

N° d'ordre : 4132

Université des Sciences et Technologies de Lille
Ecole Doctorale Sciences Pour l'Ingénieur
Laboratoire de Mécanique de Lille (UMR CNRS 8107)

THÈSE de DOCTORAT

pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ de LILLE 1

Spécialité : **Mécanique**

présentée par

Vanessa BOUCHART

**ÉTUDE EXPÉRIMENTALE ET MODÉLISATION MICROMÉCANIQUE DU
COMPORTEMENT ET DE L'ENDOMMAGEMENT DES ÉLASTOMÈRES
RENFORCÉS**

Soutenue le mardi 18 décembre 2007 devant le Jury composé de :

André DRAGON	Directeur de recherche, ENSMA, Futuroscope Chasseneuil	<i>Président</i>
Issam DOGHRI	Professeur, Université Catholique de Louvain-La-Neuve	<i>Rapporteur</i>
Christophe FOND	Professeur, Université Strasbourg 3	<i>Rapporteur</i>
Jia LI	Professeur, Université Paris 13	<i>Examineur</i>
Philippe PILVIN	Professeur, Université de Bretagne-Sud	<i>Examineur</i>
Moussa NAÏT ABDELAZIZ	Professeur, Université Lille 1	<i>Directeur</i>
Mathias BRIEU	Professeur, École Centrale de Lille	<i>Co-directeur</i>
Djimédo KONDO	Professeur, Université Lille 1	<i>Co-directeur</i>

N° d'ordre : 4132

Université des Sciences et Technologies de Lille
Ecole Doctorale Sciences Pour l'Ingénieur
Laboratoire de Mécanique de Lille (UMR CNRS 8107)

THÈSE de DOCTORAT

pour obtenir le grade de

DOCTEUR de l'UNIVERSITÉ de LILLE 1

Spécialité : **Mécanique**

présentée par

Vanessa BOUCHART

**ÉTUDE EXPÉRIMENTALE ET MODÉLISATION MICROMÉCANIQUE DU
COMPORTEMENT ET DE L'ENDOMMAGEMENT DES ÉLASTOMÈRES
RENFORCÉS**

Soutenue le mardi 18 décembre 2007 devant le Jury composé de :

André DRAGON	Directeur de recherche, ENSMA, Futuroscope Chasseneuil	<i>Président</i>
Issam DOGHRI	Professeur, Université Catholique de Louvain-La-Neuve	<i>Rapporteur</i>
Christophe FOND	Professeur, Université Strasbourg 3	<i>Rapporteur</i>
Jia LI	Professeur, Université Paris 13	<i>Examineur</i>
Philippe PILVIN	Professeur, Université de Bretagne-Sud	<i>Examineur</i>
Moussa NAÏT ABDELAZIZ	Professeur, Université Lille 1	<i>Directeur</i>
Mathias BRIEU	Professeur, École Centrale de Lille	<i>Co-directeur</i>
Djimédo KONDO	Professeur, Université Lille 1	<i>Co-directeur</i>

Remerciements

Un moment important pour un doctorant est le jour où il entreprend d'écrire ses remerciements. En effet, cela signifie qu'il se trouve à la fin de l'étape que peut représenter la thèse et qu'il est temps de remercier toutes les personnes qui ont pûes le supporter, guider ou encore inspirer au cours de ses années de thèse.

En premier lieu, je tiens à remercier Djimédo Kondo, Mathias Brieu et Moussa Naït-Abdelaziz, qui ont su durant toutes les réunions et discussions que nous avons pu avoir, me guider, me transmettre leurs connaissances mais aussi me soutenir afin de mener à bien ce travail de recherche. Je tiens également à les remercier pour la confiance qu'ils m'ont accordée et pour leur disponibilité. Qu'ils trouvent tous les trois en ces quelques lignes la témoignage de ma profonde reconnaissance.

Je tiens à exprimer mes sincères remerciements à Messieurs Issam Doghri et Christophe Fond qui m'ont fait l'honneur d'accepter la lourde tâche d'être rapporteurs de ce mémoire et pour l'intérêt qu'ils ont porté à ce travail. Je souhaite ensuite manifester ma reconnaissance à Monsieur André Dragon qui a accepté de présider ce jury ainsi qu'à Messieurs Jia Li et Philippe Pilvin qui ont participé à l'évaluation de ce travail.

Mes remerciements s'adressent aussi à Guy Caignaert et Issam Shahrour, directeurs successifs du Laboratoire de Mécanique de Lille durant mon doctorat, ils m'ont accueillie et offert des conditions de travail particulièrement appréciables. Je remercie également les membres des départements Mécanique et génie civil de l'école universitaire d'ingénieur de Lille (Polytech'lille) dans lesquels j'ai pu obtenir un poste de monitrice de l'enseignement supérieur. J'exprime également ma reconnaissance au Ministère de l'éducation nationale, de l'enseignement supérieur et de la recherche qui a financé ce travail.

Je pense ensuite à mes collègues, avec dans un premier temps, Fabien (qui est en réalité bien plus qu'un collègue), Ludovic, Vincent, Cosmin, Céline et Ariane que je remercie pour leur soutien, leurs encouragements et leur bonne humeur. Je pense également à mes anciens collègues de bureau : Vincent, Hassef, Qizhi. Je me souviendrai ensuite des midis sportifs, que j'ai pu avoir avec Émilie, Anne-Lise, Marie-Christine, Nathalie, Ariane et Fabrice, qui m'ont permis de me défouler et d'évacuer le stress que parfois peut procurer la thèse. Je pense également aux discussions et moments de détente que j'ai pu avoir autour de la table de la cafétéria qui rassemblait aussi bien les thésards que les permanents et le personnels administratifs. Pour tout cela, je tiens vivement à remercier tous les membres du laboratoire du bâtiment M6.

Je terminerai ces remerciements en me tournant vers ma famille et tous mes amis qui m'ont toujours soutenue durant mes études. Je pense spécialement à mon grand-père qui malheureusement nous a quitté. Malgré son métier difficile de mineur de fond, il n'a jamais ménagé ses efforts pour offrir à sa famille le meilleur, je ferai en sorte de suivre son exemple.

Enfin, je pense à Fabien qui m'a supporté, encouragé durant ces années de thèse et qui a su me booster dans notre dernière ligne droite commune de fin de thèse. Un grand merci à toi et j'espère que la vie nous apportera beaucoup.

Le commencement de toutes les sciences, c'est l'étonnement de ce que les choses sont ce qu'elles sont.

Aristote

Table des matières

Introduction générale	7
-----------------------	---

Chapitre I Caractéristiques et modélisation du comportement des matériaux élastomères
--

<i>I.1</i>	<i>Caractéristiques principales des élastomères</i>	<i>11</i>
I.1.1	Généralités sur les élastomères	12
I.1.1.1	Du caoutchouc naturel aux caoutchoucs synthétiques	12
I.1.1.2	Procédé d'élaboration	13
I.1.1.3	Catégories et composition des élastomères	14
I.1.2	Propriétés mécaniques des élastomères	15
I.1.2.1	Structure macromoléculaire et vulcanisation	15
I.1.2.2	Le comportement hyperélastique des élastomères	17
I.1.2.3	Caractéristiques du comportement cyclique des élastomères . . .	18
<i>I.2</i>	<i>Modélisation du comportement mécanique hyperélastique des élastomères. . .</i>	<i>22</i>
I.2.1	Quelques brefs rappels sur la Mécanique des milieux continus en grandes déformations	22
I.2.1.1	Cinématique des milieux continus	23
I.2.1.2	Tenseurs des contraintes et équations d'équilibre	25
I.2.2	Lois de comportement	28
I.2.2.1	Inégalités de Clausius-Duhem	28
I.2.2.2	Lois d'état et densité d'énergie de déformation	29
I.2.3	Approche phénoménologique	30
I.2.3.1	Cas particulier des matériaux hyperélastiques sans endommagement	30
I.2.3.2	Exemples de densités d'énergie sans endommagement	31
<i>I.3</i>	<i>Problématique de la thèse</i>	<i>32</i>

Chapitre II**Homogénéisation des composites hyperélastiques**

<i>II.1</i>	<i>Homogénéisation non linéaire en mécanique des matériaux</i>	33
II.1.1	Généralités sur les approches micromécaniques	33
II.1.2	Méthodes d'homogénéisation non linéaire	35
II.1.2.1	Introduction	35
II.1.2.2	Problème local et densité d'énergie macroscopique	36
II.1.2.3	Principe de la linéarisation	37
<i>II.2</i>	<i>Théorie du second ordre adaptée aux composites hyperélastiques</i>	38
II.2.1	Principe de la méthode du second ordre	39
II.2.2	Choix optimaux de $\mathbf{F}^{(r)}$ et de $\tilde{\mathbf{L}}^{(r)}$	40
II.2.3	Contraintes macroscopiques et moyennes par phases	42
<i>II.3</i>	<i>Cas des matériaux biphasés hyperélastiques à microstructures particulières</i>	42
<i>II.4</i>	<i>Application aux matériaux renforcés par des particules déformables</i>	45
II.4.1	Mise en œuvre numérique	45
II.4.1.1	Calcul numérique du tenseur de Hill \mathbb{P}	45
II.4.1.2	Résolution du problème fictif de thermoélasticité sur le CLC	46
II.4.1.3	Implémentation pour un essai de traction uniaxiale	47
II.4.2	Illustrations des prédictions du modèle micromécanique	49
<i>II.5</i>	<i>Conclusions.</i>	54

Chapitre III**Comparaison des prédictions issues de l'homogénéisation avec des simulations par éléments finis**

<i>III.1</i>	<i>Présentation des simulations éléments finis</i>	56
<i>III.2</i>	<i>Prédictions de l'approche d'homogénéisation et des simulations éléments finis</i>	58
III.2.1	Chargement de traction uniaxiale	58
III.2.2	Sur l'hétérogénéité intraphase	61
III.2.3	Chargements d'extension et de compression simple	63
<i>III.3</i>	<i>Effet de forme des inclusions</i>	65
<i>III.4</i>	<i>Évolution réversible de la microstructure.</i>	68
III.4.1	Introduction	68
III.4.2	Évolution de la forme des inclusions	70

III.4.3	Évolution de la fraction volumique de renforts	71
III.5	<i>Conclusions</i>	74

Chapitre IV

Étude expérimentale et modélisation du comportement hyperélastique d'un EPDM/PP

IV.1	<i>Matériau de l'étude</i>	78
IV.1.1	Constituants du matériau	78
IV.1.2	Les mélanges étudiés	79
IV.2	<i>Caractérisation expérimentale des propriétés mécaniques du matériau</i>	80
IV.2.1	Dispositif expérimental de traction uniaxiale	81
IV.2.2	Résultats expérimentaux et recherche du comportement hyperélastique	82
IV.2.2.1	Étude de l'effet du renforcement du PolyPropylène selon sa fraction massique	82
IV.2.2.2	Étude de l'effet du renforcement du PolyPropylène en fonction du type et de la quantité de compatibiliseur	84
IV.3	<i>Modélisation micromécanique du comportement hyperélastique</i>	86
IV.3.1	Identification du comportement des constituants	86
IV.3.1.1	Principe de l'identification	86
IV.3.1.2	Identification du comportement du PolyPropylène	89
IV.3.1.3	Identification du comportement de l'EPDM	90
IV.3.2	Résultats de la modélisation micromécanique et vérification par comparaison aux simulations par éléments finis	91
IV.3.3	Comparaison aux données expérimentales	99
IV.3.3.1	Matériau à faible taux de renforts	99
IV.3.3.2	Matériau à fort taux de renforts	100
IV.4	<i>Conclusions</i>	101

Chapitre V

Modélisation micromécanique de l'endommagement des élastomères

V.1	<i>Homogénéisation des élastomères poreux</i>	104
V.1.1	Théorie du second ordre adaptée aux matériaux hyperélastiques poreux	104
V.1.2	Vérification des prédictions par comparaison avec des simulations éléments finis	106

V.1.2.1	Cas des cavités sphériques	106
V.1.2.2	Cas des cavités sphéroïdales allongées ou aplaties	109
V.1.3	Premières prédictions pour les élastomères renforcés contenant des pores sphériques	110
V.2	<i>Formulation d'un modèle d'endommagement à base micromécanique</i>	110
V.2.1	Un modèle d'endommagement micromécanique isotrope pour les élastomères	111
V.2.1.1	Densité d'énergie macroscopique et lois d'état	111
V.2.1.2	Lois d'évolution de l'endommagement	112
V.2.1.3	Mise en œuvre et algorithme	114
V.2.2	Exemples de prédictions obtenues	118
V.3	<i>Potentialité de l'approche micro-macro de l'endommagement pour l'étude de l'EPDM/PP</i>	120
V.3.1	Application au mélange EPDM/PP	120
V.3.2	Modélisation d'essais de traction uniaxiale cyclique	123
V.4	<i>Modèle d'endommagement avec évolution de la forme des micro cavités</i>	123
V.4.1	Éléments de formulation d'un modèle d'endommagement anisotrope	123
V.4.2	Exemple de prédictions obtenues	124
V.4.3	Une illustration de l'effet de l'anisotropie de l'endommagement	125
V.5	<i>Conclusion</i>	126
Conclusions générales et perspectives		129
Bibliographie		133

Annexe A**Compléments du chapitre 1 : Rappels de thermodynamique des milieux continus**

A.1	<i>Premier Principe</i>	143
A.2	<i>Second principe</i>	144

Annexe B**Compléments du chapitre 2**

B.1	<i>Calcul de la densité d'énergie homogénéisée</i>	147
B.2	<i>Tenseur des modules tangents et sa dérivée par rapport à \mathbf{F}</i>	148

Annexe C**Compléments du chapitre 2 : Mise en œuvre spécifique du modèle pour le cas des particules rigides**

<i>C.1</i>	<i>Théorie du second ordre appliquée aux matériaux hyperélastiques renforcés par des particules rigides</i>	151
C.1.1	Théorie du second ordre particularisée aux particules rigides	151
C.1.2	Schéma d'homogénéisation linéaire utilisé : estimation de type Hashin-Shtrikman	153
C.1.3	Mise en oeuvre numérique	153
C.1.3.1	Calcul numérique du tenseur de Hill \mathbb{P} et de la dérivée de $\frac{\partial \mathbb{P}^{-1}}{\partial \mathbf{F}}$	154
C.1.4	Applications et illustrations pour des inclusions sphériques	154
<i>C.2</i>	<i>Estimation de Hashin-Shtrikman pour les milieux renforcés par des particules rigides</i>	158

Annexe D**Contraintes moyennes par phases en extension et compression simples pour des inclusions déformables****Annexe E****Compléments du chapitre 3 : Comparaison EF/modèle pour le cas des inclusions rigides**

<i>E.1</i>	<i>Chargements de traction uniaxiale</i>	163
<i>E.2</i>	<i>Chargements d'extension</i>	165

Annexe F**Matrice jacobienne pour l'implémentation d'une loi de comportement hyperélastique dans Abaqus**

Introduction générale

Du fait de la grande richesse de leurs comportements, l'utilisation de matériaux élastomères, ou plus généralement de milieux dont le comportement peut être considéré en première approximation comme hyperélastique, est de plus en plus répandue dans de nombreux domaines industriels de pointe. La plupart du temps, ces milieux interviennent dans la réalisation de structures devant assumer des tâches de suspension, de liaison et/ou d'amortissement. Parmi les nombreuses applications de ces milieux, on peut mentionner les pneumatiques et les supports de moteurs en industrie automobile, la suspension secondaire de voitures de TGV pour ce qui concerne l'industrie ferroviaire, les éléments de liaison entre le rotor et les pâles d'hélicoptères en industrie aéronautique.

Afin de remédier au caractère grandement déformable de ces milieux, qui constitue, paradoxalement, une des raisons essentielles de leur utilisation dans les domaines précités, un moyen actuellement très répandu consiste à leur adjoindre des éléments renforçants, pouvant apparaître sous des formes et des rigidités diverses. Il en résulte que le dimensionnement optimal de ces milieux hétérogènes, ou plus exactement des structures qu'ils constituent, pose de grandes difficultés au concepteur, du fait qu'il est difficile d'estimer les bénéfices à retirer de telles opérations de renforcement. Les raisons à l'origine de ces difficultés sont diverses : nature fortement hétérogène des milieux ainsi construits, non linéarité de leur comportement mécanique et nécessité, le plus souvent, de résoudre des problèmes de géométrie tridimensionnelle en grandes déformations.

Un moyen conventionnel de caractérisation du comportement de ces matériaux renforcés consiste à utiliser des lois de comportement purement macroscopiques. Parmi ces lois macroscopiques on peut citer : i) les modèles purement phénoménologiques concernant soit des composites hyperélastiques à fibre [114], [115], [105], [56] soit des composites hyperélastiques à renforts particuliers [57], [72], [90] ; ii) les modèles macromoléculaires [36], [5] qui proposent de relier le comportement du matériau à la nature des réseaux de macromolécules le constituant. Bien qu'efficaces sur le plan des applications en terme de calculs de structures, ces modèles ne permettent pas de prendre en compte ni la nature des constituants ni les mécanismes d'endommagement mis en jeu à l'échelle de la microstructure.

Un moyen efficace pour estimer les bénéfices à espérer des opérations *d'hétérogénéisation*, consiste à mettre en œuvre une méthode d'homogénéisation, permettant de n'avoir à résoudre lors de

l'étape de dimensionnement optimal, que des problèmes posés sur un milieu homogène de comportement mécanique équivalent. L'ensemble des méthodes d'homogénéisation peuvent se répartir en deux groupes d'approches relativement distincts. D'une part les approches postulant une répartition périodique des renforts au sein de la matrice ([10], [111], [87], [116]), qualifiées de méthodes périodiques, et d'autre part les approches dédiées aux milieux à microstructure dite désordonnée ou aléatoire [86], [14], [16].

Dans le contexte des grandes déformations et de l'hyperélasticité, on pourra citer pour les méthodes périodiques les travaux de [104], [40], [23], [63], [64] etc.. L'inconvénient majeur des approches périodiques réside dans la complexité numérique induite par le couplage entre la méthode d'homogénéisation elle-même et les problèmes non linéaires induits par la nature des comportements mis en jeu. Cette complexité implique l'utilisation d'algorithmes spécifiques et le cas échéant de techniques de calcul parallèle afin de rendre le coût numérique de ces méthodes moins prohibitif [23]. Un moyen de pallier ce défaut consiste à utiliser des méthodes du second ordre qui réduisent de façon très conséquente les coûts de calcul induit [63]. Outre, ces difficultés numériques, il convient de noter que l'ensemble de ces méthodes nécessite bien entendu de supposer la répartition périodique des renforts au sein de la matrice. Cette hypothèse, licite dans les composites type stratifié ou unidirectionnel, est une hypothèse très forte dans le cas des matériaux élastomères renforcés compte tenu des méthodes d'élaboration de ceux-ci. Les approches aléatoires semblent, dans ces conditions, nettement plus appropriées du point de vue de la description de la microstructure.

L'homogénéisation non linéaire des milieux aléatoires est un domaine qui connaît depuis quelques décennies des avancées importantes. Le principe de base de ces méthodes est de procéder d'abord à une linéarisation du problème non linéaire puis de résoudre le problème linéaire correspondant en utilisant un ou des schémas d'homogénéisation linéaire dont on dispose. On distingue deux familles d'approches d'homogénéisation non linéaire : i) les approches dites "contraintes-déformations" dans lesquelles les relations constitutives sont prises en compte en affectant à chaque phase un comportement linéarisé associé à la déformation ou à la contrainte moyenne ou effective de la phase. On peut ranger dans cette catégorie les méthodes sécantes classiques ou modifiées [117] ou même l'approche incrémentale de Hill [54]. Pour une synthèse de différentes approches, on pourra se référer à [15], [16]. ii) les approches par potentiel, dédiées aux matériaux pour lesquels la réponse de chaque phase constitutive est déterminée à l'aide d'un potentiel unique. En dehors de cette limitation, cette seconde classe de méthodes offre un cadre mathématique rigoureux d'approches variationnelles [119] permettant de déterminer des bornes non linéaires pouvant prolonger les bornes linéaires disponibles (par exemple Voigt, Reuss et Hashin-Shtrikman). La méthode du second ordre, introduite par Ponte-Castañeda [99] rentre dans cette famille. Son extension aux composites hyperélastiques par Tiberio et Ponte-Castañeda [100] la rend particulièrement attractive pour notre étude.

Pour être complet, on mentionnera d'autres approches d'homogénéisation dédiées aux élasto-

mères chargés [50] et [91]. Du point de vue du concepteur des milieux qui font l'objet de ce mémoire, un autre point crucial à résoudre concerne à la fois la possibilité d'analyser les susceptibilités locales à l'endommagement des milieux et celles relatives à la simulation de la propagation de ces endommagements au sein de la structure. La plupart des travaux dédiés à la simulation de l'évolution de l'endommagement au sein de milieux élastomères se fondent sur une approche phénoménologique, autorisant, par exemple, l'étude de la croissance de porosités au sein de tels milieux ([42], [92]), ou la modélisation d'effets spécifiques, tels que l'adoucissement survenant au cours du premier cycle de chargement, connu sous le nom d'effet Mullins [113], [48] [49], [109] ou celui survenant lors d'un chargement de fatigue ou encore la modification de la compressibilité de ces milieux, due à l'endommagement [4], [108]). Malheureusement, la plupart du temps, ces travaux supposent que le milieu étudié est homogène et incompressible, et que la densité d'énergie qui décrit leur comportement ne dépend de l'endommagement que par l'intermédiaire d'un seul paramètre, qui, de surcroît, n'y apparaît que sous une forme linéaire. La généralisation de tels modèles à des cas compressibles et quasi-incompressibles ou à des milieux dont le volume élémentaire représentatif est de géométrie tridimensionnelle, du fait de la présence d'hétérogénéités, ou enfin à des milieux dont l'endommagement, expérimentalement observé, nécessite l'introduction de plusieurs paramètres d'endommagement, soulève bien évidemment d'importantes difficultés, comme par exemple l'interprétation physique des paramètres d'endommagement, la prise en compte de la nature hétérogène et non uniforme de la distribution des endommagements, . . .

C'est dans l'objectif de remédier à nombre de ces difficultés énumérées dans cette introduction qu'ont été engagées les recherches synthétisées dans ce mémoire. Ainsi, on se propose au cours des chapitres suivants de développer des modèles micro-macro permettant de :

- calculer le comportement homogène équivalent de milieux composites hyperélastiques dont les renforts sont répartis de façon aléatoire au sein de la matrice,
- valider l'approche mise en œuvre par comparaison d'une part avec des simulations numériques par éléments finis et d'autre part avec des données d'expériences réalisées dans le cadre de la thèse.
- modéliser l'endommagement de milieux élastomères et de composites élastomères.

A cet effet, le manuscrit comporte cinq chapitres qui permettent d'atteindre les objectifs préalablement cités. Après avoir présenté la nature des matériaux élastomères étudiés, ainsi que la manière dont le comportement de ces milieux est modélisé (cf. chapitre I), nous décrivons au chapitre II la méthode d'homogénéisation non linéaire, dite du second ordre, retenue pour l'étude ; les algorithmes de résolution requis pour la mise en œuvre de cette méthode sont présentés. Afin de fournir une évaluation rigoureuse et sans biais de la technique d'homogénéisation en hyperélasticité, nous réalisons au chapitre III une confrontation des prédictions du modèle à des simulations numériques par éléments finis, sur cellule. Conscients que ces vérifications nu-

mériques ne peuvent suffire à une validation complète de la méthode, nous avons entrepris de fabriquer des matériaux modèles constitués d'un élastomère (EPDM) et d'un renfort (PP), de réaliser des essais mécaniques et de confronter les prédictions du modèle d'homogénéisation aux résultats expérimentaux. Ces résultats sont détaillés dans le chapitre IV. Cette confrontation expérimentale a permis de mettre en évidence la nécessité de formuler une extension du modèle en y incorporant les phénomènes d'endommagement (cf. chapitre V).

Précisons enfin que ces travaux ont été réalisés dans le cadre d'une collaboration avec L'Indian Institute of Technology de New Delhi qui nous a fourni les matériaux nécessaires à la confrontation modèle/expériences.

Chapitre I

Caractéristiques et modélisation du comportement des matériaux élastomères

Au cours de ce chapitre, nous présenterons les principales caractéristiques des matériaux élastomères qui expliquent leurs nombreuses utilisations dans divers domaines industriels. Ainsi, avant de décrire le comportement mécanique de ces matériaux, nous nous attacherons à présenter le matériau en lui-même, c'est-à-dire son histoire ainsi que son procédé d'élaboration et ses principaux usages.

Nous introduirons ensuite la modélisation du comportement de ces matériaux en rappelant, les concepts de base de la Mécanique des Milieux Continus en grandes transformations. Puis, nous décrirons le cadre thermodynamique dans lequel s'inscrivent les lois de comportement hyperélastiques considérées dans ce travail.

Le chapitre s'achèvera sur une présentation rapide de la problématique de la thèse, c'est-à-dire, la modélisation du comportement macroscopique des matériaux composites hyperélastiques. Pour des raisons qui seront précisées, le choix de modélisation s'est tourné vers une approche micromécanique qui fera l'objet des chapitres qui suivent.

I.1 Caractéristiques principales des élastomères

Les élastomères font partie de la famille des polymères et désignent aujourd'hui, d'une façon générale, tous les caoutchoucs, naturels ou synthétiques, possédant l'élasticité caoutchoutique. Cette substance, que l'on manipule aujourd'hui très couramment au travers de diverses applications industrielles, est le fruit d'une longue histoire.

I.1.1 Généralités sur les élastomères

I.1.1.1 Du caoutchouc naturel aux caoutchoucs synthétiques

L'histoire des élastomères commence par celle du "caoutchouc naturel" qui était déjà connu des Mayas avant l'arrivée des premiers espagnols en Amérique centrale au 16^{ème} siècle. Le mot caoutchouc est né de l'union de deux mots indiens : "cao" et "tchu", qui ensemble signifient "bois qui pleure". Car, étonnamment, le caoutchouc est un produit naturel qui se présente sous la forme d'un liquide d'apparence laiteuse, appelé latex. Le latex est présent dans une grande variété de plantes mais toutes ne sont pas susceptibles d'être exploitées industriellement. La plus importante de ces plantes productrices de latex est l'*hevea brasiliensis*, arbre originaire du Brésil.



Après la première découverte au 16^{ème} siècle de ce que l'on appelle aujourd'hui "caoutchouc", il a fallu attendre 1736 pour que deux français, Charles Marie La Condamine d'abord, François Fresneau ensuite, s'intéressent à cette substance élastique et mènent les premières études scientifiques. Cependant, l'utilisation du caoutchouc resta limitée en raison de sa sensibilité au froid (il fige) et à la chaleur (il devient visqueux).

Après de nombreuses recherches scientifiques menées tout au long du 18^{ème} siècle, c'est en 1823 que l'utilisation du caoutchouc pris un certain essor pour la fabrication de tissus imperméables, après la découverte par Charles Macintosh d'un procédé d'imperméabilisation des tissus par dissolution du caoutchouc dans un solvant : le benzol.

Cependant, le problème de la stabilité thermique de cette matière resta entier jusqu'à la mise au point du procédé de vulcanisation au soufre découvert par Goodyear en 1839, auquel il faut associer les travaux de Hancock concernant la mastication pour justifier le véritable essor de l'industrie du caoutchouc. Ainsi, toute une gamme d'élastomères fut déclinée : du plus souple au plus rigide, du plus translucide au plus opaque, du plus élastique ou plus amortissant, et ceci grâce à l'ajout de différents types de charges et adjuvants au caoutchouc de base. A partir de ce moment, la production connut une croissance importante et l'utilisation du caoutchouc ne cessa de croître - en particulier grâce au développement de la bicyclette et de l'automobile.

Une autre découverte importante est celle faite en 1860 par un chimiste britannique Charles Hanson Williams qui démontra que le caoutchouc naturel est un polymère de l'isoprène. C'est-à-dire une substance constituée de grandes molécules formées par la répétition d'un même motif composé d'une ou de plusieurs unités de base, monomères, en l'occurrence l'isoprène pour le caoutchouc naturel. Ainsi, la fabrication de caoutchoucs synthétiques devint possible : premier brevet déposé par le chimiste allemand F.Hofmann en 1906. L'essor de cette industrie survint

pendant la seconde guerre mondiale lorsque les plantations d'Hevea d'Extrême-Orient passèrent aux mains des japonais. Ainsi, les américains et canadiens, pour palier cet arrêt de leur approvisionnement en caoutchouc naturel, créèrent un programme de fabrication de caoutchoucs synthétiques pouvant remplacer le caoutchouc naturel vulcanisé qui possède des propriétés devenues indispensables : résistance à la traction, résistance au déchirement, rebond élastique, résistance à la fatigue et à la chaleur.

Si les propriétés du caoutchouc naturel justifient sa large utilisation industrielle, les caoutchoucs synthétiques, qui ont des propriétés au moins équivalentes, permettent d'élargir les champs d'application de ces matériaux.

I.1.1.2 Procédé d'élaboration

Avant de devenir un matériau industriel performant qui pourra être mis en forme, le caoutchouc naturel, ou synthétique, subit différentes étapes qui sont décrites ci-dessous.

– DE L'ARBRE À LA GOMME

Alors que le caoutchouc de synthèse est obtenu industriellement, le caoutchouc naturel requiert une phase préliminaire. En effet, le caoutchouc naturel n'est pas un matériau prêt à l'emploi, il nécessite diverses opérations de préparation avant de pouvoir être utilisé industriellement. En effet, il est obtenu à partir du latex, extrait de l'Hevea, qui se présente sous la forme d'un liquide d'apparence laiteuse qui est un sérum aqueux contenant des substances minérales et organiques dans lequel des particules de caoutchouc sont dispersées. L'extraction du caoutchouc du latex est faite par un traitement à l'acide qui permet la coagulation des particules de caoutchouc. On obtient une masse spongieuse qui est alors laminée, lavée et séchée en plaques.



FIG. I.1 - Morceau de caoutchouc naturel cru

– FORMULATION ET MÉLANGEAGE

L'opération de mélangeage a pour but d'incorporer à la gomme crue, de caoutchouc naturel ou d'un polymère synthétique, l'ensemble des additifs qui vont lui conférer les propriétés mécaniques et chimiques souhaitées. Les additifs sont déterminés en fonction de l'application future du matériau. Ainsi, plus de vingt catégories de produits entrent dans la formulation d'une "re-

cette” de caoutchouc : gomme naturelle ou synthétique, agents de cuisson pour la vulcanisation (principalement le soufre), charges (par exemple une poudre de noir de carbone), agents de mise en œuvre (par exemple des plastifiants) et autres ingrédients tels que accélérateurs de cuisson, pigments, antidégradants...

Le mélange des matières premières est une étape fondamentale de la production de caoutchouc car, s’il est bien fait, il permet d’obtenir une masse de caoutchouc homogène répondant aux propriétés exigées.

