouvent directement dans le "Constraint Manager" d'Abaqus (voir fig. 1(d)). Le tableau B.2 résume les points forts et les points faibles de l'interface :

Points faibles	Points forts
" <i>maillage dépendant</i> " : à chaque modification du maillage il faut régénérer les conditions en relançant l'interface	" <i>sélection par nœud</i> " : on peut définir les conditions avec un import de modèle (depuis un .odb)
" <i>cas périodique</i> " : le maillage doit être périodique	" <i>séparation GUI/Kernel</i> " : on peut utiliser les moteurs (kernel) indépendamment de l'interface, par exemple dérivation de nouvelles classes thermoélasticité ...
	" <i>post-traitement et pilotage</i> " : les points de référence permettent à la fois de piloter en contrainte ou déformation moyenne et de déduire directement la réponse effective

TABLE B.2 – Points forts/point faible de l'interface

B.3.2 Moteurs de génération des conditions

Les trois moteurs (classes) de génération sont chargés de créer dans la base de données du modèle toutes les relations et les groupes de nœuds nécessaires. Le nombre de ligne de chaque moteur est un bon indicateur de leur complexité en terme de programmation : KUBC 132 lignes,

SUBC 387 lignes, PBC 460 lignes. Le tableau B.3 résume les opérations effectuées par chaque moteur.

KUBC	SUBC	PBC
<ol style="list-style-type: none"> 1. vérifier la présence d'un maillage , 2. calculer la distance $\mathbf{x}_0^i - \mathbf{x}_0^M$, où \mathbf{x}_0^i représente les coordonnées du nœud i dans la configuration de référence et \mathbf{x}_0^M les coordonnées du premier point de référence, pris comme origine des abscisses par convention, 3. écrire les relations linéaires. 	<ol style="list-style-type: none"> 1. vérifier la présence d'un maillage , 2. sur chaque arête (cas 2D) ou chaque face (cas 3D), calculer la contribution de l'intégrale de frontière $\int_{\partial\Omega_e} \mathbf{u}^i \otimes \mathbf{n}_0 dS$ de l'élément Ω_e au nœud i, en tenant compte du type d'élément utilisé, 3. assembler les contributions de chaque élément aux nœuds du contour, 4. simplifier le système d'équation par une élimination de type pivot, 5. écrire les relations linéaires. 	<ol style="list-style-type: none"> 1. vérifier la présence et la périodicité du maillage, 2. trouver les nœuds se correspondant par périodicité, 3. construire un arbre de relation sans cycles (au sens de la théorie des graphes) : l'objet <code>dictionary</code> de python est à la base d'une classe <code>Tree</code> incluse dans la boîte à outil, 4. vérifier et gérer la non répétition de nœuds maîtres dans l'ensemble des équations (si nécessaire : permutations maîtres/esclaves), 5. écrire les relations linéaires.

TABLE B.3 – Tâches de chaque moteur

Le typage dynamique et les conteneurs spécifiques de python permettent au final d'avoir un

code succinct et lisible. Par exemple, le cœur du code de la classe `PeriodicBoundary` reste très simple puisqu'il contient les lignes suivantes :

```
# check if we have a mesh
if(len(a.allSets[nameS1].nodes)==0):
    print "A mesh is needed!"
    self.SuppressPickedSet(a)
    return 0
# check the mesh periodicity
if(not self.VerifNodeCoord(nameS1,nameS2,a)):
    self.SuppressPickedSet(a)
    return 0
self.MakeNodeSetsandEquations(nameS1,nameS2,nameS3,a,dim)
```


Résumé : Ce travail porte sur la modélisation micromécanique des élastomères chargés. On cherche principalement à d'une part identifier l'influence des propriétés des différentes phases (morphologie et comportement) sur la réponse macroscopique, et d'autre part explorer les mécanismes d'interactions qui peuvent avoir lieu au sein de la micro-structure. Pour ce faire, on a mené une étude à deux échelles d'observations et ce à l'aide de simulations numériques basées sur l'homogénéisation. Le premier niveau correspond à une échelle mésoscopique pour laquelle on considère un Volume Élémentaire Représentatif (VER) bi-phasique, constitué d'un agglomérat de charge dissipatif, noyé dans une matrice hyperélastique. Le second niveau consiste, à une plus petite échelle, à explorer le comportement d'un agglomérat idéalisé, constitué de particules de charges infiniment rigides liées entre elles par une mince couche de gomme. Cette micro-structure est générée de manière aléatoire par un tirage de polygones de Voronoï. Des calculs éléments finis sont réalisés en élasticité linéaire et non-linéaire dans un contexte d'homogénéisation numérique en utilisant diverses techniques de localisation. Les différentes analyses menées montrent notamment que l'hypothèse d'affinité n'est pas adaptée à ce type de micro-structures et que le caractère incompressible de la gomme ainsi que son confinement jouent un rôle prépondérant sur le comportement mécanique de l'agglomérat.

Mots clés : élastomère chargé, grandes déformations, homogénéisation numérique, polygones de Voronoï.

Abstract : This work focuses on the micromechanical modeling of filled elastomers. The major question to be identified : firstly the influence of the properties of different phases (morphology and behavior) on the macroscopic response, and also to explore the mechanisms of interactions that take place within the micro-structure. To do this, we conducted a study at two scales of observations and using the numerical simulations based on homogenization. The first level corresponds to a mesoscopic scale for which we consider a representative elementary volume (REV), biphasic, consisting of a homogeneous dissipative inclusion (agglomerate) embedded in a hyperelastic matrix. The second level is at a smaller scale, to explore the behavior of an idealized agglomerate, consisting of infinitely rigid filler particles bounded together by a thin layer of rubber. This micro-structure is randomly generated by a random Voronoï polygons. Finite element calculations are performed in linear elasticity and nonlinear in the context of numerical homogenization using various localization techniques. The results show in particular that the assumption of affinity is not suitable for this type of micro-structures and the incompressibility of the rubber and its containment play an important role on the mechanical behavior of the agglomerate.

Key words : filled rubber, large deformation, numerical homogenization, Voronoï polygons.