– MISE EN FORME

Une fois le mélange obtenu, il est mis en forme avant l’opération de cuisson (vulcanisation). Les procédés de mise en forme souvent utilisés sont :

- le moulage : différents modes de moulage existent (compression, transfert et injection)
- l’extrusion : procédé utilisé pour l’obtention de profilés
- le calandrage : il permet l’obtention de plaques minces

I.1.1.3 Catégories et composition des élastomères

Tous les caoutchoucs ne présentent pas des propriétés identiques. Leurs structures chimiques (compositions) déterminent en grande partie leurs propriétés. Ainsi, la performance d’un produit élastomérique passe d’abord par une sélection adéquate du caoutchouc de base en fonction de son utilisation future.

Le caoutchouc naturel vulcanisé (NR) est considéré comme un matériau à usage général. Ses propriétés sont considérées comme intéressantes, ce qui en fait un élastomère de choix dans diverses applications et ce à moindre coût.

Les caoutchoucs synthétiques se divisent en 3 grandes catégories :

- **les caoutchoucs à usages généraux** qui visent d’une façon générale à remplacer le caoutchouc naturel dans toutes ses applications courantes. Les plus importants d’entre eux sont les SBR (Styrene Butadiene Rubber) qui sont très utilisés dans la fabrication des bandes de roulement des pneumatiques.
- **les caoutchoucs à usages spéciaux** qui eux ne visent pas à remplacer le caoutchouc naturel dans tous ses usages, soit parce qu’ils n’ont pas toutes les qualités techniques, soit parce que leurs coûts sont trop élevés. Ces caoutchoucs sont caractérisés par des propriétés spécifiques plus performantes telles que les résistances aux huiles (nitrile), l’impermeabilité aux gaz (butyle) ou la résistance à l’ozone (Ethylene Propylene Diene Monomere (EPDM)), pour sa résistance au vieillissement, à la chaleur et ses propriétés adhésives (le polychloroprène (CR)).
- **les caoutchoucs à usages très spéciaux** qui se distinguent par leur excellente résistance à la chaleur, au vieillissement ou aux huiles. Ils conservent l’essentiel de leurs propriétés à des températures élevées. Ils sont cependant coûteux et ne sont utilisés que dans des applications

très spécifiques tels les joints, les tubes et autres produits soumis à de hautes températures. Font partie de cette classe, les polyuréthanes, silicones, fluoropolymères et les fluoroélastomères.

Une fois choisi l'élastomère qui convient le mieux à l'application visée, on peut encore en améliorer les propriétés mécaniques (notamment contrainte à rupture) mais également chimiques (vieillessement) par **adjonction de charges** (particules ou fibres). L'utilisation d'un seul type de charge ne permettant pas d'optimiser l'ensemble des caractéristiques, des charges de différentes natures peuvent être utilisées. En effet, on peut classer les charges en deux catégories distinctes : les charges actives et les charges inactives. Les charges actives ont, contrairement aux inactives, un effet renforçant marqué sur le comportement du matériau.

Enfin, d'autres additifs peuvent être considérés tels que des plastifiants, qui vont faciliter les procédés de mise en forme, ou encore des agents de protection, dont le but est d'éviter tout vieillissement prématuré de l'élastomère.

I.1.2 Propriétés mécaniques des élastomères

Les élastomères, à température ambiante, peuvent subir de grandes déformations pour de relativement faibles contraintes tout en restant dans le domaine quasi-élastique. On qualifie ce comportement d'hyperélastique. Nous présenterons ci-dessous en quoi la structure macromoléculaire des élastomères et la vulcanisation jouent un rôle sur les caractéristiques de ce comportement, la modélisation de celui-ci sera traité dans la section suivante (I.2).

I.1.2.1 Structure macromoléculaire et vulcanisation

Comme nous l'avons déjà évoqué, les élastomères font partie de la grande famille des polymères. Ils possèdent des propriétés spécifiques comme une certaine souplesse, une capacité à supporter les grandes déformations et une élasticité. D'un point de vue moléculaire, les élastomères sont constitués de longues chaînes macromoléculaires qui sont, au repos, repliées en "pelote statistique" (voir figure I.2) dans laquelle on ne distingue aucun ordre à grande échelle. Les pelotes correspondant à des chaînes voisines étroitement imbriquées et enchevêtrées. On qualifie cette structure d'état amorphe, par opposition à l'état cristallin. Cependant, un élastomère peut adopter une structure semi cristalline lorsqu'il se trouve à une température inférieure à ce que l'on appelle température de transition vitreuse (T_g). Un autre phénomène que l'agitation thermique (température) peut changer la conformation moyenne des chaînes, il s'agit de sollicitations extérieures. Sous l'effet de ces sollicitations, les chaînes enchevêtrées avec leurs voisines résistent élastiquement aux contraintes imposées. Cette élasticité est purement entropique : les chaînes, initialement pelotonnées, sont étirées. On passe donc à un état plus ordonné de la matière, l'entropie diminue. Les chaînes cherchent alors à maximiser leur entropie et opposent une résistance aux sollicitations extérieures. Néanmoins, au-delà d'un certain seuil, les chaînes vont glisser les unes par rapport aux autres. Le matériau cru n'est donc pas stable. Ainsi, une fois la contrainte relâchée, le retour à l'état initial nécessite un temps infini ; c'est pourquoi l'étape de

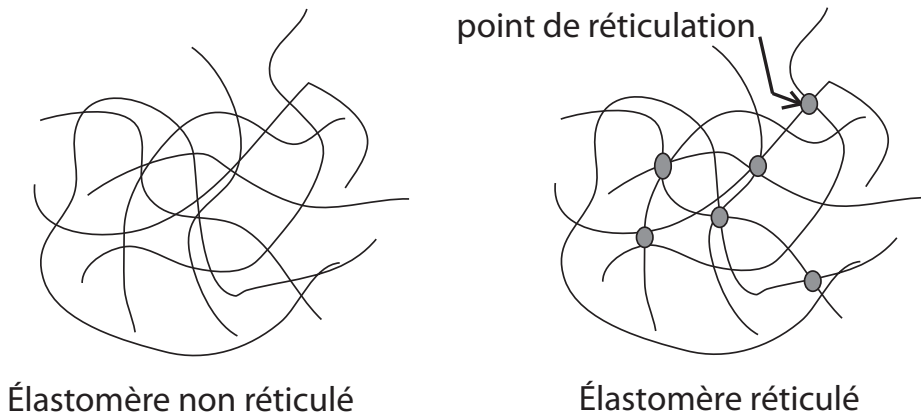


FIG. I.2 - Schématisation d'une pelote statistique

réticulation, appelée vulcanisation lorsqu'elle est faite au soufre, a été introduite pour créer un réseau tridimensionnel stable (voir figure I.2) qui favorise ce qu'on appelle le rebond élastique. La réticulation est la formation de liaisons covalentes (liaison entre deux atomes par partage le plus souvent d'une paire d'électrons) entre les différentes chaînes du polymère, qui les réunit en une seule molécule en réseau. Quand les chaînes de polymères sont réunies de cette façon, il est très difficile de les tirer hors de leur position d'origine, et l'échantillon reprend d'autant mieux sa forme d'origine. Il convient de noter que le taux de réticulation (nombre de liaisons créées) pilote le comportement global du matériau. L'influence de ce taux sur les propriétés mécaniques est résumée sur la figure (I.3).

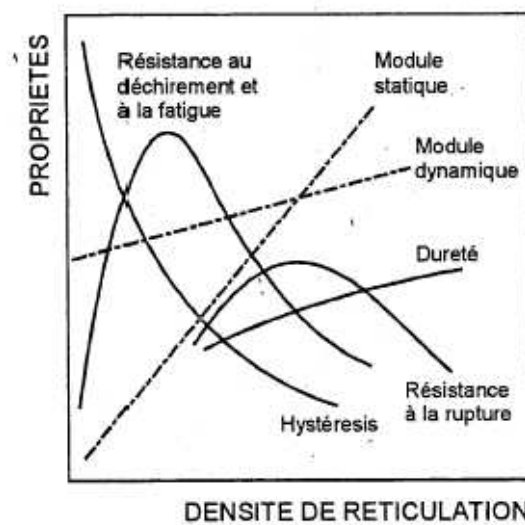


FIG. I.3 - Taux de réticulation et propriétés mécaniques [22]

Revenons maintenant à une autre caractéristique des élastomères : la température de transition vitreuse T_g . Elle correspond au passage d'un état hors équilibre, caoutchoutique, à un état d'équilibre, vitreux. T_g est fortement dépendante des interactions développées et de leur intensité. La figure (I.4) représente l'évolution de la rigidité d'un polymère avec la température. On observe que les élastomères ont une température de transition vitreuse bien inférieure à la température ambiante d'où leur comportement caoutchoutique.

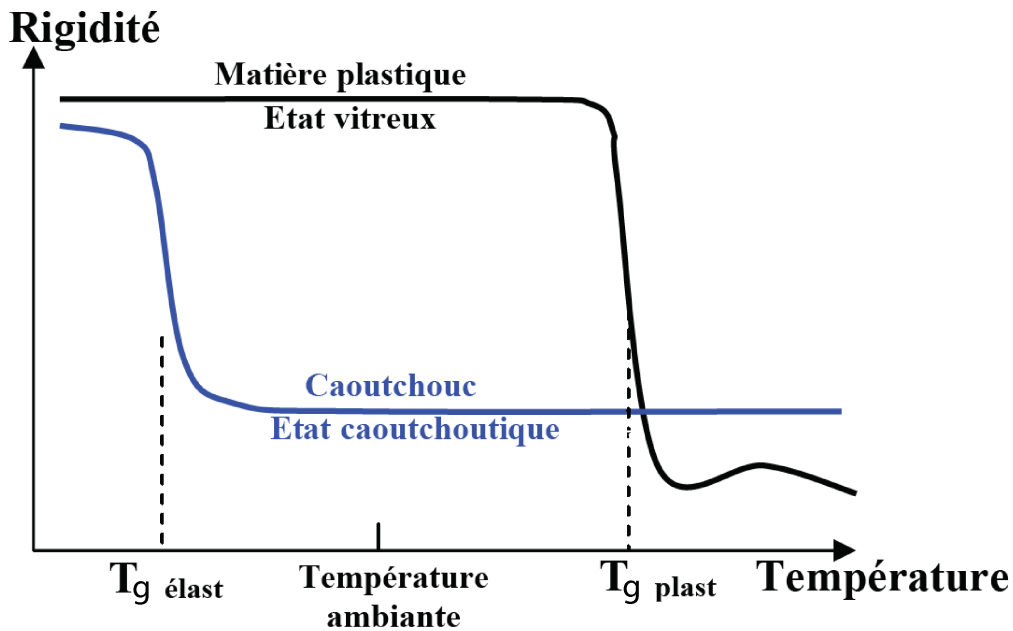


FIG. I.4 - Classification des polymères selon leur température de transition vitreuse

I.1.2.2 Le comportement hyperélastique des élastomères

Malgré la diversité des élastomères utilisés (NR, SBR, EPDM...) et la multitude de formulations suivant les propriétés chimiques et/ou mécaniques souhaitées, les comportements obtenus demeurent cependant très caractéristiques. La figure I.5 représente une courbe typique contrainte-déformation d'un élastomère lors d'un chargement monotone. On observe bien le caractère non linéaire du comportement de ce matériau avec des changements de courbure. Aux grands allongements, la courbe s'incurve rapidement (domaine III) traduisant une rigidification importante. Le domaine II illustre une autre caractéristique de ces matériaux : une rigidité faible conduisant à des allongements très importants (jusqu'à 7 fois la longueur initiale de l'éprouvette) sous de faibles charges.

Le comportement ne peut être approximé par une loi de comportement linéaire, telle que la loi de Hooke, qu'aux très petits allongements (domaine I).

Le comportement des élastomères est qualifié d'élastique non linéaire en grandes déformations,

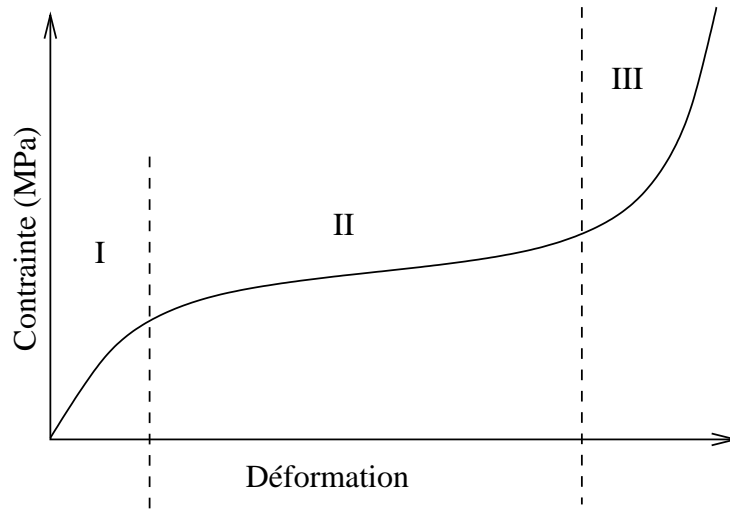


FIG. I.5 - Courbe typique contrainte-déformation d'un élastomère

en raison de son élasticité et de la variation de rigidité. On parle alors d'hyperélasticité ce qui nécessite de se placer dans un contexte de grandes déformations avec des lois de comportement adaptées. Nous rappellerons donc dans la section I.2 la cinématique utilisée dans ce contexte ainsi que les grandeurs mécaniques pertinentes et le formalisme thermodynamique conduisant à la formulation de lois constitutives en hyperélasticité.

Dans la plupart des cas de chargement, les variations de volume sont faibles ([3], [67]) mais souvent non négligeables. Ainsi, par la suite, nous supposerons le comportement des milieux élastomères comme compressible ou quasi-incompressible.

Une autre caractéristique des élastomères est qu'ils sont isotropes ou considérés comme tels, bien que de récents travaux ont montré que le comportement mécanique des matériaux élastomères peut être anisotrope ([67], [24], [36], [35]), soit en raison du processus de fabrication (anisotropie primaire) ou soit comme une conséquence de l'histoire du chargement (anisotropie induite).

I.1.2.3 Caractéristiques du comportement cyclique des élastomères

Nous venons de présenter le comportement purement hyperélastique d'un élastomère mais il convient de noter que sous chargement cyclique les élastomères possèdent d'autres caractéristiques qui leur sont propres. Ainsi, nous allons maintenant nous attacher à leur description à travers la courbe de la figure I.6 qui représente la réponse d'un élastomère à un chargement cyclique de traction uniaxiale avec variation de la déformation maximale imposée.

i. Hystérésis charge-décharge ou comportement visco-élastique

Comme le montre la figure I.6, au cours d'un même cycle de chargement, on constate la présence d'un hystérésis entre charge et décharge qui est en majeure partie caractéristique des phénomènes de viscosité des milieux élastomères. On remarque que cet hystérésis entre charge et décharge est bien plus important au cours du premier cycle qu'au cours des cycles suivants. Cependant, l'hystérésis au cours du second cycle n'en demeure pas moins non négligeable.

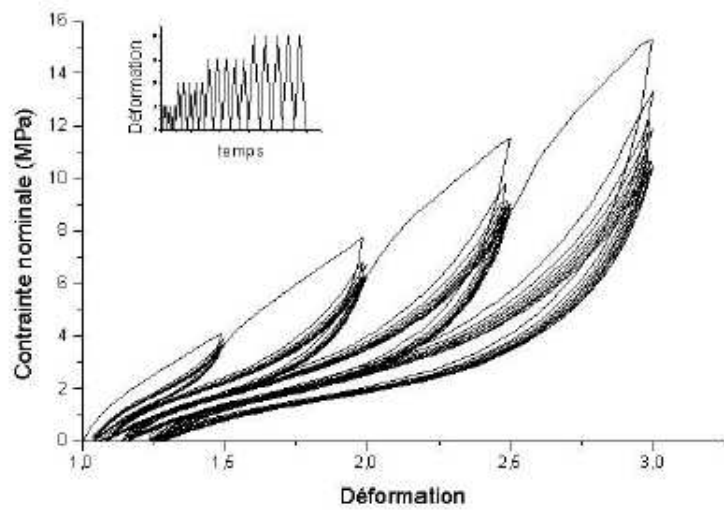


FIG. I.6 - Chargement cyclique de traction uniaxiale avec variation de la déformation maximale imposée [24]

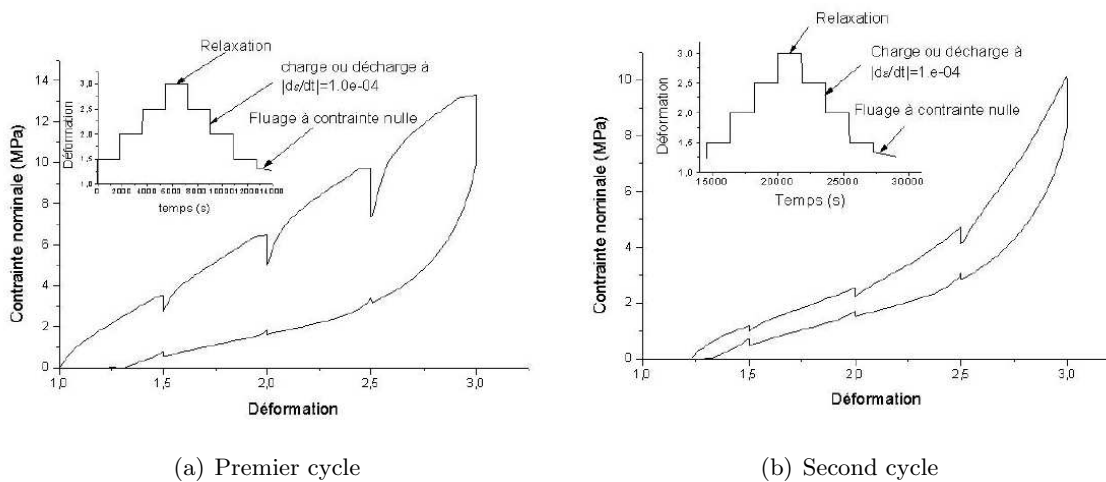


FIG. I.7 - Cycles de traction uniaxiale alternée sur un caoutchouc naturel renforcé par des particules de noir de carbone [24]

Toutefois, on peut montrer [35] que la sur-contrainte induite par la contribution visqueuse du comportement affecte principalement la phase de charge comme le montrent les figures I.7(a) et I.7(b) qui représentent respectivement le premier et second cycle d'un essai de traction uniaxiale alternée au cours duquel sont effectués des paliers de relaxation d'une heure pour permettre la dissipation de la contrainte visqueuse. Ainsi, afin de s'intéresser uniquement au comportement hyperélastique sans prendre en compte la contribution visqueuse, il est possible [24] de ne considérer que la phase de décharge car elle ne présente pas, ou peu, de viscosité.

ii. Phénomène d'adoucissement

On observe également sur la figure I.6 que lorsqu'on soumet un élastomère à un chargement cyclique, la contrainte à un cycle donné pour atteindre le même niveau de déformation qu'au cycle précédent est toujours plus faible. Ce phénomène est appelé adoucissement. Il apparaît aussi bien dans les élastomères purs que dans les élastomères chargés. Cependant, il est nettement plus prononcé dans les élastomères chargés (Bouasse et Carrière, [18]).

La chute de contrainte d'un cycle à l'autre ne suffit pas à définir le phénomène d'adoucissement. En effet, on distingue deux types de chute de contrainte lors d'un chargement cyclique : la première, très importante, apparaît entre les charges des premier et deuxième cycles pour une déformation maximale imposée et traduit un phénomène d'endommagement fort aux cours des deux premiers cycles ; la seconde apparaît entre chaque cycle et est d'intensité beaucoup plus faible.

A ce titre, Miehe [81], à partir d'observations expérimentales sur des essais cycliques à déformation maximale imposée, suggéra que la modélisation de l'adoucissement faisait intervenir deux types d'endommagement :

– *Endommagement discontinu (Effet Müllins)*

Ce type d'endommagement, communément appelé effet Müllins, ne dépend, dans le cas de la traction uniaxiale, que de l'élongation maximale vue par le matériau au cours de son histoire. Il caractérise la chute de contrainte entre les premier et deuxième cycles à même niveau de déformation imposé.

Ainsi, on représente, sur la figure I.8, l'effet Müllins dans le cas d'un matériau idéal c'est-à-dire sans phénomène viscoélastique ou de dépendance à la vitesse de déformation.

On peut alors décrire l'effet Müllins, pour ce matériau idéal, de la manière suivante :

le matériau est chargé jusqu'à un premier niveau de déformation 1 (courbe 1) puis, il est déchargé jusqu'à déformation nulle, la réponse en décharge emprunte un autre chemin (courbe 2). Si on recharge le matériau jusqu'à un niveau de déformation inférieur au niveau maximal 1 déjà atteint puis on le décharge, alors il se comporte de manière totalement élastique et emprunte toujours le même chemin (courbe 2). En revanche, s'il est chargé

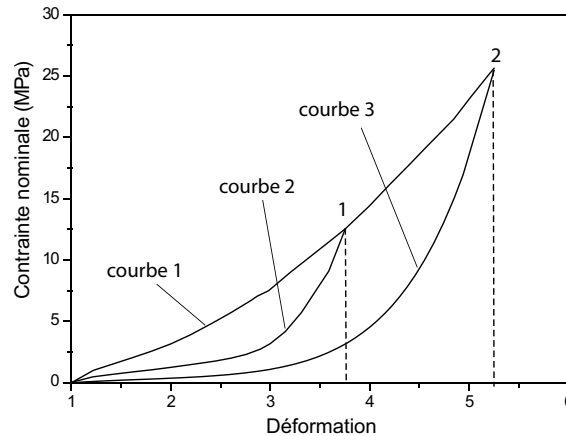


FIG. I.8 - schématisation de l'effet Mullins idéalisé

jusqu'à une déformation supérieure à la déformation maximale 1 déjà atteinte, la réponse du matériau suit la courbe 2 entre l'origine et cette valeur maximale 1 puis réemprunte la courbe 1 jusqu'au nouveau niveau de déformation maximale 2. Ensuite, lorsque le matériau est déchargé, sa réponse emprunte la courbe 3.

Ce phénomène a été observé pour la première fois par Bouasse et Carrière [18] mais il doit son nom à Müllins [84], [83] qui l'a étudié plus en détails.

– *Endommagement continu (cumul d'endommagement)*

Ce phénomène d'accumulation d'endommagement dépend de toute l'histoire de la déformation vue par le matériau et représente la chute de contrainte au cours du chargement cyclique au delà des deux premiers cycles.

Cet endommagement est cumulatif par le fait que chaque chargement, à un niveau de déformation maximale imposé, induit un endommagement qui amoindrit le niveau de contrainte au cycle suivant, comme le montre la figure I.9 où les décharges des différents cycles sont représentées. Notons que ce phénomène d'adoucissement est faible pour les matériaux non chargés et qu'il est beaucoup plus important pour les matériaux chargés (Bouasse et Carrière, [18]).

iii. Interprétations physiques des phénomènes d'adoucissement

Il n'y a pas d'explications unanimes aux deux phénomènes d'adoucissement précédemment décrits. Ainsi, plusieurs explications ont été proposées : Müllins ([83]) a suggéré que l'adoucissement serait dû au désenchevêtrement des chaînes macromoléculaires, ce qui entraînerait une destruction des interactions entre les particules et la matrice. D'autres auteurs, comme Bueche [27] et Govindjee & Simo ([48], [49]) pensent que les chaînes, étirées à leur longueur maximale, se rompraient ou se détacheraient de la surface des charges.

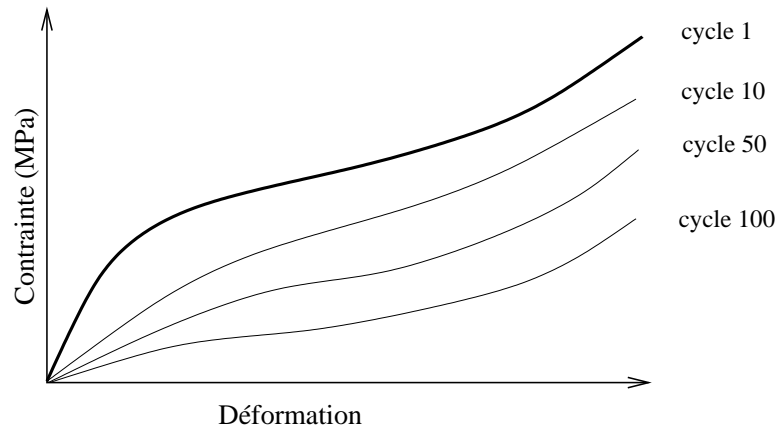


FIG. I.9 - schématisation de l'endommagement continu uniquement sur les décharges

Néanmoins, l'adoucissement est généralement relié à de l'endommagement. De plus, les chaînes ne possédant pas toutes la même longueur, elles se rompraient à différents niveaux de déformation, ce qui expliquerait le caractère continu de l'adoucissement pour sa part cumulative.

I.2 Modélisation du comportement mécanique hyperélastique des élastomères

Comme nous l'avons vu en I.1.2.2, la modélisation du comportement des élastomères nécessite de se placer dans le cadre des grandes déformations. C'est la raison pour laquelle on va s'attacher ici à rappeler la description du mouvement des milieux continus. Les grandeurs mécaniques pertinentes pour la modélisation d'un comportement hyperélastique avec ou sans prise en compte de l'endommagement seront présentées.

I.2.1 Quelques brefs rappels sur la Mécanique des milieux continus en grandes déformations

On considère une structure \mathcal{B} qui occupe à l'instant initial un domaine Ω_0 de \mathbb{R}^3 ; à cet instant initial, l'état est supposé naturel, c'est-à-dire libre d'effort. De manière classique, cette configuration Ω_0 sera par la suite nommée configuration de référence.

Soumise à des sollicitations mécaniques, la structure \mathcal{B} va se déformer et occuper à l'instant courant un nouveau domaine Ω de \mathbb{R}^3 (voir figure I.10). Ce domaine Ω est lié à la configuration actuelle ou déformée.

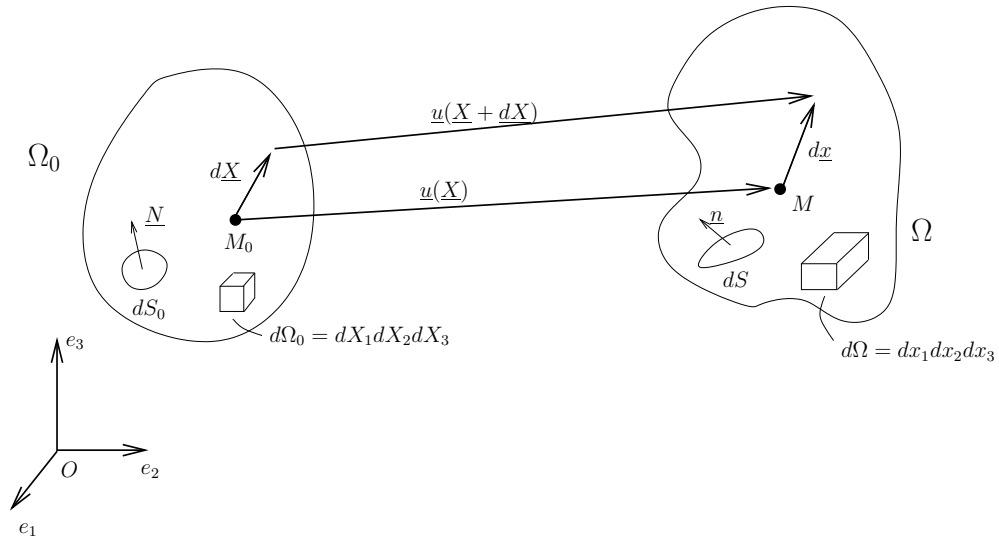


FIG. I.10 - Configurations de référence et déformée

I.2.1.1 Cinématique des milieux continus

i. Description du mouvement

Une particule de la structure \mathcal{B} occupe dans la configuration de référence Ω_0 , le point M_0 repéré dans un repère d'espace orthonormé $\mathcal{R} = (O, \underline{e}_1, \underline{e}_2, \underline{e}_3)$ par le vecteur position $\underline{OM}_0 = \underline{X}$. On peut définir \underline{X} par ses coordonnées (X_1, X_2, X_3) dans \mathcal{R} . Avec le temps, ces coordonnées sont dites lagrangiennes et la configuration de référence est également nommée configuration lagrangienne. Cette même particule occupe dans la configuration déformée Ω , le point M repéré dans \mathcal{R} par le vecteur position $\underline{OM} = \underline{x}$ de coordonnées (x_1, x_2, x_3) . Les coordonnées de M sont dites eulériennes, et Ω est la configuration eulérienne ou configuration physique, car c'est la configuration qui traduit la déformation réelle de la structure \mathcal{B} lorsque celle-ci est soumise à des sollicitations mécaniques.

La relation permettant de relier la configuration de référence Ω_0 et une configuration déformée Ω à un instant t fixé est donnée classiquement par la transformation φ :

$$\underline{x} = \varphi(\underline{X}, t) \quad (\text{I.1})$$

où la fonction vectorielle φ qui permet de passer de Ω_0 à Ω est une fonction bijective et inversible en \underline{X} .

Il est habituel d'introduire le vecteur déplacement $\underline{u}(\underline{X}, t)$, c'est-à-dire d'écrire (I.1) sous la forme équivalente :

$$\underline{x}(\underline{X}, t) = \underline{X} + \underline{u}(\underline{X}, t) \quad (\text{I.2})$$

Mais, contrairement au cadre des petites perturbations (HPP), le déplacement ne pourra pas être supposé petit et on ne pourra pas assimiler la configuration de référence et la configuration déformée. C'est là une des difficultés en grandes déformations. En effet chaque équation devra être écrite dans l'une ou l'autre des deux configurations. De même, chaque grandeur sera définie soit dans Ω_0 soit dans Ω .

ii. Tenseurs des déformations

Les notations précédemment introduites permettent de définir la notion de déformation. Ainsi, soient $d\underline{X}=(dX_1, dX_2, dX_3)$ un vecteur infinitésimal au point M_0 et $d\underline{x}=(dx_1, dx_2, dx_3)$ son transporté au point M. Il vient :

$$d\underline{x} = \mathbf{F}(\underline{X}, t).d\underline{X} \quad \text{avec} \quad \mathbf{F} = \mathbf{Grad}_{\underline{X}}(\varphi)$$

ou en notation indicielle (I.3)

$$dx_i = \frac{\partial \varphi_i}{\partial X_j} dX_j \quad \text{avec} \quad \mathbf{F}_{ij} = \frac{\partial \varphi_i}{\partial X_j}$$

où $\mathbf{Grad}_{\underline{X}}$ est l'opérateur gradient par rapport aux variables lagrangiennes d'espace X_1, X_2 et X_3 et où l'on utilise la convention de sommation sur les indices répétés.

\mathbf{F} est le tenseur gradient de la transformation au point M_0 , il n'est ni lagrangien ni eulérien. Il traduit la déformation de la structure \mathcal{B} qui, soumise à une sollicitation donnée, est passée d'un état initial Ω_0 à un état déformé Ω . De même, si l'on utilise le vecteur déplacement \underline{u} d'une particule, de M_0 à M, précédemment défini en (I.2), alors le tenseur gradient de la transformation \mathbf{F} est donné par :

$$\mathbf{F} = \mathbf{1} + \mathbf{Grad}_{\underline{X}}(\underline{u}) \quad \left(F_{ij} = \delta_{ij} + \frac{\partial u_i}{\partial X_j} \right) \quad \text{(I.4)}$$

où $\mathbf{1}$ est le tenseur identité d'ordre 2.

Ce tenseur \mathbf{F} ne peut être quelconque. En effet, en utilisant le principe de conservation de la masse et en notant par J le jacobien de la transformation de Ω_0 dans Ω , on a :

$$J = \det \mathbf{F}$$

$$\int_{\Omega_0} \rho_0 d\Omega_0 = \int_{\Omega} \rho d\Omega = \int_{\Omega_0} \rho J d\Omega_0$$

où $\det \mathbf{F}$ est le déterminant de \mathbf{F} , ρ la masse volumique de Ω et ρ_0 la masse volumique de Ω_0 . Les masses volumiques ρ et ρ_0 étant des quantités strictement positives, on en déduit :

$$J = \det \mathbf{F} > 0, \quad \det \mathbf{F} = \frac{\rho_0}{\rho} \quad \text{(I.5)}$$

Enfin, à partir de ce tenseur gradient de la transformation, on introduit classiquement des tenseurs dérivés qui sont utilisés pour formuler les lois de comportement, comme par exemple : le tenseur symétrique des dilatations ou de Cauchy-Green droit \mathbf{C} , dans la configuration de référence, défini par :

$$\mathbf{C} = \mathbf{F}^t \cdot \mathbf{F} \quad (\text{I.6})$$

où \mathbf{F}^t est la transposée de \mathbf{F} ou encore dans la configuration déformée le tenseur de Cauchy-Green gauche \mathbf{B} , défini par :

$$\mathbf{B} = \mathbf{F} \cdot \mathbf{F}^t \quad (\text{I.7})$$

Pour plus de précisions sur la définition de ces quantités cinématiques le lecteur pourra consulter par exemple Ogden [89] et Ciarlet [31].

I.2.1.2 Tenseurs des contraintes et équations d'équilibre

i. Différents tenseurs de contraintes

Une fois les grandeurs cinématiques définies, il convient de préciser les grandeurs mécaniques traduisant la notion d'effort.

Ainsi, comme en petites déformations, on définit dans la configuration Eulérienne le vecteur contrainte \underline{T}_n tel que $d\underline{f} = \underline{T}_n dS$. Ce vecteur contrainte caractérise les efforts intérieurs de cohésion exercés sur une partie du solide à travers un élément de surface dS de normale extérieure \underline{n} . En un point donné M, le théorème de Cauchy permet d'écrire une dépendance linéaire entre \underline{T}_n et \underline{n} :

$$d\underline{f} = \underline{T}_n(M, \underline{n}) dS = \boldsymbol{\sigma}(M) \cdot \underline{n} dS \quad (\text{I.8})$$

où l'on a introduit le tenseur de contraintes de Cauchy $\boldsymbol{\sigma}$, tenseur de nature eulérienne.

Comme en grandes déformations la configuration déformée n'est pas connue, il est souvent plus simple de transporter ce tenseur $\boldsymbol{\sigma}$ dans la configuration initiale, ce qui conduit à définir d'autres tenseurs de contraintes.

Dans un premier temps, si on choisit de considérer l'élément de surface dS_0 dans Ω_0 plutôt que dans Ω , il vient alors (par la formule de transport des éléments de surface) :

$$d\underline{f} = \boldsymbol{\sigma}(M) \cdot (J\mathbf{F}^{-t} \cdot \underline{N}) dS_0 = \mathbf{T}\underline{N} dS_0 \quad (\text{I.9})$$

où \underline{N} est la normale extérieure unitaire à dS_0 .

On définit ainsi un nouveau tenseur de contraintes \mathbf{T} : le premier tenseur de Piola-Kirchhoff ou tenseur de Boussinesq. Ce tenseur est qualifié de tenseur "mixte" car il fait intervenir des

quantités lagrangiennes dS_0 et \underline{N} et eulériennes $d\underline{f}$. Il peut être relié au tenseur des contraintes de Cauchy par :

$$\mathbf{T} = J \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{F}^{-t} \quad (\text{I.10})$$

où $J = \det \mathbf{F}$ et \mathbf{F}^{-t} est l'inverse de la transposée de \mathbf{F} .

On peut également définir dans la configuration de référence Ω_0 , le second tenseur des contraintes de Piola-Kirchhoff ou tenseur de Piola-Lagrange, $\boldsymbol{\Sigma}$, défini uniquement à partir des quantités lagrangiennes, tel que :

$$d\underline{f}_0 = \mathbf{F}^{-1} \cdot d\underline{f} = \boldsymbol{\Sigma} \cdot \underline{N} dS_0 \quad (\text{I.11})$$

où $d\underline{f}_0$ est le vecteur des efforts intérieurs de cohésion dans la configuration de référence.

La relation entre ces trois tenseurs de contraintes est la suivante :

$$\boldsymbol{\Sigma} = \mathbf{F}^{-1} \cdot \mathbf{T} = J \mathbf{F}^{-1} \cdot \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{F}^{-t} \quad (\text{I.12})$$

En conclusion, on dispose des trois tenseurs les plus souvent utilisés pour caractériser l'état de contrainte au sein d'une structure en fonction du système de coordonnées retenu :

- dans le système de coordonnées eulériennes : le tenseur des contraintes de Cauchy $\boldsymbol{\sigma}$ (I.8) qui est symétrique.
- dans le système de coordonnées lagrangiennes : le second tenseur des contraintes de Piola-Kirchhoff $\boldsymbol{\Sigma}$ (I.11) qui est également symétrique mais qui a peu de sens physique. En effet, il est impossible de déterminer directement les efforts $d\underline{f}_0$ dans la configuration de référence.
- le premier tenseur des contraintes de Piola-Kirchhoff \mathbf{T} (I.10) qui est un tenseur mixte non symétrique et également dépourvu de sens physique dans la mesure où il est déterminé à partir de quantités d'une part Lagrangienne et d'autre part Eulérienne.

Signalons enfin, que dans le cadre de l'hypothèse des petites perturbations, ces trois tenseurs de contraintes s'identifient au premier ordre.

ii. Les équations d'équilibre

La modélisation des efforts conduit, en utilisant le principe fondamental de la dynamique, aux équations du mouvement qui gouvernent la réponse de la structure \mathcal{B}^1 . Si l'on désigne par $\underline{V}(\underline{x}, t)$ la vitesse eulérienne d'une particule $M \in \Omega$, alors la quantité de mouvement d'un volume élémentaire quelconque $\omega \subset \Omega$ (configuration déformée) est :

$$\int_{\omega} \rho \underline{V}(\underline{x}, t) d\omega \quad \text{où } \rho \text{ est la masse volumique en un point quelconque } M \in \omega \subset \Omega.$$

¹ Cette modélisation peut être entièrement introduite à partir du principe des puissances virtuelles [110]

La schématisation classique des efforts indique que les forces agissant sur ω sont de deux types :

- les efforts volumiques $\underline{f}_v(\underline{x})$ imposés à l'ensemble de ω ,
- les densités surfaciques d'efforts internes $\underline{T}_n(\underline{x}, t, \underline{n})$ imposées sur le bord $\partial\omega$ de ω , \underline{n} étant la normale extérieure unitaire à $\partial\omega$ au point M.

La résultante de ces efforts est donnée par :

$$\int_{\omega} \underline{f}_v(\underline{x}) d\omega + \int_{\partial\omega} \underline{T}_n(\underline{x}, t, \underline{n}) dS$$

Le principe fondamental de la dynamique (ou conservation de la quantité de mouvement), appliquée à ω , permet d'obtenir deux équations. La première équation (équation de résultante) s'écrit :

$$\frac{d}{dt} \int_{\omega} \rho \underline{V}(\underline{x}, t) d\omega = \int_{\omega} \rho \frac{d\underline{V}}{dt}(\underline{x}, t) d\omega = \int_{\omega} \underline{f}_v(\underline{x}) d\omega + \int_{\partial\omega} \underline{T}_n(\underline{x}, t, \underline{n}) dS \quad (\text{I.13})$$

où l'on a noté par $\frac{d}{dt}$ l'opérateur dérivée particulaire. Quant à la deuxième équation, elle représente l'équation des moments et permet de montrer la symétrie du tenseur des contraintes de Cauchy $\underline{\sigma}$.

Comme nous l'avons vu, la déformation de la structure \mathcal{B} peut être représentée dans deux configurations distinctes. Traduisons alors l'équation (I.13) dans chacune d'entre elles.

Configuration eulérienne

En utilisant le tenseur des contraintes de Cauchy (I.8), on montre, grâce au théorème de la divergence que (I.13) équivaut, sous forme locale à :

$$\rho \underline{\gamma} = \underline{f}_v + \underline{\text{div}}_{\underline{x}} \underline{\sigma} \quad , \quad \forall M \in \omega \subset \Omega \quad (\text{I.14})$$

où $\underline{\gamma} = \frac{d\underline{V}}{dt}$ est l'accélération eulérienne au point M et $\underline{\text{div}}_{\underline{x}}$ l'opérateur divergence par rapport aux variables eulériennes (x_1, x_2, x_3) .

L'inconvénient majeur de l'équation du mouvement (I.14) est qu'elle est exprimée dans la configuration eulérienne qui est a priori inconnue. Cette équation est donc très difficilement exploitable, et il est parfois plus simple de l'exprimer dans la configuration initiale qui est connue.

Configuration lagrangienne

Etant données les relations qui existent entre la configuration lagrangienne $\omega_0 \subset \Omega_0$ et la configuration eulérienne $\omega \subset \Omega$ (équations (I.2) et (I.10)), on montre (voir par exemple Ciarlet [31]) que (I.13) équivaut, sous forme locale, à :

$$\rho_0 \underline{\gamma}_0 = \underline{\text{div}}_{\underline{X}} (J \cdot \underline{\sigma} \mathbf{F}^{-t}) + \underline{f}_{v_0}, \quad \forall M_0 \in \omega_0 \subset \Omega_0$$

où \underline{div}_X est l'opérateur divergence par rapport aux variables lagrangiennes (X_1, X_2, X_3) , ρ_0 la masse volumique lagrangienne, $\underline{\gamma}_0$ l'accélération au point M_0 , exprimée en variables lagrangiennes et $\underline{f}_{v_0} = J\mathbf{F}^{-1}\underline{f}_v$ les efforts volumiques imposés dans la configuration lagrangienne.

En utilisant le premier tenseur des contraintes de Piola-Kirchhoff, on a :

$$\rho_0\underline{\gamma}_0 = \underline{div}_X\mathbf{T} + \underline{f}_{v_0}, \quad \forall M_0 \in \omega_0 \subset \Omega_0 \quad (\text{I.15})$$

On constate que la relation (I.15) est de façon évidente, puisque Ω_0 est connue, beaucoup plus simple à manipuler que (I.14). Par conséquent, c'est cette relation, exprimée dans la configuration lagrangienne, ou non déformée, qui sera retenue par la suite.

À présent que les équations du mouvement (I.15) sont introduites, nous allons nous attacher à la modélisation du comportement des matériaux élastomères.

I.2.2 Lois de comportement

Afin de pouvoir définir complètement les équations du problème que nous traitons, il est nécessaire de préciser les lois de comportement qui régissent la réponse de matériaux hyperélastiques, c'est à dire les relations liant les contraintes aux déformations. Pour cela, effectuons tout d'abord quelques rappels de thermodynamique des milieux continus, puis introduisons les lois d'état obtenues à partir d'une densité d'énergie de déformation donnée.

I.2.2.1 Inégalités de Clausius-Duhem

La détermination de lois de comportement de matériaux s'inscrit dans un cadre thermodynamique : le comportement des élastomères ou de tout autre matériau doit satisfaire les équations classiques de la thermodynamique et plus particulièrement l'inégalité de Clausius-Duhem. L'obtention de cette égalité à partir des deux principes de la thermodynamique est décrite en annexe A et les expressions obtenues, dans chacune des configurations, y sont présentées. Ces inégalités sont bien entendu équivalentes au sens de la dualité Lagrange/Euler et constituent une condition nécessaire d'admissibilité thermodynamique pour les lois de comportement.

Nous ne travaillerons qu'en configuration lagrangienne car les grandeurs utilisées, \mathbf{F} et \mathbf{T} sont celles que l'on peut aisément évaluer d'un point de vue expérimental (cf. section IV.2.2). L'expression de l'inégalité de Clausius-Duhem est alors la suivante :

$$\rho_0 \left(T_a \frac{\partial s}{\partial t} - \frac{\partial \psi}{\partial t} \right) + \mathbf{T} : \frac{\partial \mathbf{F}}{\partial t} - \frac{q_0}{T_a} \underline{Grad}_X(T_a) \geq 0 \quad (\text{I.16})$$

où l'on note $\mathbf{A} : \mathbf{B}$ le produit doublement contracté de \mathbf{A} par \mathbf{B} ($\mathbf{A} : \mathbf{B} = A_{ij}B_{ij}$) et où s et ψ sont respectivement l'entropie et l'énergie interne spécifiques du matériau ; T_a est la température et \underline{q}_0 le vecteur flux de chaleur reçu.

Ainsi, en introduisant la fonction énergie libre \widehat{W} définie en configuration lagrangienne par :

$$\widehat{W} = \psi - T_a s \quad (\text{I.17})$$

l'inégalité (I.16) s'exprime sous la forme :

$$\mathbf{T} : \frac{\partial \mathbf{F}}{\partial t} - \rho_0 \left(\frac{\partial \widehat{W}}{\partial t} + s \frac{\partial T_a}{\partial t} \right) - \frac{q_0}{T_a} \text{Grad}_{\underline{X}}(T_a) \geq 0 \quad (\text{I.18})$$

I.2.2.2 Lois d'état et densité d'énergie de déformation

Afin de formuler les lois de comportement des milieux qui nous intéressent, on définit leur état thermodynamique par un ensemble de variables, dites d'état, comme par exemple la température T_a , le tenseur gradient de la transformation \mathbf{F} et on peut supposer, de plus, l'existence d'un nombre fini de variables internes notées d_i .

On suppose que le potentiel énergie libre \widehat{W} admet les dépendances suivantes :

$$\widehat{W} = \widehat{W}(\mathbf{F}, T_a, d_i) \quad (\text{I.19})$$

de sorte que :

$$\frac{\partial \widehat{W}}{\partial t} = \frac{\partial \widehat{W}}{\partial \mathbf{F}} : \frac{\partial \mathbf{F}}{\partial t} + \frac{\partial \widehat{W}}{\partial T_a} \frac{\partial T_a}{\partial t} + \frac{\partial \widehat{W}}{\partial d_i} \frac{\partial d_i}{\partial t}$$

On obtient alors d'après (I.18), $\forall M_0 \in \omega_0 \subset \Omega_0$

$$\left(\mathbf{T} - \rho_0 \frac{\partial \widehat{W}}{\partial \mathbf{F}} \right) : \frac{\partial \mathbf{F}}{\partial t} - \rho_0 \left(s + \frac{\partial \widehat{W}}{\partial T_a} \right) \frac{\partial T_a}{\partial t} - \rho_0 \frac{\partial \widehat{W}}{\partial d_i} \frac{\partial d_i}{\partial t} - \frac{q_0}{T_a} \text{grad}_{\underline{X}}(T_a) \geq 0 \quad (\text{I.20})$$

Dans le cas isotherme et dans la mesure où l'inégalité de Clausius-Duhem doit être vérifiée quelle que soit l'histoire des variables \mathbf{F} et d_i , on obtient, entre autre, la loi de comportement, dérivant de la fonction densité d'énergie de déformation $W = \rho_0 \widehat{W}$ et qui relie le premier tenseur de Piola-Kirchhoff \mathbf{T} au tenseur gradient de la transformation \mathbf{F} :

$$\mathbf{T} = \frac{\partial W(\mathbf{X}, \mathbf{F}, d_i)}{\partial \mathbf{F}} \quad (\text{I.21})$$

De plus, si les matériaux considérés sont des matériaux purement hyperélastiques (sans endommagement) c'est-à-dire que, comme tout matériau élastique, après avoir été soumis à une sollicitation, ces matériaux reviennent à leurs configurations de référence instantanément et sans aucune dissipation ($\nabla_{\mathbf{X}} \mathbf{T} = 0$, $\mathcal{F}_k = 0$). Alors, afin de satisfaire l'inégalité de Clausius-Duhem, (I.16), le comportement de tels matériaux est défini par :

$$\mathbf{T} = \frac{\partial W(\mathbf{X}, \mathbf{F})}{\partial \mathbf{F}} \quad (\text{I.22})$$

avec W vérifiant le principe d'indifférence matérielle qui s'écrit :

$$W(\mathbf{X}, \mathbf{R} \cdot \mathbf{F}) = W(\mathbf{X}, \mathbf{F}), \quad \forall \mathbf{R} \text{ orthogonale} \quad (\text{I.23})$$

Deux approches sont alors couramment utilisées pour modéliser les élastomères que ce soit avec ou sans prise en compte des phénomènes de viscosité et d'endommagement :

- les approches phénoménologiques (Mooney [85]; Rivlin [107]; Alexander [2]; Ogden [89]; Harth-Smith [52]; Lambert-Diani et Rey [65], ...)
- les approches macromoléculaires (Kuhn [61]; Kuhn et Grün [62]; Wang et Guth [122]; Treolar [121]; Arruda et Boyce [5]; Marckmann, [77]; Diani et Gilormini, [37]...)

Dans les sections suivantes, on décrit l’approche phénoménologique mais nous ne présenterons pas de description des approches macromoléculaires qui ne seront pas considérées dans la suite de l’étude.

I.2.3 Approche phénoménologique

La théorie phénoménologique est une théorie purement descriptive et macroscopique qui s’attache à reproduire le comportement observé sans incorporer explicitement des mécanismes responsables de ce comportement.

Il existe un grand nombre de modèles phénoménologiques du comportement des élastomères que ce soit avec ou sans prise en compte des phénomènes d’endommagement, évoqués précédemment, et de viscosité. La prise en compte des deux mécanismes d’adoucissement est extrêmement délicate et complexe. Ainsi, nombre d’auteurs ont préféré introduire des modèles plus simples, en négligeant l’un des deux mécanismes d’endommagement (continu ou discontinu), tout en garantissant que ceux-ci permettent de rendre compte de l’évolution du comportement à plus ou moins grand nombre de cycles ([84], [90], [9], [46]...).

De plus, afin de définir complètement le comportement des élastomères sur l’ensemble de leur histoire de chargement, de nombreux auteurs se sont intéressés à une modélisation de type visco-hyperélastique afin de prendre en compte l’hystérésis entre charge-décharge : Bergström et Boyce [11]; Miehe et Keck [82]; Kaliske & al. [59]; Reese et Govindjee [106]; Simo [113].

I.2.3.1 Cas particulier des matériaux hyperélastiques sans endommagement

Ainsi, dans ce cadre d’approches phénoménologiques et dans le cas où les matériaux étudiés sont isotropes dans leur configuration de référence et satisfont le principe de l’indifférence matérielle, on montre (Rivlin [107]; Ogden [89]; Ciarlet [32]) que leur densité d’énergie ne sont fonction que des invariants du tenseur des dilatations \mathbf{C} défini par (I.6) ou des valeurs propres de \mathbf{F} : λ_1 , λ_2 et λ_3 (Ogden [89]) :

$$\left\{ \begin{array}{l} I_1 = \text{tr}(\mathbf{C}) = \lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 \\ I_2 = \frac{1}{2}(\text{tr}(\mathbf{C})^2 - \text{tr}(\mathbf{C} \cdot \mathbf{C})) = (\lambda_1 \lambda_2)^2 + (\lambda_1 \lambda_3)^2 + (\lambda_3 \lambda_2)^2 \\ I_3 = \det(\mathbf{C}) = (\lambda_1 \lambda_2 \lambda_3)^2 \end{array} \right. \quad (\text{I.24})$$

On a ainsi sous ces hypothèses :

$$W(\mathbf{F}) = W(\mathbf{C}) = W(I_1, I_2, I_3) = W(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3) \quad (\text{I.25})$$

On obtient alors le premier tenseur des contraintes de Piola-Kirchhoff du matériau non endommagé, \mathbf{T} :

$$\mathbf{T}(\mathbf{F}) = \frac{\partial W}{\partial \mathbf{F}}(\mathbf{F}) = \frac{\partial W}{\partial I_1} \left(\frac{\partial I_1}{\partial \mathbf{F}} \right) + \frac{\partial W}{\partial I_2} \left(\frac{\partial I_2}{\partial \mathbf{F}} \right) + \frac{\partial W}{\partial I_3} \left(\frac{\partial I_3}{\partial \mathbf{F}} \right) \quad (\text{I.26})$$

Compte tenu de (I.24), on montre que :

$$\frac{\partial I_1}{\partial \mathbf{F}} = 2\mathbf{F} \quad ; \quad \frac{\partial I_2}{\partial \mathbf{F}} = 2(I_1\mathbf{F} - \mathbf{F}\mathbf{C}) \quad ; \quad \frac{\partial I_3}{\partial \mathbf{F}} = 2I_3\mathbf{F}^{-t}$$

Ainsi, la relation constitutive (I.26) devient :

$$\mathbf{T}(\mathbf{F}) = 2 \left(\frac{\partial W}{\partial I_1} \mathbf{F} + \frac{\partial W}{\partial I_2} (I_1\mathbf{F} - \mathbf{F}\mathbf{C}) + \frac{\partial W}{\partial I_3} I_3\mathbf{F}^{-t} \right) \quad (\text{I.27})$$

I.2.3.2 Exemples de densités d'énergie sans endommagement

La bibliographie est riche d'exemples de densités d'énergie de déformation de matériaux hyperélastiques isotropes sans prise en compte d'endommagement. On ne présente ici que quelques exemples que l'on utilisera dans la suite de l'étude.

Les densités d'énergie présentées sont fonction des invariants de \mathbf{C} ou de \mathbf{C}' qui est défini par :

$$\bar{\mathbf{C}} = \bar{\mathbf{F}}^t \cdot \bar{\mathbf{F}} \quad \text{avec} \quad \bar{\mathbf{F}} = \frac{\mathbf{F}}{\det(\mathbf{F})^{1/3}} \quad (\text{I.28})$$

Voici deux exemples que nous considérerons :

- Le premier exemple est une densité d'énergie classique de type Mooney-Rivlin généralisée [1] :

$$W(\mathbf{F}) = C_{10}(\bar{I}_1 - 3) + C_{01}(\bar{I}_2 - 3) + \frac{1}{D_1}(J - 1)^2 \quad (\text{I.29})$$

où $J = \det(\mathbf{F}) = \sqrt{I_3}$, $\bar{I}_1 = J^{-2/3}I_1$, $\bar{I}_2 = J^{-4/3}I_2$.

Cette densité est disponible dans le logiciel de calcul éléments finis Abaqus et sera considérée à des fins de validations numériques.

- Le second exemple est la densité proposée par Lambert-Diani et Rey [65] qui permet de bien reproduire le comportement hyperélastique caractéristique des élastomères présentés, sur la figure I.5, même aux grands allongements où la courbe s'incurve rapidement :

$$W(\mathbf{F}) = \int_3^{I_1} \exp \left(\alpha_0 + \alpha_1 (I_1 - 3) + \alpha_2 (I_1 - 3)^2 \right) dI_1 + \int_3^{I_2} \beta_1 I_2^{\beta_2} dI_2 \quad (\text{I.30})$$

Les paramètres de ces lois sont déterminés expérimentalement, généralement par identification sur des essais de traction uniaxiale, équi-biaxiale ou encore de cisaillement pur. L'essai de traction uniaxiale induisant des fortes variations de I_1 , permet l'identification des paramètres en I_1 et les essais de traction équi-biaxiale et de cisaillement induisant des fortes variations de I_2 permettent l'identification des paramètres en I_2 .

I.3 Problématique de la thèse

Dans cette thèse on s'intéresse de manière générale aux élastomères et plus précisément aux élastomères renforcés par des particules. On vise à caractériser et modéliser dans un cadre approprié le comportement non linéaire des composites élastomères. Les constituants de ces composites sont régis par des lois hyperélastiques, et, grâce au procédé d'élaboration, les renforts sont de manière générale supposés aléatoirement répartis au sein de la matrice.

Pour l'étude du comportement mécanique de cette classe de matériaux, le recours à des modélisations de type phénoménologique, fondées sur l'expérience, peut s'avérer très délicat. En effet, il s'agit de formuler des lois constitutives intégrant les mécanismes de déformation hétérogène identifiés à l'échelle des constituants du matériau et susceptibles de rendre compte de l'impact de ces constituants; de plus, ces lois constitutives se doivent d'être prédictives, notamment en dehors de leur domaine d'identification.

Les approches micromécaniques offrent une alternative sérieuse pour aborder l'étude et la modélisation du comportement macroscopique des matériaux multiphasés, ne serait-ce que parce qu'elles permettent de relier ce comportement à la microstructure du matériau. Dans le cas des élastomères renforcés, la difficulté principale de la modélisation micromécanique réside à la fois dans la prise en compte de la non linéarité comportementale (hyperélasticité) et dans la nécessité de se placer dans un cadre de transformations finies. De nombreux progrès ont été récemment réalisés en matière d'homogénéisation non linéaire. Parmi les différentes approches proposées, on pourra mentionner les méthodes sécantes (classiques et modifiées), les approches tangentes, affines ou encore les méthodes variationnelles dites du second ordre (cf. [15], [98]). Ce sont ces dernières, dont une adaptation aux composites hyperélastiques a été proposée par Tiberio et Ponte-Castañeda [100], qui ont été retenues pour la présente étude. La mise en œuvre de la méthode du second ordre dans un contexte tridimensionnel requiert un certain nombre de développements décrits au chapitre II. Une autre contribution de l'étude concernera l'évaluation rigoureuse et sans biais du modèle d'homogénéisation issu d'une combinaison de la méthode du second ordre et de la borne d'Hashin-Shtrikhman. Cette évaluation se fera en mettant en œuvre des simulations numériques par éléments finis (chapitre III). Dans un but de validation du modèle, nous avons également réalisé des expériences de traction uniaxiale sur un composite EPDM/PP; les résultats de ces expériences feront l'objet du chapitre 4. Le dernier chapitre de la thèse permettra d'étendre la modélisation proposée par incorporation de phénomènes d'endommagement par croissance de microvides dans le milieu hyperélastique.

Chapitre II

Homogénéisation des composites hyperélastiques

On se propose, dans ce chapitre, de présenter une méthode d'homogénéisation non linéaire adaptée à l'étude des composites hyperélastiques à microstructure désordonnée. Plus précisément, on s'intéresse à l'estimation du comportement macroscopique des matériaux hyperélastiques hétérogènes soumis à de grandes déformations. L'essentiel de la démarche théorique, dont l'objectif est de générer des estimations de la densité d'énergie macroscopique de composites hyperélastiques, s'appuie sur la méthode du second ordre introduite par Ponte Castañeda [99] et adaptée aux comportements hyperélastiques par Ponte Castañeda et Tiberio [100].

A cette fin, on rappelle d'abord le principe des méthodes de changement d'échelle en mécanique des matériaux, puis on présente le cadre théorique de l'homogénéisation non linéaire des matériaux hyperélastiques. La méthode du second ordre, retenue pour l'étude et la prédiction du comportement des matériaux étudiés, est exposée. La mise en œuvre tridimensionnelle de cette méthode pour des composites constitués d'une matrice hyperélastique contenant des particules sphériques déformables constitue la contribution essentielle du chapitre. Ces travaux ont fait l'objet d'une publication soumise [19].

II.1 Homogénéisation non linéaire en mécanique des matériaux

II.1.1 Généralités sur les approches micromécaniques

Sur un plan fondamental, les approches par changement d'échelle (passage de l'échelle des hétérogénéités à l'échelle macroscopique) visent à établir un lien entre le comportement macroscopique des matériaux et leur état microstructural. On distingue deux grandes voies de modélisation micromécanique qui se différencient par la représentation de microstructure sur laquelle elle se base :

– *l’homogénéisation périodique :*

Elle correspond à une description déterministe de la microstructure par répétition périodique d’une cellule de base connue. Les outils utilisés dans ce cadre sont souvent basés sur les méthodes de développements asymptotiques [10], [111], [112]. La mise en œuvre des méthodes d’homogénéisation périodiques requiert souvent des calculs numériques sur la cellule de base. Pour l’application de ce type d’approche à des composites hyperélastiques, on pourra se référer par exemple aux travaux de Brieu [23] et de Lahellec [63].

– *micromécanique des milieux à microstructure aléatoire :*

Dans cette classe de modélisation on retrouve les approches d’homogénéisation en champs moyens, classiquement déclinées en trois étapes que sont la représentation, la localisation et l’homogénéisation (cf. [14], [15]). L’étape de localisation permettant de relier les grandeurs mécaniques locales et macroscopiques est essentielle pour la formulation de ces approches.

Dans cette étude, compte tenu de la microstructure des matériaux en jeu, seuls des outils dédiés aux microstructures aléatoires seront considérés.

De manière classique, on considère un volume élémentaire représentatif (V.E.R.) Ω_0 du matériau hétérogène, de volume V_0 et de frontière ∂V_0 (cf. Fig. II.1). On suppose satisfaites les conditions usuelles de séparation d’échelles ($d \ll l \ll L$, d étant la taille des hétérogénéités, l la taille du V.E.R. et L la dimension caractéristique de la structure).

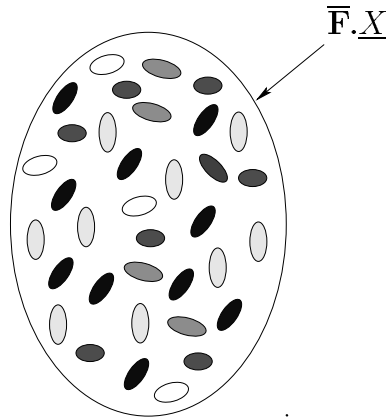


FIG. II.1 - *Volume Élémentaire Représentatif*

L’étape de représentation doit être précisée par la description des propriétés mécaniques et géométriques des constituants (phases) du milieu hétérogène : caractéristiques mécaniques des constituants, formes, fractions volumiques (concentrations) et éventuellement distributions spatiales.

On adopte pour l'étape de localisation des conditions de déformation homogène au bord, ce qui se traduit pour le champ de déplacement \underline{u} au contour, en grandes déformations, par $\underline{u} = (\bar{\mathbf{F}} - \underline{I}) \cdot \underline{X}$ sur ∂V_0 où $\bar{\mathbf{F}}$ désigne le tenseur gradient de la transformation macroscopique.

Même sous ces conditions aux bords relativement simples, l'étape de localisation s'avère délicate en raison même de l'hétérogénéité des matériaux étudiés et des interactions entre les phases constituant ces matériaux. Dans le contexte linéaire, on est amené à introduire un tenseur de localisation reliant le champ local de déformation au champ macroscopique imposé. La détermination de ce tenseur est classiquement réalisée en s'appuyant sur la solution d'Eshelby au problème de l'inclusion équivalente [41]. Le problème s'avère nettement plus compliqué dans le contexte non linéaire. On y reviendra.

L'*homogénéisation* vise à déterminer, à l'aide d'une procédure de moyenne², l'expression du comportement macroscopique en s'appuyant sur l'étape de localisation et la connaissance des relations constitutives des phases. On aboutit alors à un comportement macroscopique dit "homogénéisé" ou effectif pour le milieu hétérogène.

II.1.2 Méthodes d'homogénéisation non linéaire

II.1.2.1 Introduction

Les premiers travaux visant la prédiction du comportement de matériaux composites non linéaires relèvent du domaine de la plasticité polycristalline; il s'agit notamment des travaux de Taylor [120], suivi par Bishop et Hill [12] et Drucker [39]. Mais, le lien avec l'homogénéisation des comportements non linéaires ne se fera que timidement dans un premier temps avec les travaux de Budiansky et al. [26], puis Kröner [60] qui furent les premiers à s'engager sur le terrain des estimations non linéaires pour l'élastoplasticité du polycristal en rapprochant la déformation plastique de la notion de "déformation libre" et en utilisant la solution du problème de l'inclusion d'Eshelby [41]. Une avancée importante a été réalisée grâce aux travaux de Hill [54] qui proposa un traitement incrémental linéarisé de l'élastoplasticité pour se ramener à chaque pas à la résolution d'un problème de "pseudo-élasticité". Cette approche fait appel à une notion de "milieu linéaire hétérogène de comparaison" qui sera presque systématiquement repris dans de nombreux développements ultérieurs.

C'est ainsi qu'est née une première famille d'approches d'homogénéisation non linéaire pour milieux à microstructure aléatoire dites approches "contraintes-déformations". Ces approches utilisent les relations de comportement reliant directement les contraintes aux déformations en affectant à chaque phase un comportement linéarisé associé à la déformation ou à la contrainte

²on considère classiquement la moyenne volumique d'une grandeur f sur un volume V :

$$\langle f \rangle = \frac{1}{|V|} \int_V f(x) dV$$

moyenne.

Une seconde famille d'approches, plus récente, permettant d'estimer le comportement effectif des composites non linéaires à microstructure aléatoire est celle des approches par potentiel. Ces approches se distinguent des techniques précédentes par la classe de matériaux particulière auxquelles elles sont dédiées, c'est-à-dire les matériaux pour lesquels la réponse de chaque phase constitutive est déterminée à l'aide d'un potentiel unique, convexe dans un contexte de petites perturbations mais non convexe (polyconvexe) dans le cadre des grandes transformations. Ces méthodes offrent un cadre mathématique rigoureux notamment d'approches variationnelles et permettent de déterminer des bornes non linéaires pouvant prolonger les bornes linéaires disponibles (par exemple Voigt, Reuss et Hashin-Shtrikman) dans le cadre des petites perturbations. Mais en ce qui concerne les transformations finies, la détermination de bornes se complique du fait de la polyconvexité des potentiels. Cependant, une borne supérieure de Voigt a été établie depuis longtemps par Ogden [88] et des bornes inférieures ont été obtenues par Ponte Castañeda [93] en se basant sur des hypothèses de polyconvexité des potentiels (cf. Ball, [6]).

Dans le présent travail, c'est à cette seconde famille d'approche d'homogénéisation non linéaire à laquelle on s'intéresse, les comportements des matériaux hyperélastiques étant décrit par la donnée d'une densité d'énergie.

II.1.2.2 Problème local et densité d'énergie macroscopique

On rappelle que la loi de comportement d'un milieu hyperélastique est déterminée à partir de sa densité d'énergie, W , par (I.21). Le premier tenseur des contraintes de Piola-Kirchhoff, \mathbf{T} , s'exprime alors en fonction du gradient de la transformation, \mathbf{F} .

On reprend le Volume Élémentaire Représentatif (V.E.R.) Ω_0 du matériau, occupant un volume V_0 dans la configuration de référence. Ce (V.E.R.) est soumis à une déformation homogène au contour $\bar{\mathbf{F}}$ (voir figure II.1). Le problème local à résoudre pour déterminer la réponse en contraintes sous la condition de déformation homogène $\bar{\mathbf{F}}$ imposée sur le bord $\partial\Omega_0$ du V.E.R. est défini par, compte tenu de (I.22) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \forall \underline{X} \in \Omega_0 \quad \mathbf{T}(\underline{X}) = \frac{\partial W(\underline{X}, \mathbf{F}(\underline{X}))}{\partial \mathbf{F}} \\ \mathbf{F} \in K(\bar{\mathbf{F}}) \quad \text{et} \quad \mathbf{T} \in S \end{array} \right. \quad (\text{II.1})$$

où

$K(\bar{\mathbf{F}}) = \{ \mathbf{F}(\underline{X}) \mid \mathbf{F}(\underline{X}) = \mathbf{1} + \mathbf{Grad}_{\underline{X}} u \text{ et } x = \bar{\mathbf{F}} \cdot \underline{X} \text{ sur } \partial\Omega_0 \}$ est l'ensemble des gradients de la transformation cinématiquement admissibles et $S = \{ \mathbf{T}(\underline{X}) \mid \text{div}_{\underline{X}} \mathbf{T}(\underline{X}) = 0 \text{ dans } \Omega_0 \}$ désigne l'ensemble des champs de contraintes statiquement admissibles.

Ce problème revient à la minimisation (stationnarité) de l'énergie potentielle. Un résultat important de Hill [55] indique que, pour un composite dont les phases sont hyperélastiques, la loi homogénéisée donnant les contraintes macroscopiques $\bar{\mathbf{T}} = \langle \mathbf{T} \rangle$ en fonction du gradient de la

transformation macroscopique $\bar{\mathbf{F}} = \langle \mathbf{F} \rangle$ est déterminée par une densité d'énergie macroscopique \widetilde{W} . Cette densité d'énergie est :

$$\widetilde{W}(\bar{\mathbf{F}}) = \underset{\mathbf{F} \in K(\bar{\mathbf{F}})}{Stat} \langle W(\underline{X}, \mathbf{F}) \rangle \quad (\text{II.2})$$

où le symbole $\langle . \rangle$ désigne la moyenne sur le V.E.R. de la grandeur considérée. *Stat* indique le principe de stationnarité qui consiste à déterminer la valeur optimale de \mathbf{F} , cinématiquement admissible, vérifiant la stationnarité de l'énergie de déformation W , c'est-à-dire la nullité de la dérivée de cette énergie par rapport à \mathbf{F} .

Le tenseur des contraintes macroscopiques est alors donné par :

$$\bar{\mathbf{T}}(\bar{\mathbf{F}}) = \frac{\partial \widetilde{W}(\bar{\mathbf{F}})}{\partial \bar{\mathbf{F}}} \quad (\text{II.3})$$

Remarque : Lorsque la densité d'énergie satisfait aux propriétés de polyconvexité, le principe variationnel de stationnarité définissant \widetilde{W} peut être transformé en un principe de minimum (Ball, 1977). Nous adopterons ainsi la notation "Inf" pour ce dernier.

La résolution du problème qui vient d'être brièvement posé est relativement difficile en raison de la non linéarité comportementale des phases. Elle passe par une "linéarisation" des relations constitutives locales dont nous décrivons le principe dans ce qui suit.

II.1.2.3 Principe de la linéarisation

L'opération de linéarisation vise à remplacer les équations de champ non linéaires sur le (V.E.R.) par des équations de champ linéaires que l'on pourra aborder et résoudre au moyen des schémas d'homogénéisation développés pour les milieux linéaires. Le problème local linéaire résultant de la linéarisation est identique à un problème d'homogénéisation d'un composite linéaire élastique ou thermoélastique selon le mode de linéarisation, appelé "composite linéaire de comparaison" (CLC). Le CLC n'a pas obligatoirement la même microstructure que le composite réel.

Ainsi, pour évaluer le comportement global d'un composite non linéaire, on fait appel à une double approximation : une procédure de linéarisation et une résolution par un schéma d'homogénéisation linéaire. Le résultat de cette résolution peut être mis sous la forme d'une borne ou une estimation selon le schéma d'homogénéisation considéré.

Après ces 2 étapes, le problème local non linéaire (II.1) à résoudre se ramène à un problème linéaire dans lequel est introduit une déformation de référence qu'il s'agira de déterminer.

Il reste à préciser comment est déduit le comportement macroscopique non linéaire du composite du modèle linéaire utilisé pour décrire le CLC.

Deux approches peuvent être retenues :

- construire la contrainte macroscopique associée à la déformation macroscopique appliquée à partir d’une opération de moyenne sur les champs locaux du problème linéarisé posé sur le CLC.
- estimer le potentiel de déformation macroscopique $\widetilde{W}(\bar{\mathbf{F}})$ puis en déduire la contrainte macroscopique. Cette approche, plus rigoureuse dans le sens où elle garantit l’existence d’un potentiel macroscopique, est celle qui sera privilégiée dans la présente étude. Elle est conforme au résultat de Hill [55] indiqué plus haut.

On notera que de nombreuses méthodes de linéarisation ont été développées, leurs différences se situant généralement dans des choix de la valeur de référence utilisée pour la linéarisation du comportement de chaque phase, du mode de linéarisation (sécant, sécant modifié, tangent) et de son ordre. Nous avons aussi déjà souligné la différence résidant dans la loi constitutive (dérivant ou non d’un potentiel) à laquelle s’adresse ces méthodes. On rappellera à titre d’information les procédures de linéarisation basées sur l’approche ”contrainte-déformation” : approches dites sécantes, sécantes modifiées (voir par exemple [15], [117]) ou affines [79]. En notant tout de même, qu’il a été démontré par Suquet [117] qu’une interprétation variationnelle de la méthode sécante modifiée peut être donnée, permettant ainsi de la relier à l’approche variationnelle du premier ordre de Ponte Castañeda [94].

A l’inverse des méthodes qui viennent d’être évoquées, la méthode dite du ”second ordre” que nous allons présenter en section II.2 est plutôt de nature énergétique en ce sens qu’elle aboutit à la construction de la densité d’énergie macroscopique du composite hyperélastique. Cette méthode a été initialement introduite par [99] en petites perturbations et étendue au contexte hyperélastique, même si les potentiels sont non convexes, par [100]. Il a été montré que les estimations qui en découlent sont exactes au second ordre, par rapport au contraste, au sens défini par Suquet et Ponte Castañeda [118], pourvu que les estimations linéaires utilisées le soient également. Cette remarque est d’un grand intérêt pour la précision des modèles ainsi développés.

II.2 Théorie du second ordre adaptée aux composites hyperélastiques

Dans cette section, on souhaite, à partir du problème local (II.1), déterminer la densité d’énergie homogénéisée dont dérive la loi de comportement macroscopique (II.3) (cf. [55]).

La procédure d’homogénéisation du second ordre de Ponte Castañeda [99], dont une interprétation variationnelle a été proposée par Ponte Castañeda et Willis [102], permet de fournir des estimations de la densité d’énergie homogénéisée du composite. Développée à l’origine pour des matériaux à énergie convexe, elle a été ensuite considérée pour des matériaux hyperélastiques pour des comportements macroscopiques isotropes (cf [100]) et adaptée aux composites hyperélastiques à microstructure périodique par Lahellec [64].

II.2.1 Principe de la méthode du second ordre

Considérons le composite hyperélastique constitué de N phases, caractérisées par leurs potentiels $W^{(r)}(\mathbf{F})^3$ ($r=1..N$). La densité d'énergie de déformation hétérogène du composite non linéaire se met sous la forme :

$$W(\underline{X}, \mathbf{F}) = \sum_{r=1}^N \theta^{(r)}(\underline{X}) W^{(r)}(\mathbf{F}) \quad (\text{II.4})$$

où $\theta^{(r)}(\underline{X})$ désigne la fonction caractéristique d'une phase quelconque r , égale à 1 si le vecteur position \underline{X} est dans la phase r , et 0 sinon.

Le problème (II.2) à résoudre pour déterminer la densité d'énergie homogénéisée se réécrit de la façon suivante :

$$\widetilde{W}(\bar{\mathbf{F}}) = \underset{\mathbf{F} \in K(\bar{\mathbf{F}})}{\text{Inf}} \langle W(\underline{X}, \mathbf{F}) \rangle = \underset{\mathbf{F} \in K(\bar{\mathbf{F}})}{\text{Inf}} \sum_{r=1}^N c^{(r)} \langle W^{(r)}(\mathbf{F}) \rangle^{(r)} \quad (\text{II.5})$$

où les symboles $\langle \cdot \rangle$ et $\langle \cdot \rangle^{(r)}$ représentent respectivement les moyennes sur V_0 et sur $V_0^{(r)}$, et le scalaire $c^{(r)} = \langle \theta^{(r)} \rangle$ est la fraction volumique de la phase (r).

Le principe de base de la méthode du second ordre est d'approximer la densité d'énergie locale, $W^{(r)}(\mathbf{F})$, de chaque phase r par son développement en série de Taylor au second ordre, $W_T^{(r)}(\mathbf{F})$, autour de gradients de transformation de référence, \mathbf{F}^r , que l'on suppose constants par phase [99] :

$$\begin{aligned} W^{(r)}(\mathbf{F}) &\approx W_T^{(r)}(\mathbf{F}) \\ &\approx W^{(r)}(\mathbf{F}^{(r)}) + (\mathbf{F} - \mathbf{F}^{(r)}) : \mathbf{T}^{(r)}(\mathbf{F}^{(r)}) + \frac{1}{2} (\mathbf{F} - \mathbf{F}^{(r)}) : \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)}(\widetilde{\mathbf{F}}^{(r)}) : (\mathbf{F} - \mathbf{F}^{(r)}) \end{aligned} \quad (\text{II.6})$$

avec

$$\mathbf{T}^{(r)}(\mathbf{F}^{(r)}) = \frac{\partial W^{(r)}}{\partial \mathbf{F}}(\mathbf{F}^{(r)}) \quad \text{et} \quad \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)}(\widetilde{\mathbf{F}}^{(r)}) = \frac{\partial^2 W^{(r)}}{\partial \mathbf{F}^2}(\widetilde{\mathbf{F}}^{(r)}) \quad (\text{II.7})$$

A ce stade, il convient de souligner le fait que $\widetilde{\mathbb{L}}^{(r)}$ est un module tangent pris en $\widetilde{\mathbf{F}}^{(r)}$ à priori différent de $\mathbf{F}^{(r)}$. Sa détermination est supposée résulter d'un choix optimal qui sera précisé plus tard. Par construction, $\widetilde{\mathbb{L}}^{(r)}$ possède la symétrie diagonale (majeure), mais pas les symétries mineures car les tenseurs gradient de la transformation \mathbf{F} ne sont pas symétriques.

Il vient, en tenant compte de ce développement en série, que la densité d'énergie macroscopique (II.5) se met sous la forme :

$$\widetilde{W}(\bar{\mathbf{F}}) \approx \underset{\mathbf{F} \in K(\bar{\mathbf{F}})}{\text{Inf}} \widehat{W}(\bar{\mathbf{F}}; \mathbf{F}^{(r)}, \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)}) \quad (\text{II.8})$$

³L'indice (r) correspond à un constituant r

dans lequel la quantité $\widehat{W}(\bar{\mathbf{F}}; \mathbf{F}^{(r)}, \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)})$ à minimiser s'écrit :

$$\widehat{W}(\bar{\mathbf{F}}) = \sum_{r=1}^N c^{(r)} \left(\begin{array}{l} W^{(r)}(\mathbf{F}^{(r)}) + \langle \mathbf{F} - \mathbf{F}^{(r)} \rangle^{(r)} : \mathbf{T}^{(r)} \\ + \langle \frac{1}{2}(\mathbf{F} - \mathbf{F}^{(r)}) : \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : (\mathbf{F} - \mathbf{F}^{(r)}) \rangle^{(r)} \end{array} \right) \quad (\text{II.9})$$

La densité d'énergie ainsi obtenue est une estimation et il reste à préciser les choix optimaux pour les deux grandeurs introduites dans le développement, à savoir $\mathbf{F}^{(r)}$ et $\widetilde{\mathbb{L}}^{(r)}$ (ou de façon équivalente $\widetilde{\mathbf{F}}^{(r)}$). Nous préciserons ces choix dans la section suivante.

On peut aisément vérifier que la quantité $W_T^{(r)}$ approximant $W^{(r)}(\mathbf{F})$ (II.7) peut également se mettre sous la forme (cf. Bornert *et al* [17]) :

$$\begin{aligned} W_T^{(r)}(\mathbf{F}) &\approx W^{(r)}(\mathbf{F}^{(r)}) - \mathbf{F}^{(r)} : \mathbf{T}^{(r)}(\mathbf{F}^{(r)}) + \frac{1}{2} \mathbf{F}^{(r)} : \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F}^{(r)} \\ &+ \left(\boldsymbol{\tau}^{(r)}(\mathbf{F}^{(r)}) : \mathbf{F} + \frac{1}{2} \mathbf{F} : \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F} \right) \quad \text{avec} \quad \boldsymbol{\tau}^{(r)} = \frac{\partial W^{(r)}}{\partial \mathbf{F}}(\mathbf{F}^{(r)}) - \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F}^{(r)} \end{aligned} \quad (\text{II.10})$$

d'où l'on obtient, en reportant dans (II.8) avec (II.9), l'expression de la densité d'énergie macroscopique :

$$\widetilde{W}(\bar{\mathbf{F}}) \approx \sum_{r=1}^N c^{(r)} \left[W^{(r)}(\mathbf{F}^{(r)}) - \mathbf{F}^{(r)} : \mathbf{T}^{(r)}(\mathbf{F}^{(r)}) + \frac{1}{2} \mathbf{F}^{(r)} : \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F}^{(r)} \right] + \widetilde{W}_{\boldsymbol{\tau}}(\bar{\mathbf{F}}, \boldsymbol{\tau}) \quad (\text{II.11})$$

dans laquelle la quantité $\widetilde{W}_{\boldsymbol{\tau}}$ est donnée par :

$$\begin{aligned} \widetilde{W}_{\boldsymbol{\tau}}(\bar{\mathbf{F}}, \boldsymbol{\tau}; \mathbf{F}^{(r)}, \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)}) &= \text{Inf}_{\mathbf{F} \in K(\bar{\mathbf{F}})} \sum_{r=1}^N c^{(r)} \left\langle \boldsymbol{\tau}^{(r)}(\mathbf{F}^{(r)}) : \mathbf{F} + \frac{1}{2} \mathbf{F} : \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F} \right\rangle^{(r)} \\ &= \text{Inf}_{\mathbf{F} \in K(\bar{\mathbf{F}})} \left\langle \boldsymbol{\tau}(\underline{\mathbf{X}}) : \mathbf{F} + \frac{1}{2} \mathbf{F} : \widetilde{\mathbb{L}}_0(\underline{\mathbf{X}}) : \mathbf{F} \right\rangle \end{aligned} \quad (\text{II.12})$$

Le tenseur $\widetilde{\mathbb{L}}_0(\underline{\mathbf{X}}) = \sum_{r=1}^N \theta^{(r)}(\underline{\mathbf{X}}) \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)}$ est le tenseur des modules tangents associé au composite linéaire de comparaison et $\boldsymbol{\tau}(\underline{\mathbf{X}}) = \sum_{r=1}^N \theta^{(r)}(\underline{\mathbf{X}}) \boldsymbol{\tau}^{(r)}$ représente le tenseur de contraintes thermiques (polarisation).

Il apparaît ainsi que l'on a affaire à un problème fictif de thermoélasticité. Les équations d'Euler-Lagrange du problème variationnel associé (pour $\widetilde{W}_{\boldsymbol{\tau}}$) (cf. [124]) sont :

$$\text{Div} \left(\widetilde{\mathbb{L}}_0(\underline{\mathbf{X}}) : \mathbf{F}(\underline{\mathbf{X}}) + \boldsymbol{\tau}(\underline{\mathbf{X}}) \right) = 0 \quad \text{dans} \quad \Omega_0, \quad \underline{\mathbf{x}} = \bar{\mathbf{F}} \cdot \underline{\mathbf{X}} \quad \text{sur} \quad \partial\Omega_0 \quad (\text{II.13})$$

II.2.2 Choix optimaux de $\mathbf{F}^{(r)}$ et de $\widetilde{\mathbb{L}}^{(r)}$

Il reste maintenant à préciser les choix optimaux pour la déformation de référence $\mathbf{F}^{(r)}$ et pour le tenseur $\widetilde{\mathbb{L}}^{(r)}$. En imposant la condition de stationnarité (minimisation) sur \widehat{W} (II.8) et

en utilisant le fait que les termes qui dépendent du gradient de transformation \mathbf{F} , vérifiant le problème de thermoélasticité linéaire (II.13), soient stationnaires (par rapport à \mathbf{F}), il vient :

$$\frac{\partial \widehat{W}}{\partial \mathbf{F}^{(r)}} = c^{(r)} \left\{ \mathbf{T}^{(r)} + \frac{\partial \mathbf{T}^{(r)}}{\partial \mathbf{F}^{(r)}} : \langle \mathbf{F} - \mathbf{F}^{(r)} \rangle^{(r)} - \mathbf{T}^{(r)} - \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \langle \mathbf{F} - \mathbf{F}^{(r)} \rangle^{(r)} \right\} = \mathbf{0} \quad (\text{II.14})$$

soit de façon équivalente :

$$\frac{\partial \widehat{W}}{\partial \mathbf{F}^{(r)}} = c^{(r)} \left[\mathbb{L}_t^{(r)} - \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} \right] : \left(\langle \mathbf{F} \rangle^{(r)} - \mathbf{F}^{(r)} \right) = \mathbf{0} \quad (\text{II.15})$$

dans lequel on a introduit les tenseurs des modules "tangents" des phases hyperélastiques $\mathbb{L}_t^{(r)}$ en $\mathbf{F}^{(r)}$ donnés par :

$$\mathbb{L}_t^{(r)} = \frac{\partial \mathbf{T}^{(r)}}{\partial \mathbf{F}} \left(\mathbf{F}^{(r)} \right) = \frac{\partial^2 W^{(r)}}{\partial \mathbf{F} \partial \mathbf{F}} \left(\mathbf{F}^{(r)} \right). \quad (\text{II.16})$$

On en déduit que la condition de stationnarité de (II.8) est satisfaite si l'on prend comme valeur de $\mathbf{F}^{(r)}$ les moyennes par phase du champ de gradients de la transformation \mathbf{F} associé au problème de thermoélasticité linéaire (II.13). En notant chaque quantité moyenne par phase $\bar{\mathbf{F}}^{(r)}$, on a :

$$\mathbf{F}^{(r)} = \langle \mathbf{F} \rangle^{(r)} = \bar{\mathbf{F}}^{(r)}. \quad (\text{II.17})$$

En reportant (II.17) dans (II.9) on peut montrer (cf. Annexe B.1) que l'on aboutit à l'expression finale de la densité d'énergie macroscopique \widetilde{W} :

$$\widetilde{W}(\bar{\mathbf{F}}) \approx \sum_{r=1}^N c^{(r)} \left\{ W^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) + \frac{1}{2} (\bar{\mathbf{F}} - \bar{\mathbf{F}}^{(r)}) : \frac{\partial W^{(r)}}{\partial \mathbf{F}}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) \right\} \quad (\text{II.18})$$

Il convient de préciser que l'obtention de ce résultat requiert une intégration par parties des équations d'Euler-Lagrange (II.13) associées au problème (II.13) pour le composite thermoélastique, ceci permettant d'exprimer les seconds moments $\langle \mathbf{F} : \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F} \rangle^{(r)}$ en termes des $\bar{\mathbf{F}}^{(r)}$.

Il reste maintenant à spécifier les tenseurs $\widetilde{\mathbb{L}}^{(r)}$. La stationnarité de \widehat{W} par rapport à $\widetilde{\mathbb{L}}^{(r)}$ n'étant pas concluante, un argument proposé par Ponte Castañeda et Willis [102] consiste à imposer que la dérivée première de la densité d'énergie homogénéisée \widehat{W} (II.9) par rapport à $\mathbf{F}^{(r)}$ soit nulle, et que sa dérivée seconde soit aussi prise égale à 0. Ceci amène à :

$$\frac{\partial^2 \widehat{W}}{\partial \bar{\mathbf{F}}^{(r)} \partial \bar{\mathbf{F}}^{(r)}} = 0 \quad (\text{II.19})$$

On peut vérifier que cette condition de stationnarité du second ordre implique que les tenseurs $\widetilde{\mathbb{L}}^{(r)}$ soient choisis égaux aux tenseurs des modules tangents des phases :

$$\widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} = \mathbb{L}_t^{(r)}, \quad (\text{II.20})$$

où les $\mathbb{L}_t^{(r)}$ ont été définis par les relations (II.16) maintenant évaluées avec les déformations de référence $\bar{\mathbf{F}}^{(r)}$.

II.2.3 Contraintes macroscopiques et moyennes par phases

En résumé, la méthode décrite permet de construire une estimation variationnelle de la densité d'énergie macroscopique \widetilde{W} (II.18), donc une estimation des contraintes macroscopiques, $\bar{\mathbf{T}}$, par dérivation de \widetilde{W} par rapport à $\bar{\mathbf{F}}$:

$$\bar{\mathbf{T}}(\bar{\mathbf{F}}) = \sum_{r=1}^N \frac{c^{(r)}}{2} \left[\mathbf{T}^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) + [\mathbf{T}^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) + \mathbb{L}_t^{(r)} : (\bar{\mathbf{F}} - \bar{\mathbf{F}}^{(r)})] : \frac{\partial \bar{\mathbf{F}}^{(r)}}{\partial \bar{\mathbf{F}}} \right] \quad (\text{II.21})$$

On déduit aisément de cette expression l'estimation des contraintes moyennes par phase. En effet, notant que

$$\bar{\mathbf{T}} = \langle \mathbf{T} \rangle = \sum_{r=1}^N c^{(r)} \langle \mathbf{T} \rangle^{(r)} = \sum_{r=1}^N c^{(r)} \bar{\mathbf{T}}^{(r)} \quad (\text{II.22})$$

on obtient par identification avec (II.21) les contraintes moyennes par phase, $\bar{\mathbf{T}}^{(r)}$:

$$\bar{\mathbf{T}}^{(r)} = \frac{1}{2} \left[\mathbf{T}^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) + [\mathbf{T}^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) + \mathbb{L}_t^{(r)} : (\bar{\mathbf{F}} - \bar{\mathbf{F}}^{(r)})] : \frac{\partial \bar{\mathbf{F}}^{(r)}}{\partial \bar{\mathbf{F}}} \right] \quad (\text{II.23})$$

Il est intéressant de noter que $\bar{\mathbf{T}}^{(r)}$ diffère de $\mathbf{T}^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)})$ qui est la contrainte dans la phase (r) associée à la déformation effective $\bar{\mathbf{F}}^{(r)}$ si cette phase était seule.

L'estimation (II.21) de la contrainte macroscopique dépend uniquement des variables $\bar{\mathbf{F}}^{(r)}$ correspondant aux valeurs moyennes des gradients de la transformation sur les phases du composite thermoélastique linéaire de comparaison qui a pour énergie effective \widetilde{W}_τ (II.13). De la définition du problème de thermoélasticité linéaire associée, il vient que les variables $\bar{\mathbf{F}}^{(r)}$ dans l'estimation (II.18) dépendent des modules $\mathbb{L}_t^{(r)}$ du composite thermoélastique linéaire.

Il importe de souligner que les résultats qui viennent d'être présentés étendent au contexte non linéaire, les estimations disponibles en homogénéisation linéaire : borne d'Hashin-Shtrikman (HS), méthode autocohérente (AC). Notons d'ores et déjà que le choix de la borne d'Hashin-Shtrikman (HS) sera précisé ultérieurement.

Ainsi, l'implémentation de la procédure du second ordre requiert uniquement les estimations des moyennes par phases $\bar{\mathbf{F}}^{(r)}$ des gradients de la transformation dans le problème variationnel de thermoélasticité (II.13).

II.3 Cas des matériaux biphasés hyperélastiques à microstructures particulières

Dans cette section comme dans le reste de l'étude, on se place dans le cas des composites biphasés constitués d'inclusions ellipsoïdales dispersées aléatoirement avec une "symétrie ellipsoïdale" [123] et une fraction volumique $c^{(2)} = c$ dans une matrice hyperélastique de densité

d'énergie $W^{(1)}$. La "symétrie ellipsoïdale" de la microstructure signifie que les fonctions de distribution spatiale et de forme des inclusions sont les mêmes, ce qui correspond, dans le cas d'un matériau biphasé, à la représentation de la microstructure de la figure II.2. On suppose, de plus, que les liaisons particules-matrice sont parfaites.

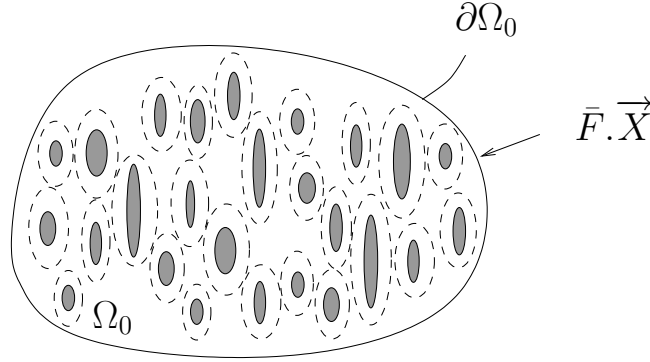


FIG. II.2 - Microstructure à "symétrie ellipsoïdale" pour un composite biphasé (matrice contenant une famille d'inclusions ellipsoïdales)

Résolution du problème de thermoélasticité associé au CLC

Pour les composites biphasés, la procédure de résolution du problème de thermoélasticité (II.13) peut être notablement simplifiée, grâce au théorème de Levin (1967) [70], [68]. En effet, dans ce cas il est connu que les déformations moyennes par phase dépendent uniquement des tenseurs de modules effectifs $\tilde{\mathbb{L}}$ du composite biphasé linéaire thermoélastique associé ayant la même microstructure que le composite non linéaire dans sa configuration non déformée. Dans le cas présent, les tenseurs des modules élastiques, notés $\mathbb{L}^{(1)}$ et $\mathbb{L}^{(2)}$, sont respectivement égaux à $\mathbb{L}_t^{(1)}$ et $\mathbb{L}_t^{(2)}$. Les déformations de référence $\bar{\mathbf{F}}^{(r)}$ sont données par :

$$\bar{\mathbf{F}}^{(r)} = \mathbb{A}^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) : \bar{\mathbf{F}} + \left(\mathbb{A}^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) - \mathbb{I} \right) : (\Delta\mathbb{L})^{-1} : (\Delta\boldsymbol{\tau}); \quad r = 1, 2. \quad (\text{II.24})$$

ou encore par réécriture

$$c^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)} - \bar{\mathbf{F}}) = c^{(2)}(\bar{\mathbf{F}} - \bar{\mathbf{F}}^{(2)}) = (\Delta\mathbb{L})^{-1} : \left(\tilde{\mathbb{L}} - \bar{\mathbb{L}} \right) : \left[(\Delta\mathbb{L})^{-1} : \Delta\boldsymbol{\tau} + \bar{\mathbf{F}} \right] \quad (\text{II.25})$$

dans lequel

$$\Delta\mathbb{L} = \mathbb{L}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) - \mathbb{L}^{(2)}(\bar{\mathbf{F}}^{(2)}), \quad \bar{\mathbb{L}} = c^{(1)}\mathbb{L}^{(1)} + c^{(2)}\mathbb{L}^{(2)} \quad \text{et} \quad \Delta\boldsymbol{\tau} = \boldsymbol{\tau}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) - \boldsymbol{\tau}^{(2)}(\bar{\mathbf{F}}^{(2)}) \quad \text{avec} \\ \boldsymbol{\tau}^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}) = \mathbf{T}^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) - \mathbb{L}^{(r)} : \bar{\mathbf{F}}^{(r)}.$$

Les tenseurs de localisation $\mathbb{A}^{(r)}$ pour le composite thermoélastique linéaire de comparaison sont tels que $\langle \mathbb{A} \rangle = c^{(1)}\mathbb{A}^{(1)} + c^{(2)}\mathbb{A}^{(2)} = \mathbb{I}$ et $\tilde{\mathbb{L}} = c^{(1)}\mathbb{L}^{(1)} : \mathbb{A}^{(1)} + c^{(2)}\mathbb{L}^{(2)} : \mathbb{A}^{(2)}$.

Il en ressort que des estimations du tenseur homogénéisé $\tilde{\mathbb{L}}$ doivent être considérées pour générer des estimations correspondantes de la densité d'énergie macroscopique \tilde{W} .

Schémas d'homogénéisation linéaire utilisés

Compte tenu de la morphologie matrice-inclusions des matériaux considérés dans ce mémoire, la borne d'Hashin-Shtrikman⁴ [53] est considérée pour la résolution du problème fictif de thermoélasticité associé au problème d'homogénéisation non linéaire. L'estimation qui en est déduite pour le composite non linéaire rend compte des interactions entre phases dans le composite. Elle est également connue pour être de bonne qualité pour des fractions volumiques initiales $c^{(2)}$ de particules modérées comme c'est le cas dans toute l'étude.

La borne d'Hashin-Shtrikman est caractérisée par les tenseurs de localisation suivants, obtenus en considérant $\mathbb{L}^{(1)}$ comme tenseur des modules de référence :

$$\mathbb{A}^{(1)} = \left[c^{(1)}\mathbb{I} + c^{(2)}[\mathbb{I} - \mathbb{P} : \Delta\mathbb{L}]^{-1} \right]^{-1}; \quad \mathbb{A}^{(2)} = \left[\mathbb{I} - c^{(1)}\mathbb{P} : \Delta\mathbb{L} \right]^{-1} \quad (\text{II.26})$$

Elle aboutit au tenseur des modules effectifs suivant :

$$\tilde{\mathbb{L}} = \mathbb{L}^{(1)} + c^{(2)} \left[(1 - c^{(2)})\mathbb{P} - (\Delta\mathbb{L})^{-1} \right]^{-1} \quad (\text{II.27})$$

dans lequel le tenseur de Hill $\mathbb{P} = \mathbb{P}^{(1)}$ dépend non seulement de $\mathbb{L}^{(1)}$ et de son anisotropie, mais également de la forme des inclusions :

$$\mathbb{P}^{(1)} = \frac{1}{4\pi \det(\mathbf{Z}_0)} \int_{|\xi|=1} \mathbf{H}^{(1)}(\xi) |\mathbf{Z}_0^{-1}\xi|^{-3} dS \quad (\text{II.28})$$

avec $\mathbb{H}^{(1)}_{ijkl}(\xi) = \mathbf{N}^{(1)}_{ik}\xi_j\xi_l$, $\mathbf{N}^{(1)} = \mathbf{K}^{(1)-1}$, $\mathbf{K}^{(1)}_{ik} = \mathbb{L}^{(1)}_{ijkl}\xi_j\xi_l$.

\mathbf{Z}_0 caractérise la "symétrie ellipsoïdale" de la microstructure (Willis, [123]). Plus précisément, le tenseur \mathbf{Z}_0 est symétrique et dépend de la forme et l'orientation des particules ellipsoïdales dans la configuration de référence. Pour une "symétrie ellipsoïdale" de type Willis, la distribution des particules a les mêmes rapports d'aspect et orientation que les inclusions, ce qui justifie l'utilisation d'un seul tenseur microstructural \mathbb{P} . Il est possible de raffiner le modèle à ce stade en distinguant, à l'instar de Ponte-Castaneda et Willis [101], la fonction de distribution spatiale ellipsoïdale et la fonction permettant de décrire la forme des inclusions. Notons, pour clôturer ce point, que l'essentiel de nos applications sera effectué pour des particules sphériques et dispersées aléatoirement dans une matrice hyperélastique. Dans ce cas, $\mathbf{Z}_0 = \mathbf{I}$, ce qui correspond à une isotropie statistique de distribution spatiale.

A la différence du contexte classique de la thermoélasticité en petites déformations, le tenseur \mathbb{P} n'a plus ici toutes les symétries (majeures et mineures), ceci en raison, principalement, de la non symétrie du tenseur des contraintes et du tenseur des déformations. Suivant en cela Ponte Castaneda et Tiberio [100], les résultats indiqués plus haut peuvent être appliqués dans le contexte de notre étude.

⁴ Selon la nature des inclusions relativement par rapport à la matrice solide, il s'agira de borne supérieure ou inférieure.

Pour être complet, précisons que nous serons parfois amenés à considérer dans ce chapitre et à titre comparatif une borne de type Reuss. Celle-ci correspond au tenseur homogénéisé $\tilde{\mathbb{L}}$ suivant :

$$\tilde{\mathbb{L}}^{-1} = \langle \mathbb{L}^{-1} \rangle = c^{(1)}(\mathbb{L}^{(1)})^{-1} + c^{(2)}(\mathbb{L}^{(2)})^{-1} \quad (\text{II.29})$$

Quant à la borne de Voigt (considérée principalement au chapitre V) elle est retrouvée en considérant comme tenseurs de localisation $\mathbb{A}^{(1)} = \mathbb{A}^{(2)} = \mathbb{I}$.

II.4 Application aux matériaux renforcés par des particules déformables

On s'intéresse maintenant à la mise en œuvre de la méthode du second ordre dans le cas général des particules déformables. Nous renvoyons en annexe C le traitement spécifique du cas des inclusions rigides dont la mise en œuvre peut être simplifiée en évitant la résolution du problème de thermoélasticité lié au CLC [100]. Plus précisément l'étude du composite avec inclusion déformable nécessite au contraire la résolution de ce problème de thermoélasticité fictive (II.13).

II.4.1 Mise en œuvre numérique

Nous venons de voir que l'estimation des contraintes macroscopiques d'un composite hyperélastique biphasé par la méthode du second ordre utilisant la borne inférieure d'Hashin-Shtrikman requiert le calcul du tenseur de Hill \mathbb{P} ainsi que la résolution d'un problème de thermoélasticité. Ainsi, nous nous attachons, dans ce qui suit, à décrire les algorithmes utilisés pour l'implémentation du modèle d'homogénéisation non linéaire obtenu.

II.4.1.1 Calcul numérique du tenseur de Hill \mathbb{P}

Le tenseur \mathbb{P} est un tenseur micro structural qui dépend de la taille, de la forme et de l'orientation des inclusions ainsi que de leur distribution. Dans cette thèse, nous traitons le cas des inclusions ellipsoïdales réparties aléatoirement avec une distribution ellipsoïdale dans une matrice hyperélastique. Ainsi le tenseur \mathbb{P} s'écrit sous la forme (II.28). Le calcul de ce tenseur demande également la détermination du tenseur des modules tangents de la matrice $\mathbb{L}^{(1)}$ qui peut être faite analytiquement par dérivation (cf annexe B.2). Ce tenseur est anisotrope du fait de la non symétrie du gradient de la transformation. Ainsi, le calcul de \mathbb{P} requiert une intégration numérique sur la surface de la sphère unité $|\xi| = 1$. A ce sujet, le lecteur pourra par exemple se référer à [45] et [47]. Une technique d'intégration par points de Gauss utilisant M points d'intégration a alors été mise en œuvre. Le calcul de \mathbb{P} est basé sur la détermination des poids ω_i associés à chaque orientation ξ^i , i variant de 1 à M . Des détails sur cette procédure peuvent

être trouvés dans [8] et [127]. Il s'en suit que le tenseur \mathbb{P} est approximé par :

$$\mathbb{P} = \frac{1}{4\pi \det(\mathbf{Z}_0)} \int_{|\xi|=1} \mathbf{H}^{(1)}(\xi) |\mathbf{Z}_0^{-1} \xi|^{-3} dS = \sum_{r=1}^M \omega_i \frac{\mathbb{H}^{(1)}(\xi^i)}{\det(\mathbf{Z}_0)} |\mathbf{Z}_0^{-1} \xi^i|^{-3} \quad (\text{II.30})$$

Pour le calcul numérique, nous considérons $M = 33$ points d'intégration distribués sur la surface de la demi-sphère unité. Après plusieurs comparaisons de ce calcul numérique avec d'autres calculs effectués grâce au logiciel Maple et une intégration de type Newton-Cotes, ce choix apparaît être un bon compromis entre la précision numérique et le temps de calcul.

Il est important de noter que, du fait de la non symétrie des tenseurs gradient de la transformation et de contrainte, $\mathbb{L}^{(1)}$ et \mathbb{P} ne possède que les symétries majeures. Ainsi, la dimension des espaces à considérer est 9×9 au lieu de 6×6 .

II.4.1.2 Résolution du problème fictif de thermoélasticité sur le CLC

Comme déjà souligné, la mise en œuvre de la méthode du second ordre requiert la résolution d'un problème de thermoélasticité (voir section II.3) qui a pour solution les déformations moyennes par phase $\bar{\mathbf{F}}^{(1)}$ et $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$ du composite linéaire de comparaison biphasé. D'un point de vue pratique, il est seulement nécessaire de déterminer $\bar{\mathbf{F}}^{(1)}$, le tenseur $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$ étant déduit de la relation de moyenne : $\bar{\mathbf{F}} = c^{(1)} \bar{\mathbf{F}}^{(1)} + c^{(2)} \bar{\mathbf{F}}^{(2)}$.

Le système d'équations (II.24) à résoudre pour déterminer $\bar{\mathbf{F}}^{(1)}$ est un système de 9 équations non linéaires dont les inconnues sont les 9 composantes de $\bar{\mathbf{F}}^{(1)}$. En effet, en exprimant $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$ en fonction de $\bar{\mathbf{F}}^{(1)}$ grâce à la relation de moyenne, on a le système d'équations non linéaires suivant dépendant des composantes de $\bar{\mathbf{F}}^{(1)}$:

$$\begin{aligned} \underline{f}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) &= \bar{\mathbf{F}}^{(1)} - \mathbb{A}^{(1)} \bar{\mathbf{F}} + \left(\mathbb{A}^{(1)} - \mathbb{I} \right) \left(\mathbb{L}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) - \mathbb{L}^{(2)}(\bar{\mathbf{F}}^{(2)}) \right)^{-1} \\ &: \left(\boldsymbol{\tau}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) - \boldsymbol{\tau}^{(2)}(\bar{\mathbf{F}}^{(2)}) \right) = \underline{\mathbf{0}} \end{aligned} \quad (\text{II.31})$$

avec $\boldsymbol{\tau}^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) = \mathbf{T}^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) - \mathbb{L}^r(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) : \bar{\mathbf{F}}^{(r)}$.

La résolution de ce système est effectuée à l'aide d'une méthode de Newton-Raphson.

Du fait de l'absence d'expression analytique pour le tenseur \mathbf{P} , le calcul de la jacobienne du système, requise dans la résolution de type Newton-Raphson, ne peut pas être fait analytiquement. Ainsi, une dérivation numérique par différences finies centrées a été réalisée pour chacun des 81 termes de la jacobienne du système. Afin d'avoir une bonne précision de calcul à ce niveau, une méthode de Ridders-Richardson a été mise en œuvre. Cette méthode est basée sur un algorithme dans lequel un contrôle et une optimisation des erreurs numériques sont faits à chaque pas de la procédure de dérivation. Plus de détails au sujet de cette procédure numérique peuvent être trouvés dans [103]. Une fois la résolution du problème effectuée, il est possible de

déterminer les contraintes macroscopiques :

$$\begin{aligned} \bar{\mathbf{T}}(\bar{\mathbf{F}}) = \frac{1-c}{2} & \left[\mathbf{T}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) + [\mathbf{T}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) + \mathbb{L}^1(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) : (\bar{\mathbf{F}} - \bar{\mathbf{F}}^{(1)})] : \frac{\partial \bar{\mathbf{F}}^{(1)}}{\partial \bar{\mathbf{F}}} \right] \\ & + \frac{c}{2} \left[\mathbf{T}^{(2)}(\bar{\mathbf{F}}^{(2)}) + [\mathbf{T}^{(2)}(\bar{\mathbf{F}}^{(2)}) + \mathbb{L}^2(\bar{\mathbf{F}}^{(2)}) : (\bar{\mathbf{F}} - \bar{\mathbf{F}}^{(2)})] : \frac{\partial \bar{\mathbf{F}}^{(2)}}{\partial \bar{\mathbf{F}}} \right] \end{aligned} \quad (\text{II.32})$$

ce qui nécessite à nouveau, une dérivation numérique de $\bar{\mathbf{F}}^{(1)}$ et $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$ par rapport à $\bar{\mathbf{F}}$.

II.4.1.3 Implémentation pour un essai de traction uniaxiale

Le gradient de la transformation macroscopique associé à un chargement de traction uniaxiale s'écrit sous la forme :

$$\bar{\mathbf{F}} = \text{Diag}(\lambda(t), \alpha(t), \alpha(t))$$

où λ croît à partir de 1.0 et t correspond à un temps fictif. Comme le contrôle du chargement de traction uniaxiale appliqué au composite s'effectue en déformation pour appliquer la méthode d'homogénéisation du second ordre, pour un λ donné, il faut déterminer la valeur de α qui remplit la condition de traction uniaxiale suivante :

$$\bar{\mathbf{T}} = \text{Diag}(T_{11}(t), 0, 0)$$

Dans ce travail, le composite est traité de façon compressible, ainsi la condition précédente ne peut être vérifiée qu'en utilisant une procédure itérative dans la mesure où, contrairement au cas incompressible, aucune relation explicite ne lie α à λ . Pour cela, nous considérons un algorithme de dichotomie qui, après convergence, fournit la valeur adéquate de α pour un λ donné.

A titre illustratif, l'algorithme utilisé pour simuler un essai de traction uniaxiale est décrit sur la figure II.3. Afin de commencer le processus itératif de dichotomie, nous supposons que le tenseur du gradient de la transformation macroscopique est proche de l'état incompressible. Ainsi, nous considérons $\bar{\mathbf{F}}_1 = \text{Diag}(\lambda, \alpha_1, \alpha_1)$ et $\bar{\mathbf{F}}_2 = \text{Diag}(\lambda, \alpha_2, \alpha_2)$ avec $\alpha_1 = \frac{1}{\sqrt{\lambda}} - \Delta$, $\alpha_2 = \frac{1}{\sqrt{\lambda}} + \Delta$ où Δ est une incertitude. Les tenseurs des contraintes macroscopiques $\bar{\mathbf{T}}_1(\bar{\mathbf{F}}_1)$ et $\bar{\mathbf{T}}_2(\bar{\mathbf{F}}_2)$ sont calculés comme décrit dans les **étape 2** et **étape 3**. Il convient de noter que cette algorithme de résolution reste également valable pour tout chargement plan.

Notons de plus que si on considère des chargements dont le tenseur de transformation macroscopique est entièrement connu, seules les **étape 2** et **étape 3** seront considérées car le processus de dichotomie n'est alors plus nécessaire.

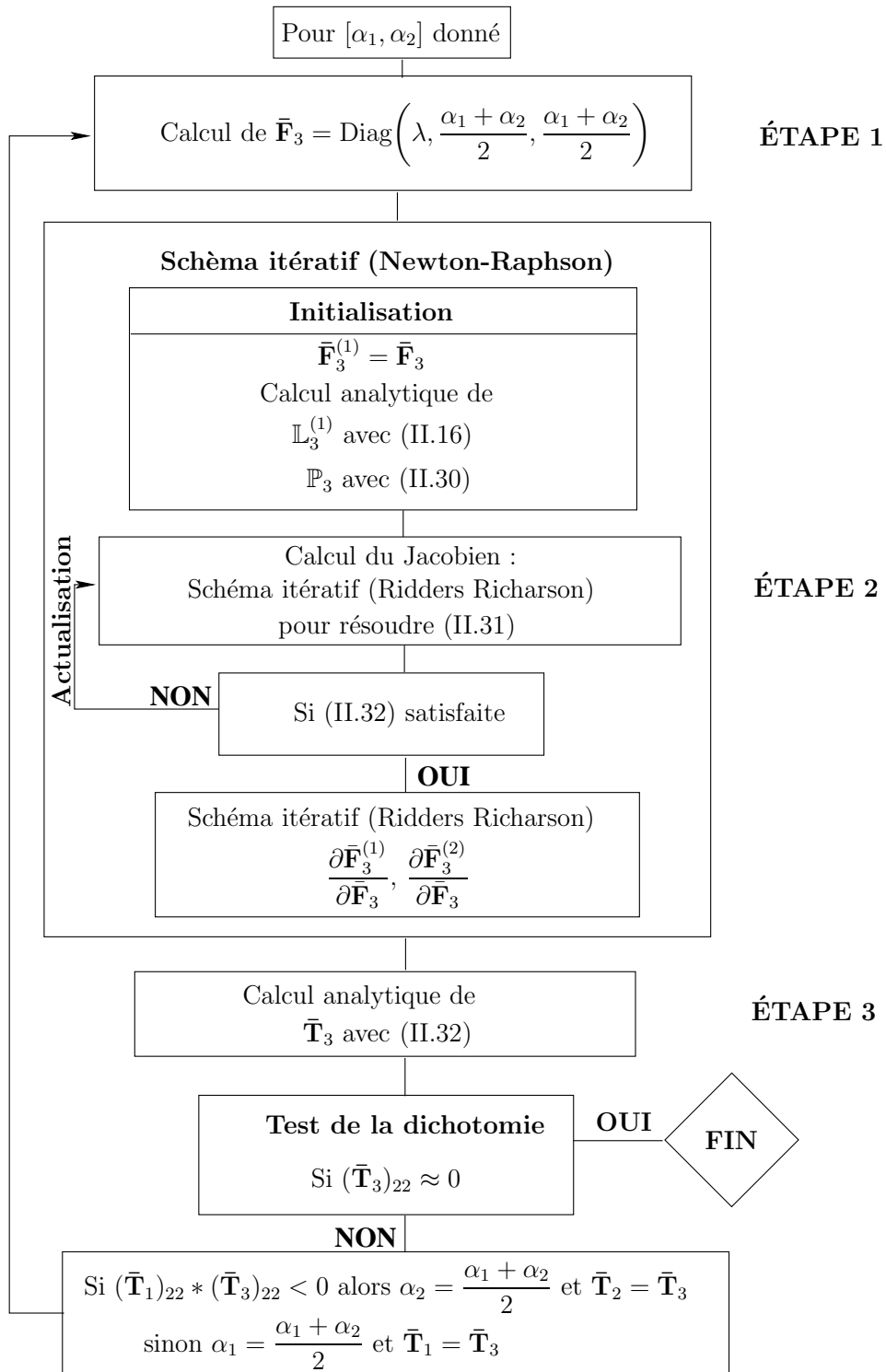


FIG. II.3 - Algorithme de mise en œuvre de la méthode du second ordre dans le cas de particules déformables

II.4.2 Illustrations des prédictions du modèle micromécanique

La mise en œuvre de la méthode du second ordre dans le cas d'inclusions déformables nécessite naturellement de préciser le choix des densités d'énergie de déformation associées respectivement à la matrice et aux particules. Ayant à l'esprit de procéder au chapitre III à une évaluation du modèle par comparaison avec des calculs par éléments finis, nous considérons des densités d'énergie de déformation disponibles dans le logiciel qui sera utilisé, en l'occurrence Abaqus. Nous considérons alors pour la matrice une densité d'énergie de déformation compressible associée aux matériaux hyperélastiques de Mooney-Rivlin (voir [1]) :

$$W^{(1)}(\mathbf{F}) = C_{10}(\bar{I}_1 - 3) + C_{01}(\bar{I}_2 - 3) + \frac{1}{D_1}(J - 1)^2 \quad (\text{II.33})$$

où $J = \det(\mathbf{F}) = \sqrt{I_3}$, $\bar{I}_1 = J^{-2/3}I_1$, $\bar{I}_2 = J^{-4/3}I_2$. Notons que dans le cas limite des petites déformations, cette classe de matériaux peut être vue comme isotrope linéaire avec un module de compressibilité initial $K = \frac{2}{D_1}$ et un module de cisaillement initial $\mu = 2(C_{10} + C_{01})$. Tandis que pour les inclusions, on choisit un modèle hyperélastique de type Néo-Hookéen :

$$W^{(2)}(\mathbf{F}) = C'_{10}(\bar{I}_1 - 3) + \frac{1}{D'_1}(J - 1)^2 \quad (\text{II.34})$$

Ce choix permet de traiter aisément le cas des particules rigides en choisissant C'_{10} très grand et D'_1 très petit. Nous verrons au chapitre V qu'il permet aussi de décrire les pores en prenant cette fois une valeur très petite pour C'_{10} et D'_1 très grand. Notons également que dans le cas limite des petites perturbations, le comportement du matériau décrit par (II.34) est linéaire et isotrope avec un module de compressibilité initiale $K' = \frac{2}{D'_1}$ et un module de cisaillement initial $\mu' = 2C'_{10}$.

La figure II.4 présente le contraste entre les comportements en traction uniaxiale (contrainte nominale T_{11} en fonction de F_{11}) de la matrice et des particules considérées pour les applications ci dessous. Les paramètres matériaux pour la matrice sont : $C_{10} = C_{01} = 1 \text{ MPa}$ et $D_1 = 2/3 \text{ MPa}^{-1}$. En ce qui concerne les particules, choisies sphériques dans les applications présentées ici, les valeurs suivantes ont été adoptées : $C'_{10} = 5 \text{ MPa}$ et $D'_1 = 0.8 \text{ MPa}^{-1}$.

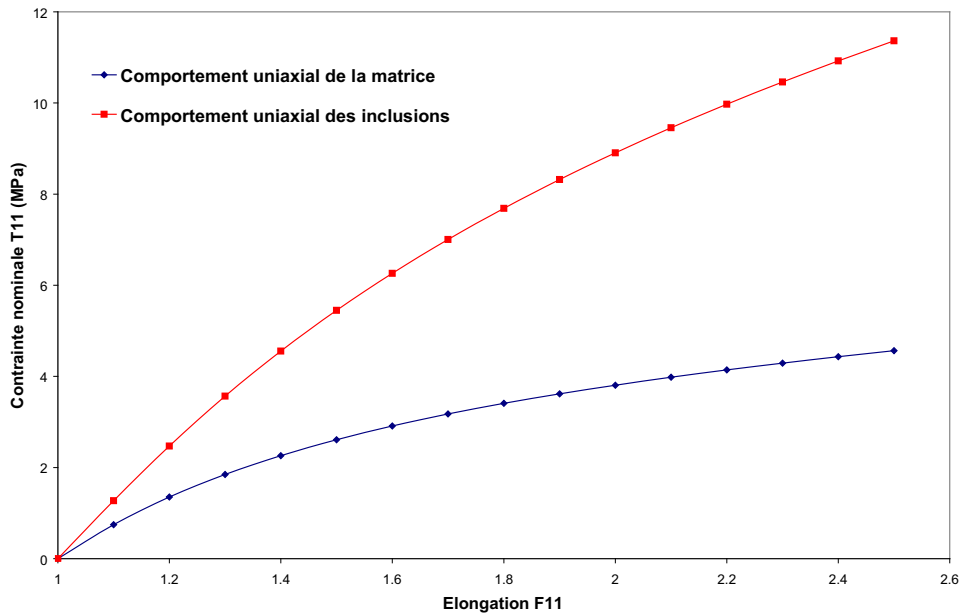


FIG. II.4 - Réponse uniaxiale de la matrice et des particules considérées.

Afin d'évaluer les effets du renforcement, plusieurs fractions volumiques de particules ont été considérées pour les calculs : 5%, 10%, 15% et 25%. On présente les réponses macroscopiques associées aux chargements considérés (voir tableau II.1) et prédites par la méthode du second ordre.

Chargement	Gradient de la transformation macroscopique associé
Extension simple	$\bar{\mathbf{F}} = \text{Diag}(\lambda(t), 1, 1)$ $\lambda(t)$ variant de 1 à 2.7
Compression simple	$\bar{\mathbf{F}} = \text{Diag}(\lambda(t), 1, 1)$ $\lambda(t)$ variant de 1 à 0.2
Traction uniaxiale	$\bar{\mathbf{F}} = \text{Diag}(\lambda(t), \alpha(t), \alpha(t))$ $\lambda(t)$ variant de 1 à 2.7

TAB. II.1 - Définition des chargements étudiés

i- Traction uniaxiale

La figure II.5 illustre la courbe contrainte uniaxiale nominale T_{11} - élongation F_{11}) prédite pour différentes fractions volumiques de renforts sphériques déformables. On rappelle que le schéma

d'homogénéisation linéaire utilisé pour la résolution du problème fictif de thermoélasticité est la borne d'Hashin-Shtrikman. On observe clairement un effet du renforcement de la matrice par les particules déformables mais suffisamment rigides par rapport à la matrice.

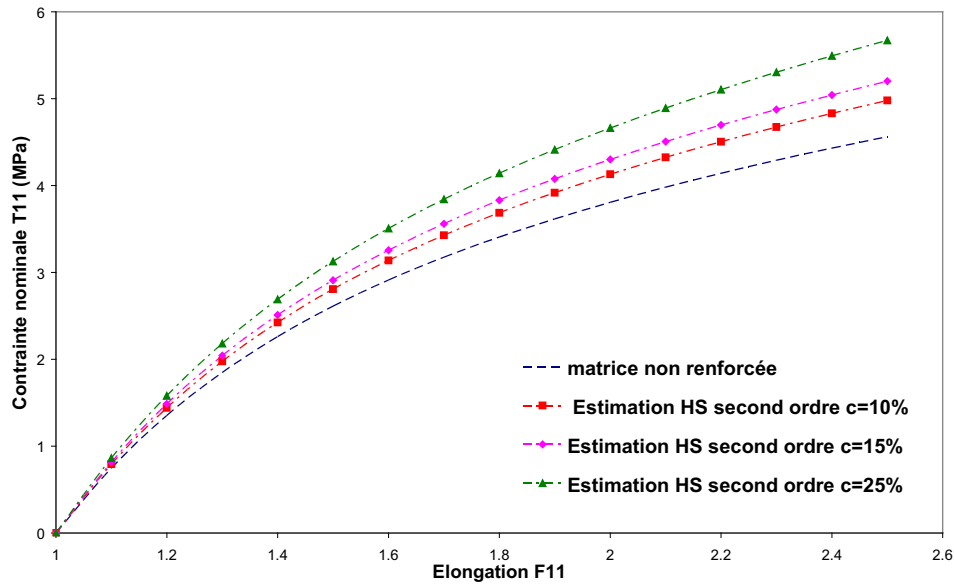


FIG. II.5 - Prédications par le modèle basé sur le schéma d'Hashin-Shtrikman de la contrainte nominale T_{11} en traction uniaxiale pour différents taux de renforts déformables sphériques

ii- Extension et compression simples

Après avoir observé l'effet de renforcements des particules sphériques déformables sur la réponse du matériau en traction uniaxiale, on s'intéresse maintenant à des chargements d'extension simple et de compression simple. Ce type de chargement avait également été considéré par Lahellec [63] dans le contexte de composites hyperélastiques périodiques.

La réponse en contrainte à ce type de chargement est alors de la forme : $\bar{\mathbf{T}} = \text{Diag}(T_{11}, T_{22}, T_{22})$. A titre illustratif, nous présentons, pour différents taux de renforts, uniquement les contraintes T_{11} , pour l'extension simple, sur la figure II.6 et pour la compression simple sur la figure II.7. Ainsi, nous pouvons noter une confirmation de l'effet de renforcement des particules pour ces deux types de chargement.

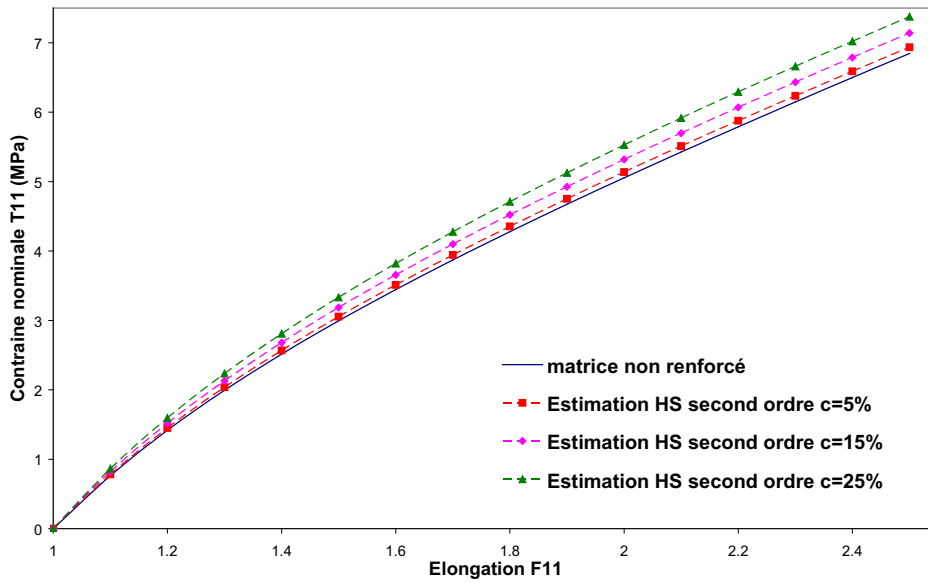


FIG. II.6 - Prédications par le modèle basé sur le schéma d'Hashin-Shtrikman de la contrainte nominale T_{11} en **extension simple** pour différents taux de renforts déformables sphériques

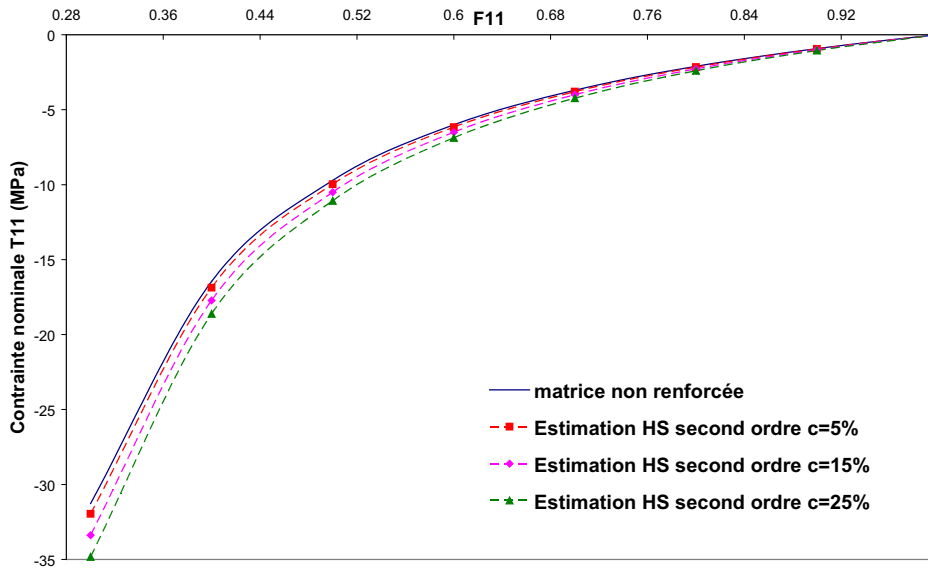


FIG. II.7 - Prédications par le modèle basé sur le schéma d'Hashin-Shtrikman de la contrainte nominale T_{11} en **compression simple** pour différents taux de renforts déformables sphériques

iii- Cas des particules rigides

Comme précédemment indiqué, la modélisation du comportement du composite renforcé par des particules rigides peut être abordée à travers les cas limites des paramètres décrivant la densité Neo-Hookéenne modélisant le comportement des particules déformables. On rappelle qu'un traitement spécifique du cas rigide, présenté en Annexe C. Il consiste à introduire directement dans la méthode du second ordre l'hypothèse de particules rigides et à mener les calculs pour obtenir une estimation spécifique. A nouveau, l'avantage de ce traitement réside dans le fait qu'on évite la résolution numérique du problème de thermoélasticité associé au composite linéaire de comparaison. Nous comparons ici les 2 approches, ce qui permet aussi de valider l'implémentation numérique qui a été faite dans le présent chapitre. La figure II.8 représente les réponses globales du matériau renforcé par des particules rigides prédites par le modèle basé sur la borne d'Hashin-Shtrikman pour un chargement de traction uniaxiale. Les résultats illustrent clairement le très bon accord entre les 2 approches.

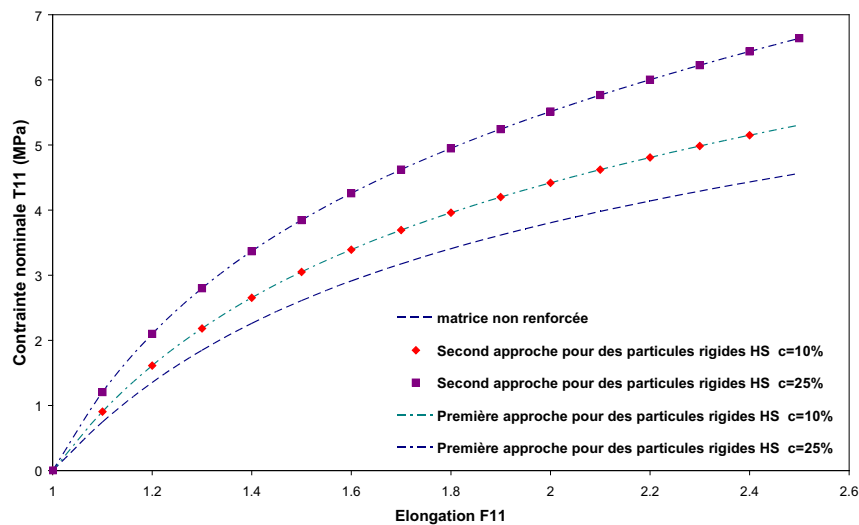


FIG. II.8 - Prédications du modèle d'Hashin-Shtrikman de la contrainte nominale T_{11} pour les 2 approches de modélisation des renforts rigides

En fait, une étude de sensibilité a été menée permettant de conclure que, pour $D'_1 < 10^{-3} MPa^{-1}$ et $C'_{10} \geq 1000 MPa$, la densité néo-Hookéenne permet de retrouver les résultats de la méthode du second avec prise en compte direct de l'hypothèse de particules rigides.

II.5 Conclusions

Le comportement non linéaire de matériaux hyperélastiques renforcés a été modélisé grâce à l'approche d'homogénéisation non linéaire dite du second ordre. Le cadre d'étude tridimensionnel proposé est assez général : les inclusions considérées sont sphéroïdales et déformables. Nous avons procédé à la mise en œuvre de ce modèle micromécanique dont certains aspects algorithmiques liés à l'implémentation numérique 3D ont été décrits en détail.

Le modèle a été appliqué afin de quantifier, pour différents chargements, les effets du renforcement des particules pour des fractions volumiques allant de 5% à 25%. Le cas des particules rigides a fait l'objet d'un traitement particulier présenté en Annexe C. On vérifie que le modèle avec particules déformables permet de le retrouver.

Il reste désormais à procéder à une évaluation rigoureuse de ce modèle micromécanique par une comparaison avec des solutions obtenues par simulation éléments finis sur cellule (chapitre III) et à sa validation par comparaison avec des données expérimentales (chapitre IV).

Chapitre III

Vérification des prédictions du modèle d'homogénéisation par comparaison avec des simulations éléments finis

Ce chapitre vise à proposer une première évaluation/vérification rigoureuse des prédictions du modèle d'homogénéisation basé sur la méthode du second ordre. Sur ce point, on peut également se référer à Bouchart *et al.* [20], [19]. Cette évaluation repose sur des comparaisons avec des solutions de référence obtenues par calculs par éléments finis (EF) sur cellule. L'intérêt de cette comparaison réside dans le fait que l'on adopte, aussi bien dans les calculs par éléments finis que dans le modèle micromécanique, les mêmes hypothèses sur les lois de comportement locales des constituants. De plus, on suppose une adhérence parfaite entre les particules et la matrice dans les 2 types de calcul.

On expose d'abord la démarche suivie pour les simulations EF sur cellule. Puis on compare les réponses globales et moyennes par phase du modèle d'homogénéisation aux solutions éléments finis en se plaçant essentiellement dans le cas où les renforts sont des particules sphériques déformables. Les chargements considérés sont la traction uniaxiale, l'extension simple et la compression simple. Enfin, dans le cadre de la vérification numérique proposée, on complète l'étude en s'intéressant aux effets de forme des particules. La dernière section du chapitre est consacrée à l'analyse de l'évolution de la microstructure (évolution réversible de la fraction volumique et de la forme des particules) pour laquelle les prédictions du modèle sont comparées aux résultats du calcul par éléments finis.

III.1 Présentation des simulations éléments finis

Les solutions de référence sont obtenues en considérant une cellule cylindrique à base circulaire qui est une approximation souvent utilisée en homogénéisation périodique pour approcher une cellule cylindrique à base hexagonale (voir par exemple [7], [30], [73]) (voir figure III.1).

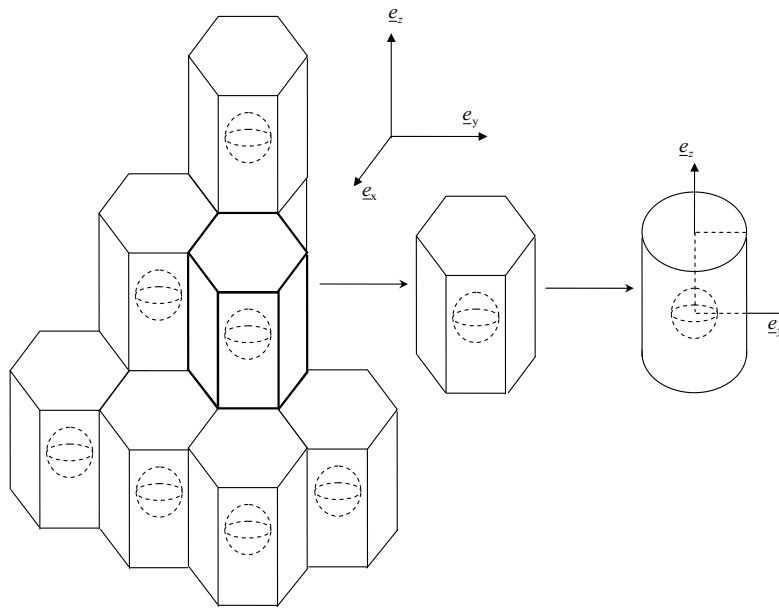


FIG. III.1 - Un réseau périodique d'hexagones renforcés par des sphères. Approximation de la cellule unitaire hexagonale par une cellule cylindrique axisymétrique.

Ainsi, l'espace est supposé constitué de prismes à base hexagonale représentant la matrice, chaque prisme étant renforcé par une inclusion ellipsoïdale en son centre. En tirant profit de la symétrie de la cellule de base, le prisme est approximé par un cylindre. La cellule unité se réduit alors à une cellule axisymétrique, ce qui est d'autant plus justifié pour les chargements axisymétriques considérés dans cette étude. Cette manière de procéder est similaire à ce qui s'est fait dans de nombreux travaux dont par exemple [30], [73]. On notera en particulier que dans le cadre de l'élastoplasticité, une vérification de cette démarche a été fournie dans [73] qui a réalisé une comparaison des réponses obtenues à partir de simulations sur une cellule tridimensionnelle contenant des particules aléatoirement réparties avec celles obtenues pour la cellule axisymétrique. De plus, en tenant compte des symétries du problème, il est possible de considérer uniquement un quart de section (voir figure III.2).

Les simulations EF ont été réalisées en utilisant le logiciel commercial Abaqus. La cellule de base utilisée contient des éléments de type CAX8R (quadrilatères axisymétriques biquadratiques à 8 nœuds, avec intégration réduite). Ce type de cellule de base a déjà été utilisé par Doghri et Ouair [38] afin de valider les résultats de leur code d'homogénéisation DIGIMAT[®]. La démarche suivie

ici s'appuie sur ces travaux.

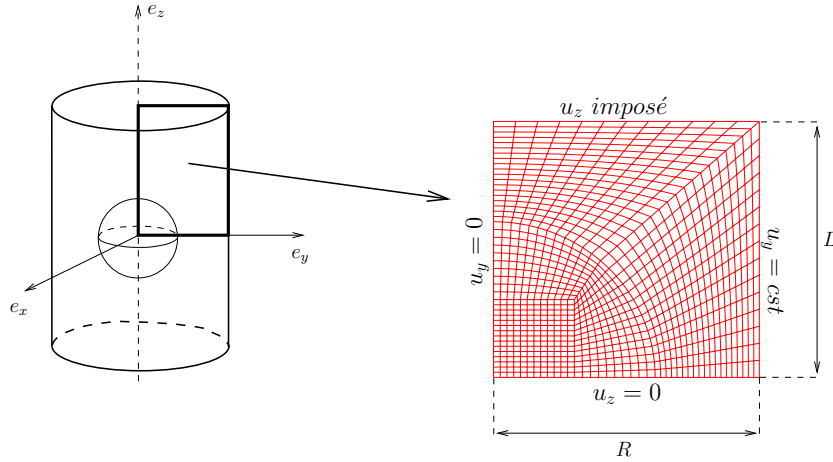


FIG. III.2 - Cellule de base pour les simulations EF

Les conditions aux frontières utilisées pour simuler un essai de traction uniaxiale sont les suivantes :

- $U_z(y, 0) = 0, 0 < y < R$
- $U_z(y, L) = U_z \text{ imposé}, 0 < y < R$
- $U_y(0, z) = 0, 0 < z < L$
- $U_y(R, z)$ est contraint à être identique sur le bord $y=R$ ($0 < z < L$)

Pour d'autres chargements qui devront évidemment être axisymétriques, il suffit d'adapter les déplacements imposés tout en conservant les conditions de symétries.

Les calculs par éléments finis Abaqus fournissent des champs de contraintes et de déformations, hétérogènes par nature, dans la cellule de base. Dans la perspective d'une comparaison aux prédictions en champs moyens du modèle d'homogénéisation, nous calculons les moyennes volumiques globales et par phases de ces champs mécaniques par un post-traitement grâce à un script Python. En effet, le gradient de déformation macroscopique $\bar{\mathbf{F}}$ et les contraintes nominales macroscopiques $\bar{\mathbf{T}}$ sont déterminés à partir de leurs valeurs à chaque point d'intégration sur le volume par :

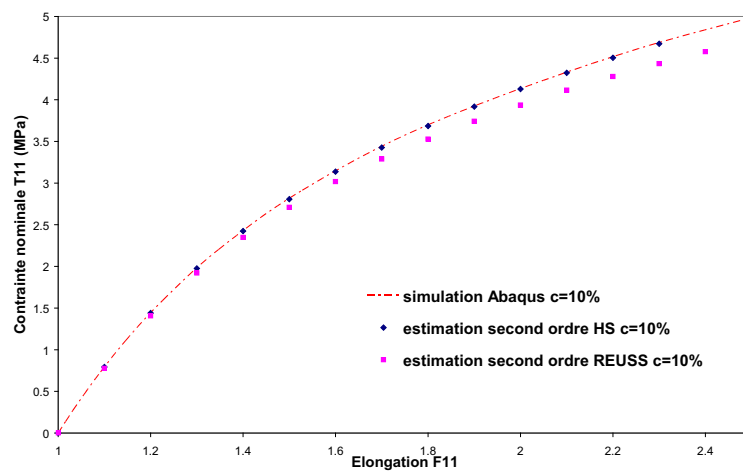
$$\bar{\mathbf{T}} = \frac{1}{V_0} \sum_{i=1}^{NPI} T_i V_i \quad ; \quad \bar{\mathbf{F}} = \frac{1}{V_0} \sum_{i=1}^{NPI} F_i V_i \quad (\text{III.1})$$

où T_i est la contrainte et F_i la déformation agissant au point d'intégration i , V_i est le volume représentatif du point d'intégration i et NPI est le nombre de points d'intégration dans le volume de l'ensemble de la cellule. Une démarche similaire peut être appliquée pour le calcul des grandeurs moyennes par phase en ne considérant que les points d'intégration appartenant à la phase considérée.

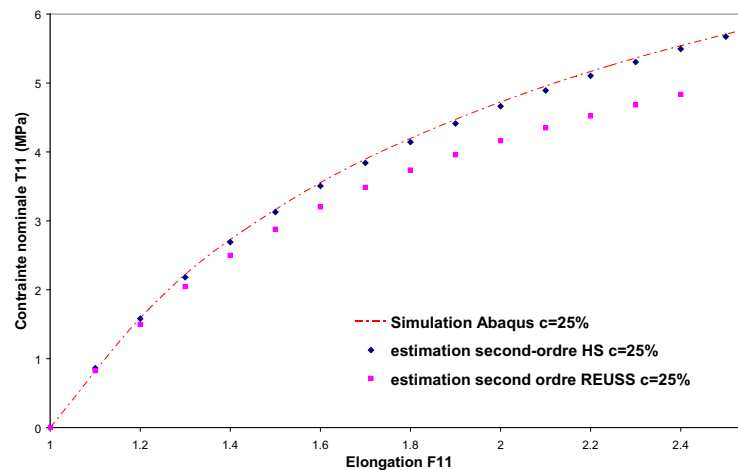
III.2 Comparaisons entre les prédictions de l'approche d'homogénéisation et les résultats des simulations éléments finis

A l'instar de l'étude menée au chapitre précédent, nous considérons pour la matrice et les particules, les densités d'énergie de déformation respectivement définies par (II.33) et (II.34). Les comparaisons des prédictions respectives issues des deux approches concernent différentes fractions volumiques de particules déformables et deux types de chargements pilotés en déformation.

III.2.1 Chargement de traction uniaxiale



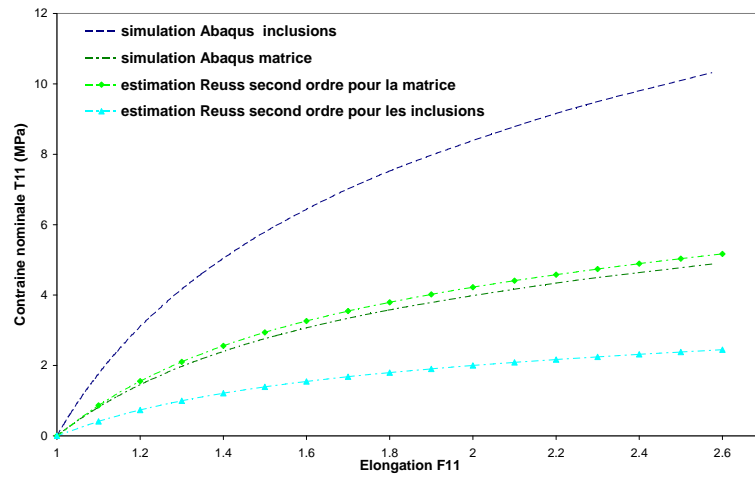
(a) fraction volumique de particules de 10%



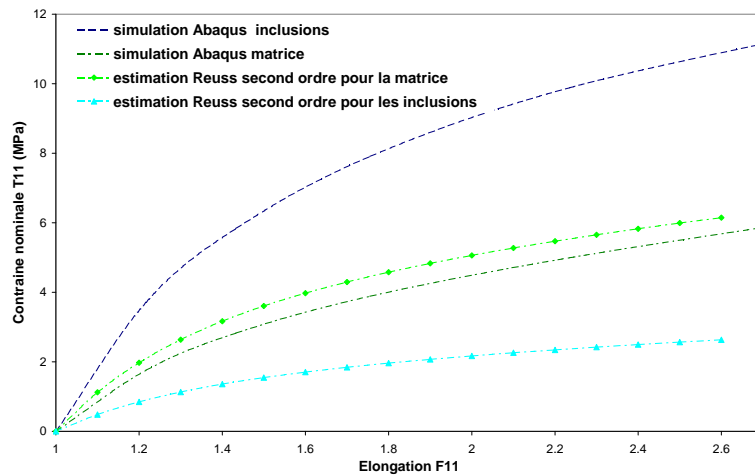
(b) fraction volumique de particules de 25%

FIG. III.3 - Prédications de T_{11} par les modèles d'Hashin-Shtrikman et Reuss en **traction uniaxiale** comparées aux réponses numériques pour le composite contenant des particules sphériques **déformables**

L'observation des résultats (figure III.3) indique que pour une valeur donnée de déformation, le modèle de Reuss sous-estime les contraintes macroscopiques comparativement aux résultats EF. Ceci est peu surprenant en raison de la simplicité du schéma d'homogénéisation. On note en revanche un très bon accord entre les prédictions de la méthode d'homogénéisation basée sur le schéma d'Hashin-Shtrikman (HS) et les solutions numériques éléments finis. Cet accord illustre les bonnes capacités prédictives du modèle proposé et son aptitude à rendre compte simultanément de l'effet du renforcement et la non linéarité du comportement du composite.



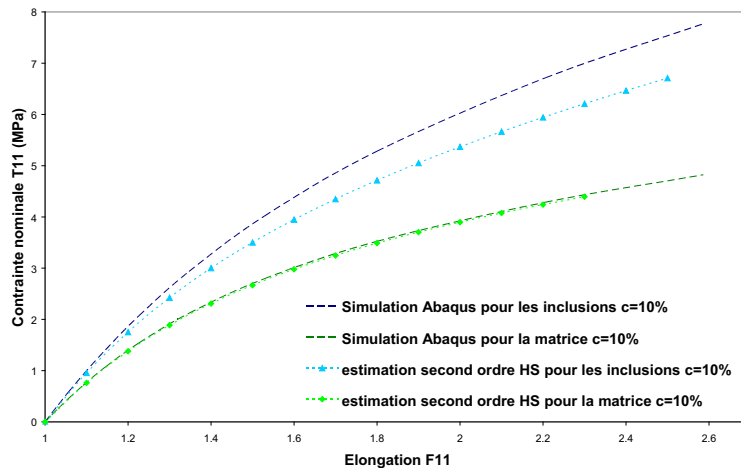
(a) fraction volumique de particules de 10%



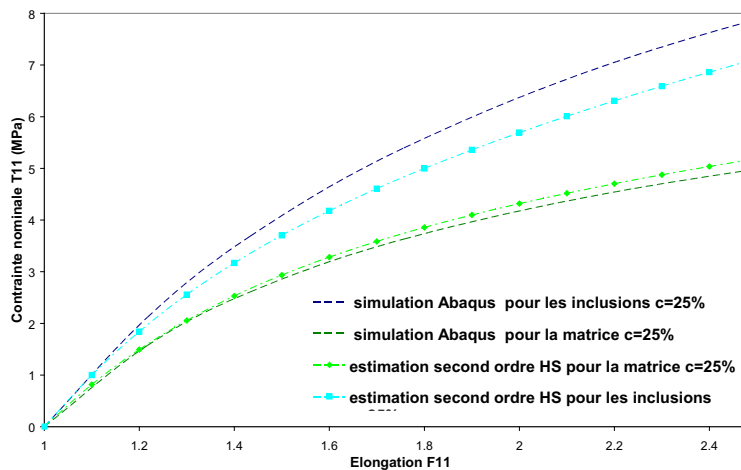
(b) fraction volumique de particules de 25%

FIG. III.4 - Prédictions en **traction uniaxiale** des contraintes moyennes par phase du modèle de Reuss comparées aux réponses numériques pour le composite contenant des particules sphériques **déformables**

Pour une interprétation précise des performances respectives des deux schémas d'homogénéisation précités, il convient d'analyser leurs prédictions en terme de champs locaux (contraintes moyennes par phases) dans la matrice et dans les renforts. S'agissant du schéma de Reuss, les comparaisons modèle/simulations éléments finis des champs locaux sont montrées sur les figures III.4(a) et III.4(b). On observe que ce schéma sous estime largement la contrainte moyenne de la phase inclusionnaire, la réponse en contraintes des particules étant même plus souple que celle de la matrice. Les prédictions dans la matrice sont plutôt raisonnables.



(a) fraction volumique de particules de 10%



(b) fraction volumique de particules de 25%

FIG. III.5 - Prédications en **traction uniaxiale** des contraintes moyennes par phase du modèle d'Hashin-Shtrikman comparées aux réponses numériques pour le composite contenant des particules sphériques **déformables**

Les figures III.5(a) et III.5(b) concernent le même type de résultats mais avec un schéma de

type Hashin-Shtrikman. On note un relatif bon accord sur les contraintes locales entre le modèle d'homogénéisation et les résultats éléments finis, même si le modèle semble être moins précis pour la phase inclusionnaire lorsqu'une elongation importante est appliquée sur le matériau à forts taux de renforts. Notons, que compte tenu des fractions volumiques de particules, ceci n'affecte pas de manière significative le comportement macroscopique du matériau.

III.2.2 Sur l'hétérogénéité intraphase

Dans cette section, on se propose de compléter les résultats de la sous section III.2.1 en effectuant une analyse de la distribution des déformations. On considère un niveau de déformation macroscopique important, $\bar{\mathbf{F}}_{11} = 3.5$, qui permet d'illustrer la forte hétérogénéité de ces déformations. Sur les figures III.6 et III.7 sont présentées les cartes des déformations longitudinales et latérales pour une fraction volumique de 25% de particules respectivement déformables ou rigides. Outre le caractère hétérogène des déformations, on note dans les deux résultats de calcul une concentration marquée des déformations au pôle de la particule. A ce niveau de déformation macroscopique donnée, cette localisation semble plus marquée pour le cas des particules rigides que pour celui des particules déformables. Ces constatations peuvent expliquer les différences observées précédemment, au niveau local, entre les prédictions du modèle d'homogénéisation et les simulations éléments finis, la méthode du second ordre ne prenant en compte que de manière grossière les hétérogénéités des champs mécaniques à l'intérieur des phases.

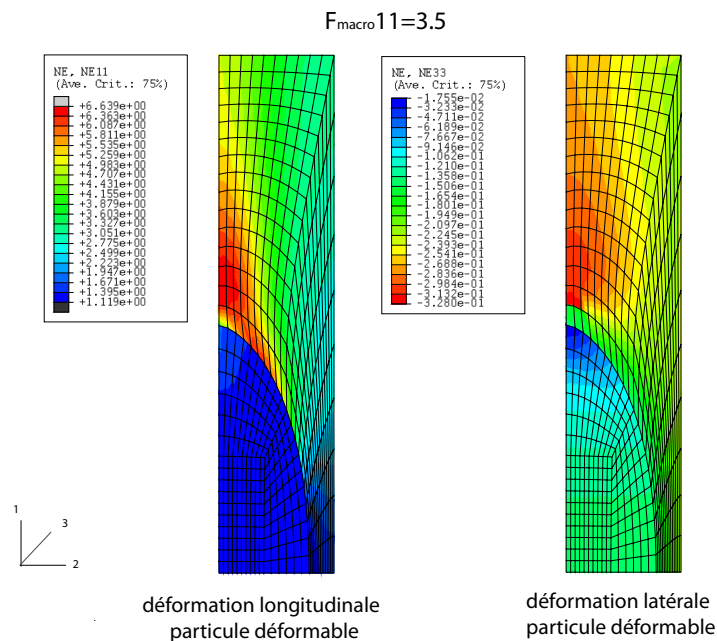


FIG. III.6 - Distribution des déformations longitudinales et latérales en traction uniaxiale pour une elongation macroscopique $\bar{\mathbf{F}}_{11} = 3.5$ et une fraction volumique de particules **déformables** de 25%

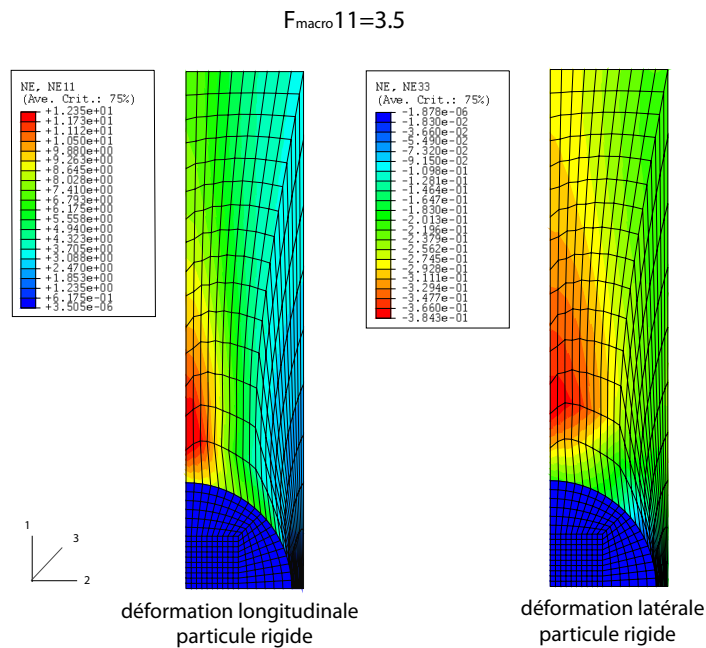


FIG. III.7 - Distribution des déformations longitudinales et latérales en traction uniaxiale pour une elongation macroscopique $\bar{F}_{11} = 3.5$ et une fraction volumique de particules **rigides** de 25%

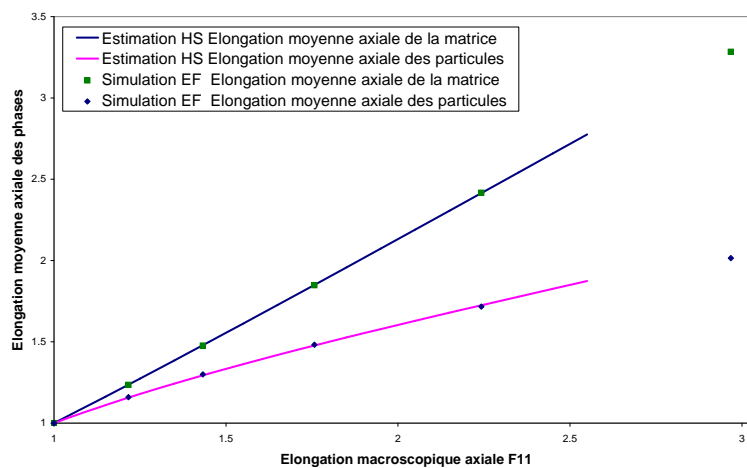


FIG. III.8 - Comparaisons des résultats éléments finis et du modèle d'Hashin-Shtrikman pour les déformations longitudinales moyennes par phase et une fraction volumique de particules **déformables** de 25%

Malgré cette hétérogénéité de la déformation, il peut s'avérer instructif de comparer la moyenne par phase de ces déformations aux prédictions du modèle d'homogénéisation. La comparaison montre une très bonne concordance pour les déformations longitudinales (cf. figure

III.8). On observe qu'elle est moins satisfaisante pour les déformations latérales (cf. figure III.9). L'écart étant essentiellement sur la déformation des particules, son impact est négligeable à l'échelle macroscopique du fait des fractions volumiques de renforts mises en jeu.

En conclusion, on peut faire état d'un accord remarquable sur les valeurs moyennes des champs de déformations par phase dont le modèle rend bien compte malgré l'hétérogénéité de ces champs.

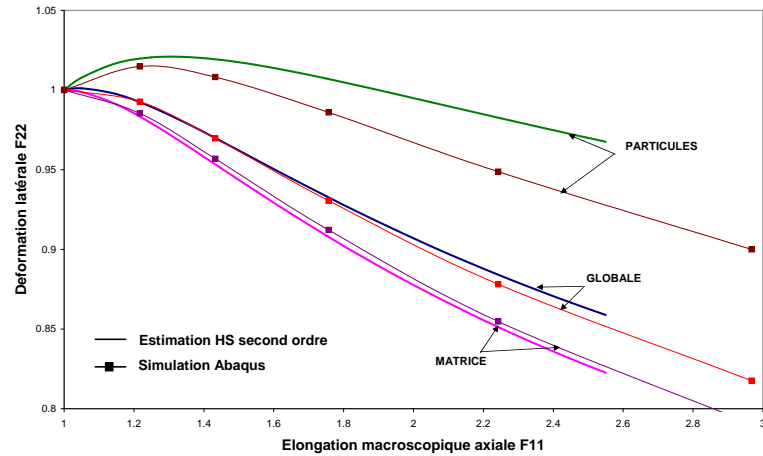


FIG. III.9 - Comparaisons des résultats éléments finis et du modèle d'Hashin-Shtrikman pour les déformations latérales moyennes par phase et une fraction volumique de particules **déformables** de 25%

III.2.3 Chargements d'extension et de compression simple

Dans cette sous section, on se propose de poursuivre la vérification numérique du modèle associé au schéma d'Hashin-Shtrikman qui s'est avéré concordant avec les simulations éléments finis en traction uniaxiale, ceci même pour un contraste infini entre matrice et particules. Les chargements considérés sont l'extension puis la compression simple.

Pour l'extension, les conditions aux limites en déplacement considérées dans la simulation EF sont les mêmes que pour la traction uniaxiale mais on impose en plus un déplacement latéral nul. La fraction volumique de renforts est prise égale à 25%. On présente, sur les figures III.10 et III.11 les comparaisons entre les prédictions du modèle et les solutions éléments finis correspondantes. A nouveau, on observe une bonne performance du modèle basé sur le schéma d'Hashin-Shtrikman, ceci aussi bien pour la contrainte axiale T11 que pour la contrainte latérale T22.

Les figures III.12 et III.13 montrent les courbes de variation de la contrainte nominale de compression T11 et de la contrainte nominale T22 correspondant à la condition de déplacement latéral nul. Les bonnes capacités de prédiction du comportement macroscopique par le modèle sont à nouveau observées. Ces prédictions semblent tout à fait remarquables, même pour de forts niveaux de compression.

On fournit, en Annexe D, les comparaisons des contraintes moyennes par phase pour les deux types de chargement. Pour la matrice, une assez bonne concordance des prédictions avec les solutions EF est observée. On note un certain écart pour ce qui concerne la phase inclusionnaire, avec peu de conséquence majeure sur les prédictions du comportement macroscopique du composite.

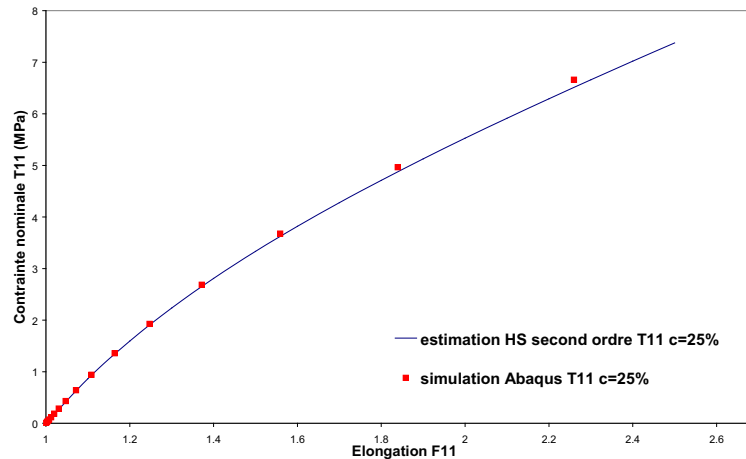


FIG. III.10 - Prédiction de la contrainte nominale T_{11} par le modèle d'Hashin-Shtrikman comparées en *extension simple* aux réponses numériques pour le composite contenant 25% de particules sphériques déformables

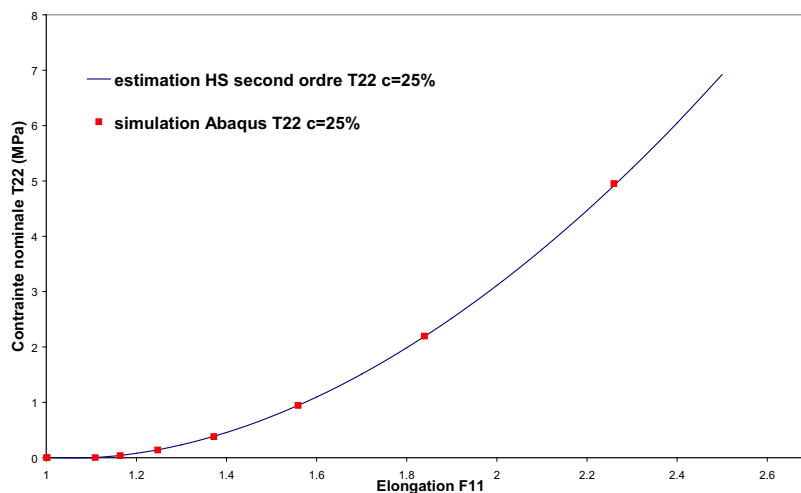


FIG. III.11 - Prédiction de la contrainte nominale T_{22} par le modèle d'Hashin-Shtrikman comparées en *extension simple* aux réponses numériques pour le composite contenant 25% de particules sphériques déformables

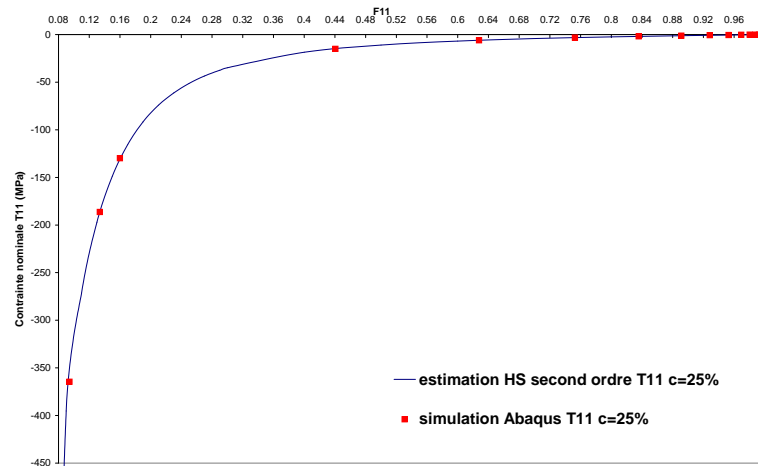


FIG. III.12 - Prédiction de la contrainte nominale T_{11} par le modèle d'Hashin-Shtrikman comparées en **compression simple** aux réponses numériques pour le composite contenant 25% de particules sphériques **déformables**

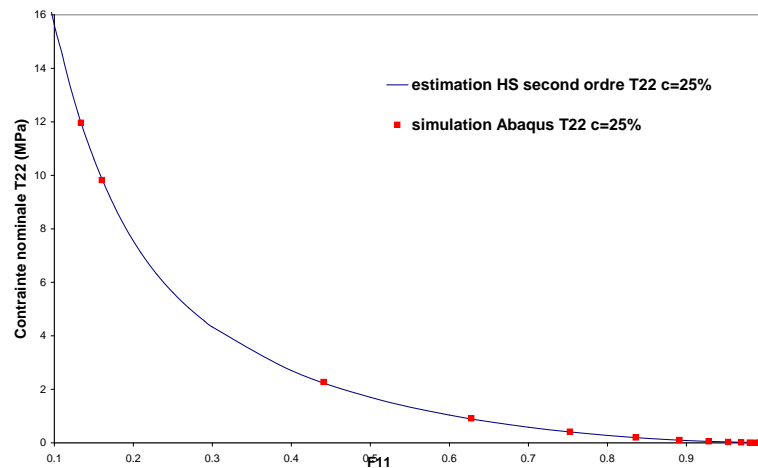


FIG. III.13 - Prédiction de la contrainte nominale T_{22} par le modèle d'Hashin-Shtrikman comparées en **compression simple** aux réponses numériques pour le composite contenant 25% de particules sphériques **déformables**

III.3 Effet de forme des inclusions

On souhaite maintenant apporter d'autres éléments de vérification du modèle d'homogénéisation. On considère à cette fin un matériau constitué de la matrice hyperélastique et d'une famille d'inclusions sphéroïdales toutes alignées (cf. figure II.2). On s'intéresse en particulier aux effets de la forme initiale des renforts sur le comportement macroscopique du matériau. Un chargement

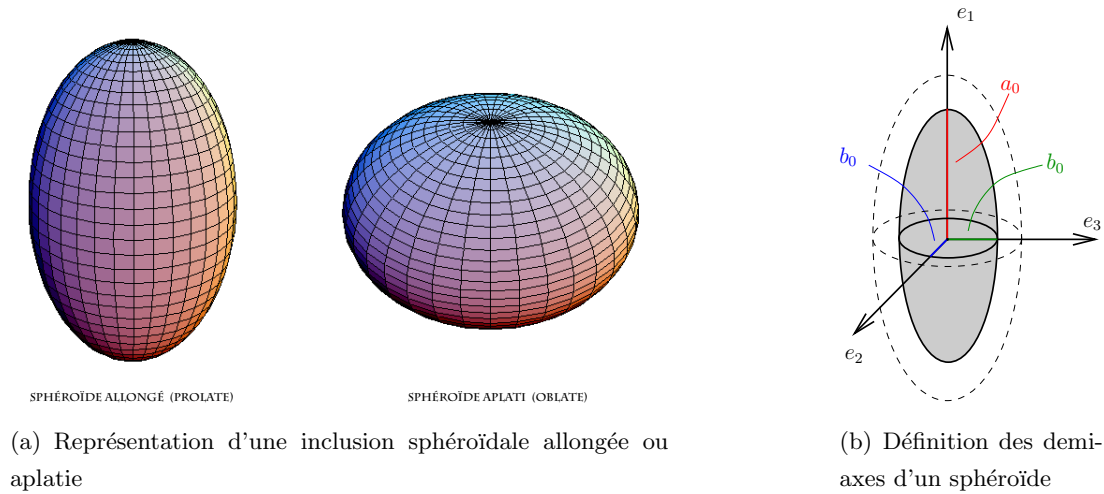


FIG. III.14 - Sphéroïdes allongé et aplati

de traction uniaxiale est considéré suivant l'axe de révolution de la sphéroïde. Les résultats du modèle sont comparés à ceux issus des simulations éléments finis réalisées pour des composites à inclusions sphéroïdales aplaties (oblate) ou allongées (prolate) (voir figure III.14 pour une fraction volumique de renforts de 15%). Ces inclusions sphéroïdales, de rapport d'aspect $\omega_0 = \frac{a_0}{b_0}$, sont caractérisées par un tenseur $\mathbf{Z}_0 = \text{Diag}(1/a_0, 1/b_0, 1/b_0)$ qui permet de prendre en compte la forme des inclusions dans le calcul du tenseur de Hill \mathbf{P} (cf. chapitre I).

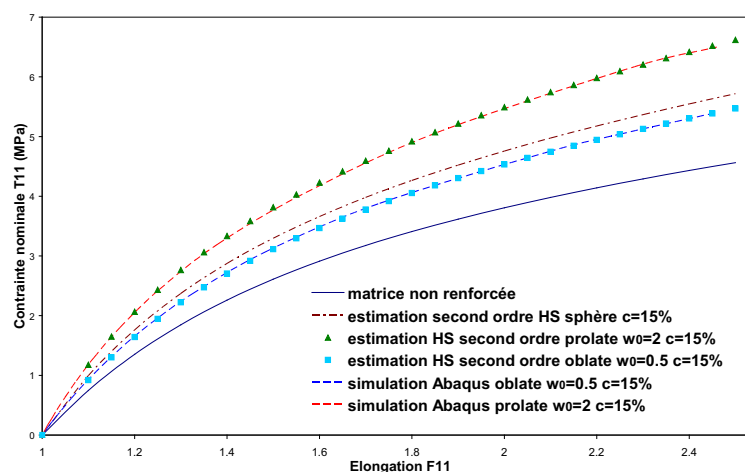


FIG. III.15 - Prédictions des contraintes du modèle d'Hashin-Shtrikman pour des sphéroïdes comparées aux réponses numériques pour le composite contenant 15% de renforts **rigides**

Pour bien illustrer les résultats concernant l'effet de forme, on considère un matériau à 15% inclusions rigides pour lequel cet effet est très marqué. Sur la figure III.15 sont comparées les réponses macroscopiques prédites par le modèle pour un essai de traction uniaxiale et celles issues du calcul par éléments finis. On a considéré pour ces calculs aussi bien des inclusions sphéroïdales allongées (rapport d'aspect de $\omega_0 = 2$) que des inclusions sphéroïdales aplaties (rapport d'aspect $\omega_0 = 0.5$). Pour ce chargement de traction selon l'axe de révolution des sphéroïdes, on observe en comparaison au cas déjà traité (particules sphériques) un effet de renforcement plus important lorsque les particules sont allongées et inversement un renforcement moins important pour des particules aplaties. La comparaison aux simulations par éléments finis est excellente. Sur les figures III.16 et III.17 sont présentées les distributions des déformations longitudinales obtenues grâce aux simulations éléments finis pour le matériau contenant 15% d'inclusions sphéroïdales allongées ou aplaties, rigides ou déformables. Ces cartes de déformations soulignent non seulement l'hétérogénéité du champ de déformations mais également les différences d'évolution de microstructure (forme des particules) qui pourraient expliquer les différences de comportement macroscopique observées ci-dessous. En effet, nous avons pu observer que, sous l'effet de la traction uniaxiale, une particule sphéroïdale initialement allongée reste allongée, alors qu'une particule aplatie, très probablement en raison de la non linéarité comportementale, va tendre vers un état sphérique. Ce phénomène se traduit par une augmentation du rapport d'aspect des sphéroïdes, ce qui sera illustré dans la section suivante.

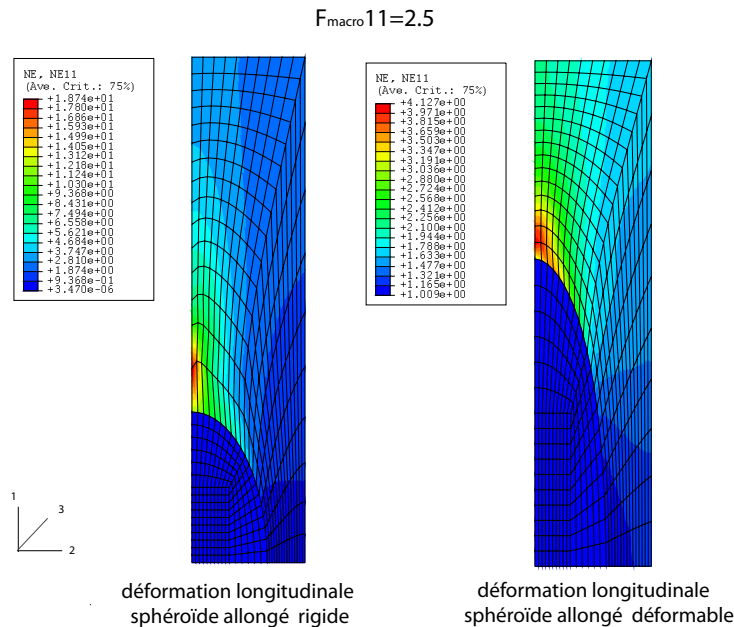


FIG. III.16 - Distribution des déformations longitudinales en traction uniaxiale pour une élongation macroscopique $\bar{F}_{11} = 2.5$ pour 15% de particules sphéroïdales allongées

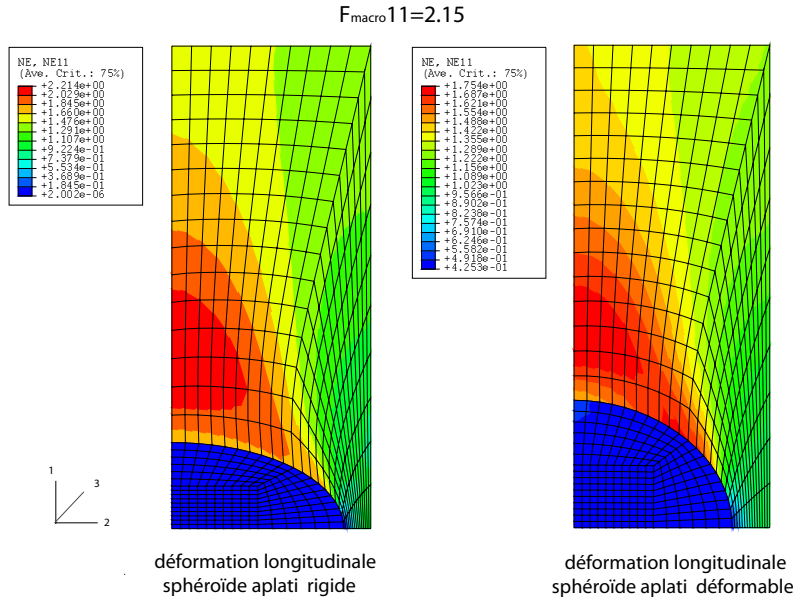


FIG. III.17 - Distribution des déformations longitudinales en traction uniaxiale pour une elongation macroscopique $\bar{F}_{11} = 2.15$ pour 15% de particules sphéroïdales aplaties

III.4 Évolution réversible de la microstructure

III.4.1 Introduction

Nous venons de voir que le modèle d'homogénéisation permet de déterminer avec une grande précision des estimations, non seulement pour le comportement macroscopique, mais également pour les contraintes/déformations moyennes par phase (constituants). Le modèle est également en mesure, par ré-interprétation des champs locaux de prédire l'évolution réversible de la microstructure du matériau lorsque celui-ci est sollicité. Pour cette étude, on s'appuie sur les travaux de Lopez-Pamies [74] basés sur une idée initialement introduite par Kailasam et Ponte Castañeda [97] pour les composites viscoplastiques : l'évolution de la taille, de la forme et de l'orientation des inclusions peut être déterminée en moyenne à partir des champs moyens de vitesse de déformation dans la phase inclusionnaire (il s'agit en fait d'une généralisation de notions déjà présentes dans les travaux d'Eshelby [41]).

Le cadre de description lagrangienne de la présente étude permet de simplifier l'analyse et de déduire directement l'évolution de la microstructure à partir de la procédure d'homogénéisation. Considérons l'évolution de la microstructure du composite hyperélastiques dans le cas où les renforts sont des ellipsoïdes de révolution (sphéroïdes), de mêmes forme et orientation (voir figure II.2). Ces inclusions sont donc décrites par un ellipsoïde de révolution caractéristique :

$$E_0 = \{ \underline{X}/\underline{X}.(\mathbf{Z}_0^T \mathbf{Z}_0).\underline{X} \leq 1 \}$$

dans la configuration de référence avec $\mathbf{Z}_0 = \text{Diag}(1/a_0, 1/b_0, 1/b_0)$. Ces sphéroïdes sont ainsi caractérisés par leur rapport d'aspect initial $\omega_0 = \frac{a_0}{b_0}$ et 3 orientations principales qui définissent une base cartésienne $\{\underline{e}_1, \underline{e}_2, \underline{e}_3\}$ (voir figure III.14(b), en notant que pour le sphéroïde $b_0 = c_0$). Suivant la démarche proposée par [74], l'évolution des taille, forme et orientations moyennes des inclusions peut être déterminée à partir du gradient moyen des déformations $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$ (constant) dans l'inclusion.

Ainsi, l'évolution des forme et orientations moyennes des inclusions peut être caractérisée grâce à un tenseur symétrique \mathbf{Z} défini à partir de la connaissance du tenseur gradient des déformations $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$, de la forme et des orientations (\mathbf{Z}_0) de l'inclusion dans la configuration initiale :

$$\mathbf{Z} = \mathbf{Z}_0(\bar{\mathbf{F}}^{(2)})^{-1} \quad (\text{III.2})$$

On insistera sur le fait que ce tenseur caractérise la forme et l'orientation des inclusions dans la configuration déformée, puisqu'il correspond à un ellipsoïde de rapport d'aspect $\omega = \frac{a}{b}$ et d'orientations principales $\{e'_1, e'_2, e'_3\}$ dans la configuration déformée. Ainsi, la figure III.18 illustre comment, dans le cas générale, une inclusion ellipsoïdale se déforme en un autre ellipsoïde de rapport d'aspect $\omega = \frac{a}{b}$ (noter que $b = c$ pour un sphéroïde) et d'orientation que l'on peut également caractériser à partir de la déformation moyenne $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$ dans l'inclusion.

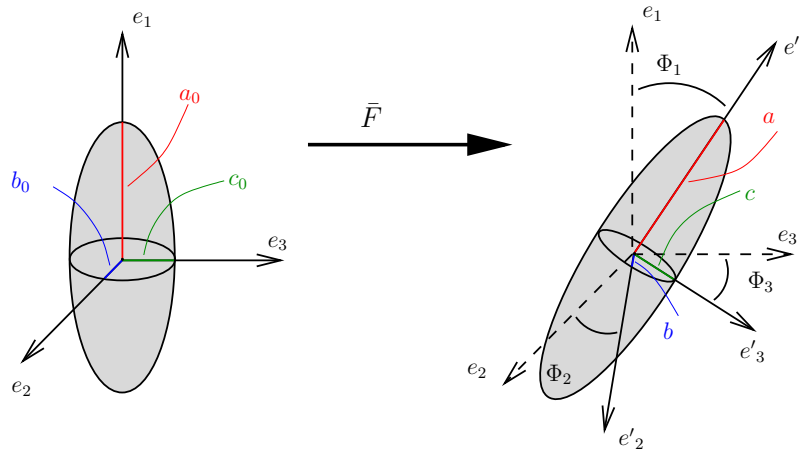


FIG. III.18 - Représentation de l'évolution d'un ellipsoïde de la configuration de référence à la configuration déformée

Cette démarche est également applicable au calcul de la fraction volumique de particules dans la configuration déformée [74] :

$$c_{actuelle}^{(2)} = \frac{\int_{\Omega^{(2)}} dv}{\int_{\Omega} dv} = \frac{\int_{\Omega_0^{(2)}} \det(\mathbf{F}) dV}{\int_{\Omega_0} \det(\mathbf{F}) dV} = \frac{\langle \det(\mathbf{F}) \rangle^{(2)}}{\langle \det(\mathbf{F}) \rangle} c^{(2)} = \frac{\det(\bar{\mathbf{F}}^{(2)})}{\det(\bar{\mathbf{F}})} c^{(2)} \quad (\text{III.3})$$

où Ω et $\Omega^{(2)}$ représentent respectivement les volumes du VER et des particules dans la configuration déformée.

En résumé, on peut déterminer l'évolution de la fraction volumique, de la forme moyenne et de l'orientation moyenne des inclusions dans une matrice hyperélastique à partir du gradient de la transformation moyen $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$ des particules qui est déterminé grâce à la méthode d'homogénéisation du second ordre.

III.4.2 Évolution de la forme des inclusions

Dans ce paragraphe, nous nous intéressons plus précisément à l'évolution de la forme des particules, considérées initialement sphériques, au cours du chargement. Nous rappelons que cette évolution peut être déterminée grâce à la déformation moyenne $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$ par la relation (III.2). Les inclusions initialement sphériques sont caractérisées par le tenseur identité d'ordre 2 : $\mathbf{Z}_0 = \text{Diag}(1/a_0 = 1, 1/b_0 = 1, 1/c_0 = 1)$. Les tenseurs de déformation $\bar{\mathbf{F}}$, associés aux chargements considérés, sont supposés axisymétriques : $\text{Diag}(\bar{\mathbf{F}}_{11}, \bar{\mathbf{F}}_{22}, \bar{\mathbf{F}}_{22})$ qui engendre un tenseur $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$ de la même forme. Sous le type de chargement considéré, les inclusions sphériques se déforment en sphéroïdes caractérisés par un tenseur $\mathbf{Z} = \text{Diag}(1/a, 1/b, 1/b)$ et de rapport d'aspect $\omega = \frac{a}{b} = \frac{a_0 \bar{\mathbf{F}}_{11}^2}{b_0 \bar{\mathbf{F}}_{22}^2}$.

On note que pour le cas des particules rigides indéformables, compte tenu du fait que $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$ est égal à l'identité, la relation (III.2) est consistante avec la non déformabilité des particules (car $\mathbf{Z} = \mathbf{Z}_0$).

Pour les chargements précédemment considérés (traction uniaxiale; extension et compression simples) on présente l'évolution du rapport d'aspect, respectivement sur les figures III.19 et III.20, la fraction volumique **initiale** de particules étant de 15%.

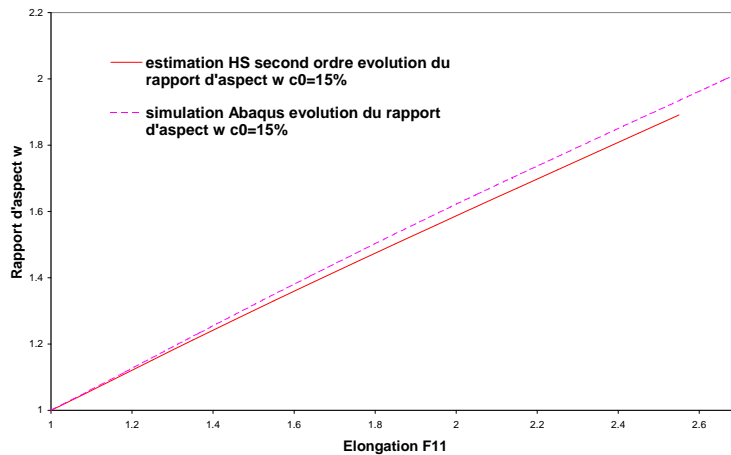


FIG. III.19 - Évolution du rapport d'aspect au cours d'un chargement de **traction uniaxiale** : modèle d'Hashin-Shtrikman comparé aux résultats numériques pour le composite contenant 15% de particules initialement sphériques et **déformables**

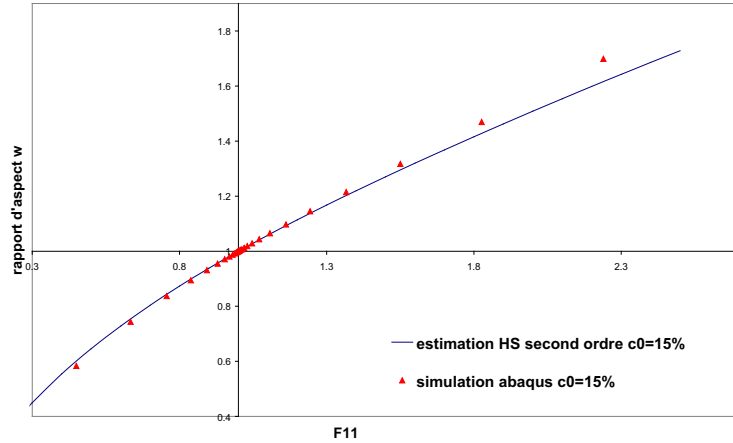


FIG. III.20 - Évolution du rapport d'aspect au cours de chargements d'extension et compression simples : modèle d'Hashin-Shtrikman comparé aux résultats numériques pour le composite contenant 15% de particules initialement sphériques et **déformables**

Dans le cas de la traction uniaxiale comme dans le cas de l'extension simple, au delà du fait que le rapport d'aspect augmente (les particules sphériques deviennent des sphéroïdes allongés au cours de la déformation), on observe une relative bonne concordance avec le calcul éléments finis, un léger écart apparaissant pour les niveaux de déformation élevés. Naturellement, pour la compression simple, le rapport d'aspect diminue ; l'accord avec les calculs numériques est de meilleure qualité.

Il convient de noter que ces résultats ne font que traduire la bonne qualité générale des estimations de la déformation de l'inclusion fournie par le modèle.

III.4.3 Évolution de la fraction volumique de renforts

Intéressons nous maintenant à l'évolution de la fraction volumique de particules au cours du chargement. On rappelle que la relation entre la fraction volumique initiale c_0 et la fraction volumique actuelle $c_{actuelle}$ est donnée par (III.3). On note que pour les particules rigides indéformables, $\det(\bar{\mathbf{F}}^{(2)}) = 1$ et on a $c_{actuelle} = \frac{c_0}{\det(\bar{\mathbf{F}})}$.

La comparaison modèle/calculs numériques, pour un chargement de traction uniaxiale et pour une fraction volumique initiale de particules de 15%, est présentée sur la figure III.21 pour des particules déformables et sur la figure III.22 pour des particules rigides. Les résultats pour les chargements d'extension et de compression simples sont représentés sur les figures III.23 et III.24 respectivement pour des particules déformables et rigides indéformables.

Il est à noter que pour les particules rigides, l'évolution de la fraction volumique dépend uniquement du changement de volume de la matrice. On remarque ainsi que pour un chargement de traction uniaxiale la fraction volumique de particules diminue (des 15% initiaux à environ

8% pour une élancement de 2.6). Une observation similaire peut être faite pour le chargement d'extension simple. A l'inverse, pour le chargement de compression simple, la fraction volumique augmente fortement, passant des 15% initiaux à 25% pour $\bar{F}_{11} = 0.4$. Ce qui s'explique par un état de forte compression de la matrice alors que les particules sont indéformables.

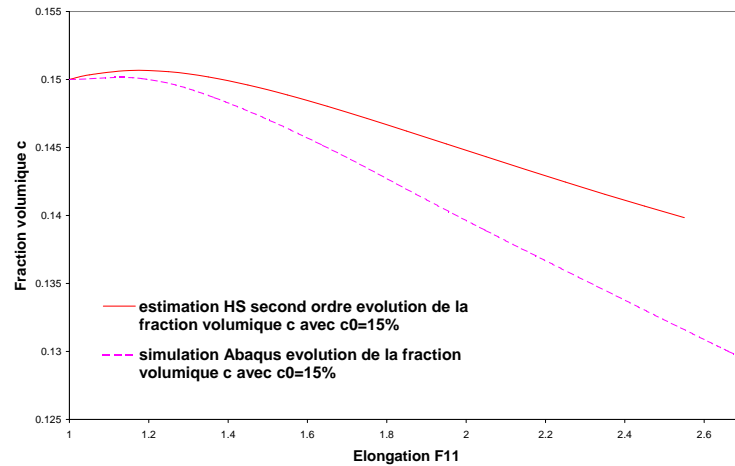


FIG. III.21 - Évolution de la fraction volumique au cours d'un chargement de **traction uniaxiale** : modèle d'Hashin-Shtrikman comparé aux résultats numériques pour le composite contenant 15% de particules initialement sphériques et **déformables**

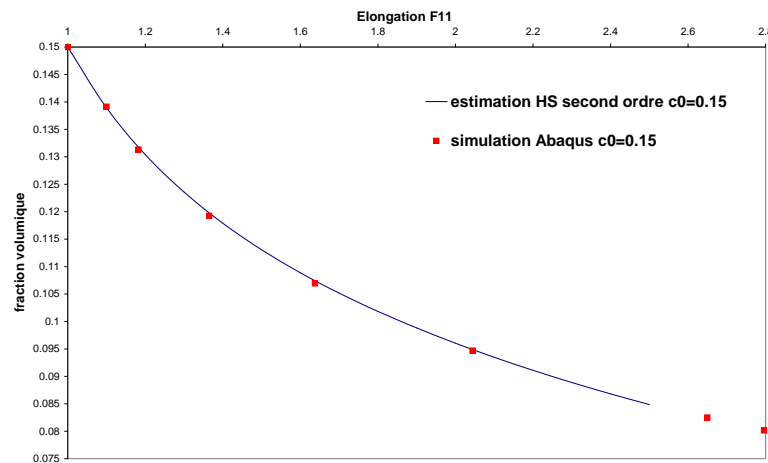


FIG. III.22 - Évolution de la fraction volumique au cours d'un chargement de **traction uniaxiale** : modèle d'Hashin-Shtrikman comparé aux résultats numériques pour le composite contenant 15% de particules initialement sphériques et **rigides**

Dans le cas des particules déformables, l'évolution de la fraction volumique est liée non seulement au changement de volume de la matrice, mais également à celui des particules (lié lui même au changement de forme des particules). Ainsi, pour le chargement de traction uniaxiale, la fraction volumique de particules diminue mais moins que dans le cas des particules rigides. Pour le chargement d'extension simple, on note qu'elle augmente. L'explication à cette augmentation réside dans le fait que pour imposer un déplacement latéral nul, on tire également dans cette direction (voir figure III.11). Ainsi, les particules initialement sphériques deviennent des sphéroïdes allongés mais la compensation apportée par la contrainte d'étirement dans la direction latérale est suffisante pour permettre l'augmentation de la fraction volumique de particules. Enfin, pour le chargement de compression simple, la fraction volumique de particules diminue, cette diminution s'accroissant pour des forts niveaux de déformation compressive $\bar{\mathbf{F}}_{11}$.

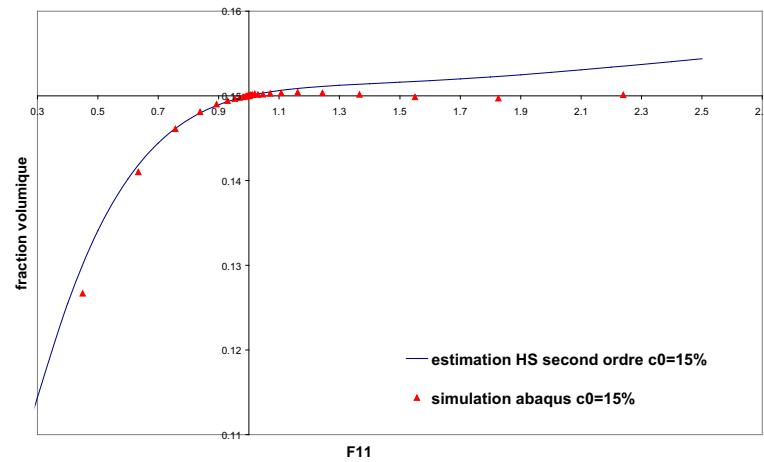


FIG. III.23 - Évolution de la fraction volumique au cours de chargements d'**extension et compression simples** : modèle d'Hashin-Shtrikman comparé aux résultats numériques pour le composite contenant 15% de particules initialement sphériques et **déformables**

Venons en maintenant aux comparaisons avec les simulations par éléments finis. Lorsque les particules sont déformables, la différence entre les prédictions du modèle d'Hashin-Shtrikman et les simulations éléments finis pour la fraction volumique de renforts est beaucoup plus significative que pour l'évolution du rapport d'aspect (figures III.19 et III.20), ceci quel que soit le type de chargement parmi ceux étudiés. On notera tout de même un meilleur accord pour la compression simple. En effet, même si, comme nous l'avons observé, le modèle ne prédit pas de façon très précise la déformation $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$, celle-ci se répercute de manière relativement moindre sur le rapport d'aspect car le calcul de ce dernier, pour un état de déformation donné, fait intervenir le rapport $\frac{\bar{\mathbf{F}}_{11}^2}{\bar{\mathbf{F}}_{22}^2}$, des erreurs similaires étant obtenues pour $\bar{\mathbf{F}}_{11}^2$ et $\bar{\mathbf{F}}_{22}^2$. Ceci peut conduire à une compensation des erreurs. Par contre, pour le calcul de la fraction volumique, ce rapport

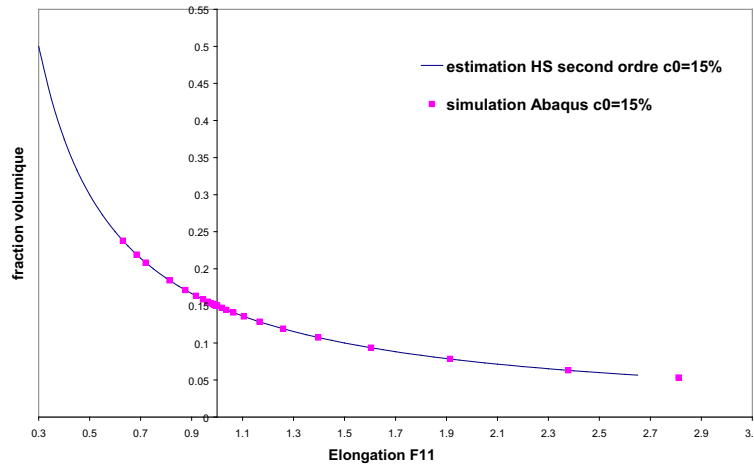


FIG. III.24 - Évolution de la fraction volumique au cours de chargements d'**extension et compression simples** : modèle d'Hashin-Shtrikman comparé aux résultats numériques pour le composite contenant 15% de particules initialement sphériques et **rigides**

n'intervient pas et l'erreur commise est donc plus importante.

Lorsque les particules sont rigides indéformables, le tenseur de déformation $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$ est exact, aucune erreur n'est donc commise à ce niveau. En effet, on observe un bon accord entre les simulations éléments finis et les prédictions du modèle d'homogénéisation pour les trois types de chargements considérés (voir figures III.22 et III.24).

III.5 Conclusions

L'objectif visé dans ce chapitre est de faire une évaluation rigoureuse et sans biais des performances du modèle d'homogénéisation mis au point au chapitre II. La démarche adoptée pour cette évaluation a consisté en une comparaison systématique des prédictions du modèle à des résultats de calculs par éléments finis, tant pour le comportement macroscopique que pour les champs locaux, correspondant aux phases, existants dans le matériau.

Une première conclusion a été la mise en défaut du modèle basé sur le schéma de Reuss. En revanche, les performances du modèle d'homogénéisation basé sur la borne d'Hashin-Shtrikman sont apparues tout à fait remarquables pour tous les chargements explorés (traction uniaxiale, extension, compression simple). Ce constat qui s'est d'abord fait sur la réponse macroscopique du composite, s'est confirmé sur la comparaison des champs locaux, même si un léger "écart" a été observé pour les champs de contrainte local dans la phase inclusionnaire. Malgré l'hétérogénéité des déformations, confirmée dans les calculs par éléments finis, le modèle d'homogénéisation rend compte assez correctement de la moyenne des champs de déformations par phase. Enfin, il a été vérifié que la prise en compte de la forme initiale des inclusions affecte la réponse du matériau.

Dans ce cas aussi, les prédictions du modèle sont conformes aux simulations numériques.

La formulation micromécanique du modèle proposé permet une ré-interprétation des moyennes de déformation par phase en terme d'évolution réversible de microstructure (cf. Eqs (III.2) et (III.3)). Sur cet aspect précis, nous avons également pu vérifier que les évolutions de microstructure (rapport d'aspect et fraction volumique des particules) prédites par le modèle se trouvent en bon accord avec les résultats des calculs par éléments finis⁵. Malgré ces prédictions remarquables, il convient de souligner que les capacités prédictives du modèle ne peuvent être démontrées qu'à travers une comparaison à des données expérimentales. C'est l'objet du chapitre suivant.

⁵*Les seuls écarts notés concernent la fraction volumique des renforts déformables (figure III.21) et s'expliquent par l'imprécision observée sur la reproduction de la déformation moyenne des particules.*

Chapitre IV

Étude expérimentale et modélisation du comportement hyperélastique d'un EPDM renforcé par des particules de PolyPropylène

Après avoir mis en œuvre, et vérifié par comparaison avec des simulations par éléments finis, le modèle d'homogénéisation non linéaire basé sur le schéma d'Hashin-Sthrikman, nous souhaitons maintenant confronter les prédictions de ce modèle à des résultats expérimentaux. Le matériau modèle considéré est un composite constitué d'une matrice élastomère EPDM (Éthylène Propylène Diène Monomère) et de particules de PP (PolyPropylène). Pour cela, nous étudions d'abord l'EPDM. On montre que cet élastomère possède un comportement hyperélastique qu'il s'agira de modéliser avant d'aborder le modèle de comportement macroscopique du mélange étudié.

Ainsi, dans un premier temps, nous mettrons expérimentalement en évidence, grâce à des essais de traction uniaxiale, l'effet de renforcement des particules de PP. Ensuite, conscients que l'adhérence entre les constituants joue un rôle important sur le comportement du mélange EPDM/PP, nous étudierons l'effet de deux compatibilisateurs différents pour un mélange particulier : l'EPDM contenant 30% en masse de PP.

Forts de ces résultats expérimentaux, nous mettons en œuvre sur ce composite le modèle micro-mécanique basé sur la borne d'Hashin-Sthrikman. Ainsi, le recours au modèle d'homogénéisation, reposant sur une hypothèse d'adhésion parfaite entre constituants, permettra de tirer des conclusions sur l'efficacité des compatibilisateurs que l'on cherche à optimiser afin de tendre vers une adhésion parfaite entre les phases. Cette application fournira également un moyen d'évaluer la validité du modèle micro-macro et son aptitude à décrire le comportement de l'EPDM/PP.

IV.1 Matériau de l'étude

Dans cette section, les matériaux constituant le mélange EPDM/PP sont présentés. Il s'agit d'un mélange "non miscible", c'est-à-dire un mélange en phases séparées. De plus, les phases n'interagissent pas chimiquement et ne permettent donc pas de créer des liaisons covalentes renforçant l'adhésion des deux phases. On montre d'abord que la morphologie peut changer selon le taux de chaque constituant. Le matériau sera ensuite étudié sous la forme de l'EPDM contenant des particules de PP, ceci pour différentes fractions massiques de PolyPropylène.

IV.1.1 Constituants du matériau

Le premier constituant du mélange étudié est un matériau thermoplastique, l'EPDM. Les EPDM sont obtenus en copolymérisant l'éthylène et le propylène par association d'un diène⁶ qui apporte les doubles liaisons nécessaires à une vulcanisation classique. Ils présentent presque les mêmes caractéristiques que le caoutchouc naturel (NR) avec, en particulier, une température de transition vitreuse voisine de -55°C . L'EPDM utilisé dans cette étude est un EPDM NORDEL 4770R (Du Pont Ltd) ayant les propriétés précisées dans le tableau IV.1 où l'ENB (Éthylidène norbornène) est le diène utilisé pour la fabrication de l'EPDM.

Le second constituant est un PolyPropylène de formule chimique $-(\text{CH}_2\text{-CH-CH}_3)_n-$, obtenu par polymérisation des monomères de propylène ($\text{CH}_2=\text{CH-CH}_3$). Le PolyPropylène utilisé est un REPOL H033MG (Reliance Industries Ltd) d'indice de fluidité à l'état fondu (MFI) de 3,3g/min.

PROPRIÉTÉS PHYSIQUES	VALEURS
Masse volumique	$0,87\text{g}/\text{cm}^3$ soit $870\text{kg}/\text{m}^3$
Composés volatiles (solvants)	max 0,4%
PROPRIÉTÉS DESCRIPTIVES	
ENB	5% en masse
Ethylène	70% en masse
Propylène	25% en masse

TAB. IV.1 - Propriétés de l'EPDM NORDEL 4770R

Deux compatibilisateurs, le Ma-g-PP (PolyPropylène greffé d'anhydride maléique) (Plus po-

⁶Les diènes sont des hydrocarbures qui contiennent deux liaisons doubles

lymers India) et un ionomère⁷, le Surlyn (Ethylène-co-acide méthacrylique neutralisé par l'ion sodium) (Du Pont Ltd), seront parfois ajoutés au mélange EPDM/PP afin d'améliorer le lien entre les deux constituants. Ces deux compatibilisateurs sont de types différents. En effet, le Ma-g-PP est un compatibilisateur chimique qui permet une création de liaisons chimiques entre les chaînes de PP et d'EPDM, tandis que le Surlyn est un compatibilisateur physique qui crée uniquement des interactions physiques c'est-à-dire ioniques entre les phases.

IV.1.2 Les mélanges étudiés

La façon la plus efficace de modifier la morphologie d'un mélange non miscible est de modifier la quantité relative de chacun des polymères dans le mélange. En effet, il est possible de mélanger l'EPDM et le PolyPropylène dans n'importe quel rapport, ce qui permet de créer un spectre continu de matériau allant du PolyPropylène choc à l'EPDM renforcé. Si le PolyPropylène est le composant prédominant, il constitue la phase continue contenant des particules d'EPDM, tandis qu'avec une quantité élevée d'EPDM, la structure s'inverse et le matériau devient un EPDM renforcé par des particules de PolyPropylène.

La morphologie du mélange auquel nous nous intéressons est celle des EPDM renforcés par des particules de PP. Ses propriétés mécaniques seront à priori proches de celles de l'EPDM. Ainsi, le mélange EPDM/PP aura un comportement hyperélastique dépendant de la quantité de PolyPropylène et de l'interaction entre l'élastomère (la matrice) et les particules (les charges). Un des facteurs dont dépend cette interaction est l'activité chimique à la surface de la charge. En effet, cette dernière doit être compatible avec les chaînes macromoléculaires de la matrice. Pour améliorer l'interaction matrice-charges, on utilise des compatibilisateurs. Ainsi, dans cette étude, les investigations porteront sur la variation de propriétés mécaniques du mélange EPDM/PP, non seulement en fonction du taux de PolyPropylène mais également en fonction de l'utilisation ou non de compatibilisateurs.

Les compatibilisateurs testés sont ceux indiqués précédemment : le Ma-g-PP et le Surlyn ainsi qu'une combinaison des deux. Les différents mélanges étudiés sont répertoriés dans le tableau IV.2 en fonction du pourcentage massique de chaque constituant.

Ces mélanges ont été réalisés en employant une extrudeuse à double vis co-rotative afin d'obtenir une meilleure morphologie, la dispersion obtenue des phases étant plus uniforme qu'avec d'autres moyens de mélangeage. L'extrudat est alors converti en granules en vue du moulage par injection d'éprouvettes normalisées (ASTM D638) pour les essais mécaniques.

⁷ Matière plastique obtenue par association d'un copolymère de l'éthylène et d'un acide carboxylique insaturé avec des ions métalliques.

MÉLANGES	PP (% en masse)	EPDM (% en masse)	COMPATIBILISEUR (% en masse)
	EPDM/PP sans compatibiliseur		
1	5	95	-
2	10	90	-
3	25	75	-
4	30	70	-
	EPDM 70 - PP 30		Ma-g-PP
5	97		3
6	93		7
	EPDM 70 - PP 30		Surlyn
7	97		3
	EPDM 70 - PP 30		Ma-g-PP + Surlyn
8	95		5

TAB. IV.2 - *Compositions des mélanges étudiés*

IV.2 Caractérisation expérimentale des propriétés mécaniques du matériau

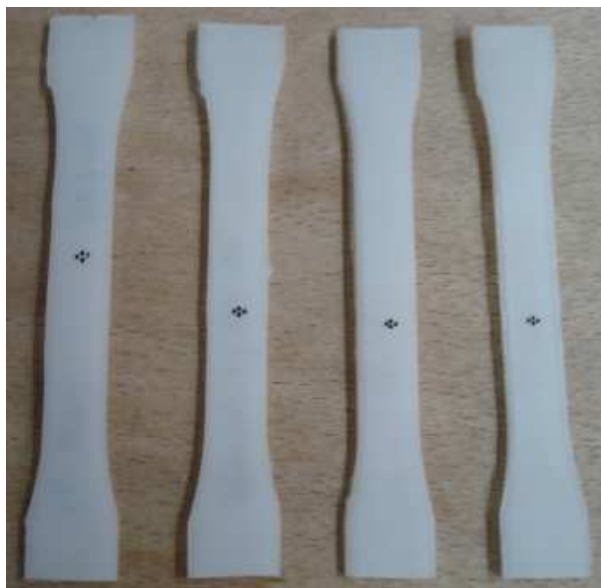
Nous venons de présenter les mélanges EPDM/PP dont nous allons étudier, expérimentalement maintenant, le comportement mécanique en fonction du taux de PolyPropylène et de l'ajout ou non de compatibiliseurs. Après avoir présenté le protocole expérimental de traction uniaxiale ainsi que les moyens de mesure utilisés, nous en viendrons aux résultats obtenus et tirerons des conclusions sur l'effet des particules de PolyPropylène et des compatibiliseurs sur le comportement de l'EPDM.

IV.2.1 Dispositif expérimental de traction uniaxiale

Pour réaliser les essais mécaniques nécessaires à notre étude, nous disposons d'une machine de traction uniaxiale conventionnelle : INSTRON 4302 avec une cellule de charge de capacité maximale d'1kN permettant de mesurer la force. Cette cellule est bien adaptée à notre contexte de travail car les efforts mis en jeu pour déformer, même fortement, les élastomères sont relativement faibles (quelques centaines de Newtons) compte tenu des dimensions des éprouvettes considérées. De plus, cette machine permet un très grand déplacement de traverse et nous permet de solliciter les éprouvettes jusqu'à 1000% de déformation si nécessaire.

De par les grandes déformations mises en jeu au sein de matériaux tels que les élastomères, les moyens de mesure de déformations comme les jauges ou les extensomètres par contact peuvent difficilement être mis en œuvre. Ainsi, nous utilisons un système de vidéotraction Appolor[®] permettant la mesure des déformations sans contact avec le matériau. Le principe de ce système est de focaliser une caméra sur la zone de déformation au centre de l'éprouvette et de mesurer en temps réel le déplacement de repères qui auront été préalablement réalisés sur l'éprouvette. Ce système permet également un pilotage lors de l'essai en contrôlant, en temps réel, les paramètres de la machine (vitesse, intensité de déplacement, vitesse de déformation...) en fonction de la réponse du matériau.

Un autre avantage de ce système est qu'il permet de mesurer les déformations longitudinale et transverse, ceci en utilisant 4 marqueurs disposés au centre de l'éprouvette comme présenté sur la figure (IV.1(a)).



(a) Éprouvettes EPDM/PP avec 4 marqueurs



(b) Éprouvette sollicitée

FIG. IV.1 -

Ainsi, afin de caractériser le comportement hyperélastique de l'EPDM renforcé, une série d'essais de traction uniaxiale a été réalisée sur des éprouvettes de traction normalisées (ASTM D638), soumises à des chargements cycliques à déformation maximale imposée et contrainte minimale nulle. Ces chargements sont réalisés grâce à des mors autoserrants permettant d'éviter tout glissement parasite trop important (voir figure IV.1(b)), induit par le caractère quasi incompressible des matériaux. La vitesse de déformation retenue pour l'ensemble de l'étude est de $10^{-3} s^{-1}$, ce qui permet d'assurer le caractère quasi-statique des sollicitations. Enfin, on notera que chaque essai a été réalisé plusieurs fois afin d'en garantir une bonne reproductibilité.

IV.2.2 Résultats expérimentaux et recherche du comportement hyperélastique

Le dispositif ainsi que la démarche expérimentale étant précisés, nous pouvons maintenant présenter les résultats ainsi que la détermination du comportement hyperélastique des différents mélanges étudiés afin de pouvoir examiner l'effet du renforcement des particules de PP en fonction de leur fraction massique et en fonction du compatibiliseur utilisé. Nous avons vu au chapitre I qu'il est possible de modéliser le comportement des élastomères en configuration mixte. En effet, la relation (I.22) relie les contraintes de Piola-Kirchhoff 1, \mathbf{T} , au tenseur gradient de la transformation \mathbf{F} . Nous choisissons cette configuration mixte car les grandeurs T_{11} et F_{11} , respectivement contrainte et élongation dans le sens de sollicitation, sont facilement accessibles expérimentalement. En effet, $T_{11} = \frac{F}{S_0}$ est mesurable de façon aisée, car la force appliquée F en configuration actuelle et S_0 (section initiale de l'éprouvette) sont connues. La composante longitudinale, F_{11} , est donnée par $\lambda = l/l_0$ (l_0 et l sont respectivement les distances initiale et actuelle entre 2 marqueurs). De plus, les essais ayant été répétés plusieurs fois, pour chaque mélange considéré, afin de garantir leur bonne reproductibilité, seules les moyennes des résultats sont présentées.

IV.2.2.1 Étude de l'effet du renforcement du PolyPropylène selon sa fraction massique

Dans ce paragraphe, on souhaite étudier, grâce aux essais de traction uniaxiale qui ont été réalisés, l'influence du PolyPropylène sur le comportement de l'EPDM pur. Pour cela, nous considérons les mélanges 1, 2, 3 et 4 définis dans le tableau IV.2 et correspondants à différentes proportions de constituants.

Dans un premier temps, on présente (figure IV.2) les réponses en chargement cyclique à déformation maximale imposée, de l'EPDM pur et du mélange contenant 10% en masse de PP. On remarque alors que les efforts mis en jeu augmentent avec la présence de PP.

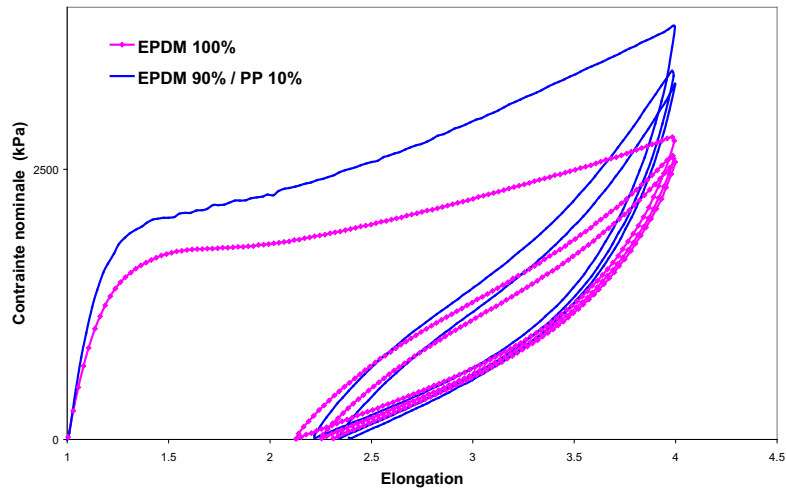


FIG. IV.2 - Comportement de l'EPDM pur et du mélange EPDM90-PP10 sous chargement cyclique

Sur cette figure, on observe également les différentes caractéristiques du comportement sous chargement cyclique des élastomères :

- la différence entre la première charge et la suivante : l'effet Müllins. Ce phénomène est caractéristique des mécanismes d'endommagement qui se produiraient au cours de la première charge. Il convient aussi de souligner que compte tenu de l'ampleur des déformations rémanentes observées, le matériau présente une certaine plasticité.
- l'hystérésis entre la charge et la décharge d'un cycle de chargement qui est dû au comportement visqueux du matériau. Ainsi, comme nous l'avons déjà indiqué dans la section I.1.2.3 du chapitre I, le comportement hyperélastique des matériaux élastomères sans tenir compte de l'effet Müllins et de la viscosité, est obtenu en ne considérant que la phase de décharge ([24], [35]).

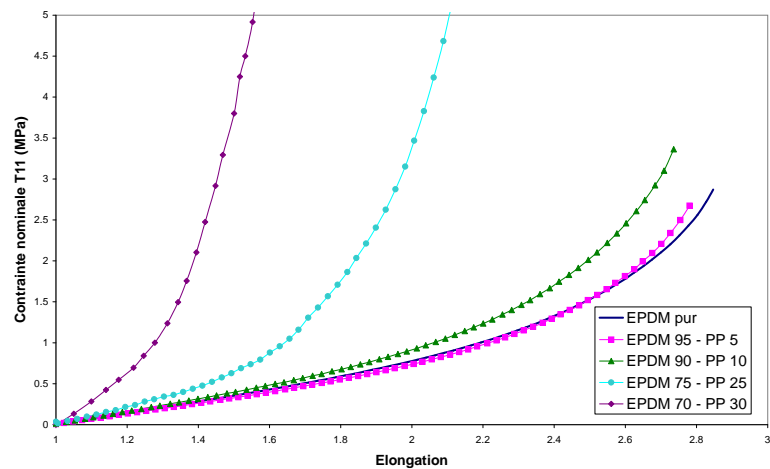


FIG. IV.3 - Premières décharges de l'EPDM pur et de différents mélanges EPDM-PP

Les résultats obtenus pour l'ensemble des mélanges sont présentés sur la figure IV.3 où seules les décharges du premier cycle apparaissent.

Pour chaque mélange, l'effet du renforcement du PolyPropylène est confirmé; il se traduit par une augmentation, avec le pourcentage massique de PP, des efforts nécessaires pour obtenir une élongation donnée.

IV.2.2.2 Étude de l'effet du renforcement du PolyPropylène en fonction du type et de la quantité de compatibiliseur

Nous venons d'illustrer l'effet renforçant du PolyPropylène sur le comportement de l'EPDM en absence de compatibiliseur. Cependant, dans un tel mélange on s'attend à ce que l'adhésion entre les deux constituants, compte tenu de la non compatibilité chimique des constituants, ne soit pas parfaite, ce qui amoindrirait l'effet renforçant des particules de PP. Pour remédier à cela, l'idée est d'améliorer la liaison entre les macromolécules d'EPDM et les chaînes de PP en utilisant des compatibiliseurs. Comme déjà indiqué, on étudie l'influence de 2 compatibiliseurs, Ma-g-PP et Surlyn, sur le renforcement. Les figures IV.4 et IV.5 représentent les réponses mécaniques du mélange 4 contenant 30% en masse de PP; elles révèlent une large influence des compatibiliseurs sur le comportement de ce mélange. Plus précisément, la figure IV.4 compare, pour une quantité identique de compatibiliseur, les effets de ceux-ci. Ainsi on conclut à une efficacité quasiment équivalente des deux formulations. La figure IV.5 montre, pour le Ma-g-PP, que lorsqu'on augmente le taux de compatibiliseur, on améliore encore l'effet renforçant du PolyPropylène. Cependant, le taux de compatibiliseur ne peut pas être trop important au risque, paradoxalement, de détériorer la réponse du matériau.

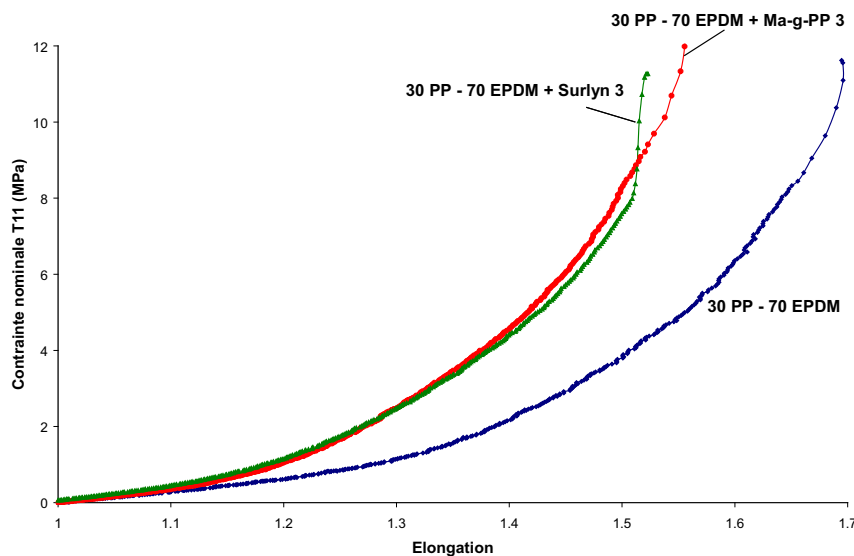


FIG. IV.4 - Effet du Ma-g-PP et du Surlyn (3% en masse) sur la réponse hyperélastique du mélange EPDM/PP

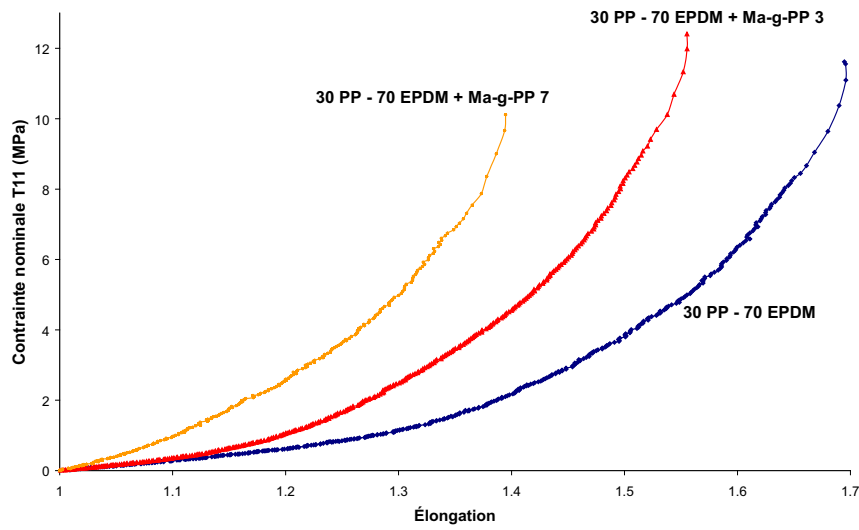


FIG. IV.5 - Effet du Ma-g-PP (3% et 7% en masse) sur la réponse hyperélastique du mélange EPDM/PP

La figure IV.6 représente les réponses du mélange 4 pour chaque taux et type de compatibilisateur étudié. Ainsi, on observe l'efficacité de chaque compatibilisateur en fonction de leur quantité dans le mélange et on suppose que la meilleure qualité d'adhésion entre l'EPDM et le PP est obtenue avec un pourcentage en masse de 7% de compatibilisateur.

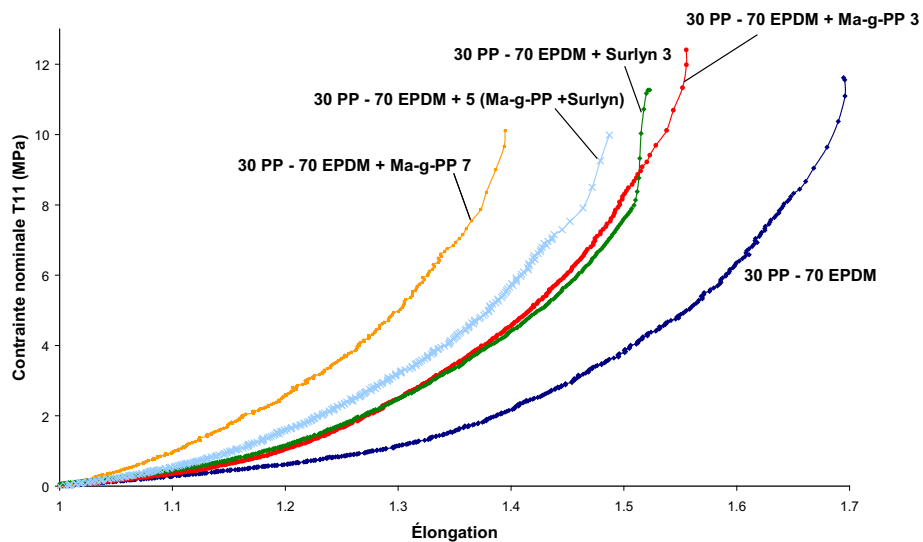


FIG. IV.6 - Comparaison de l'effet des compatibilisateurs sur la réponse hyperélastique du mélange

IV.3 Modélisation micromécanique du comportement hyperélastique

Nous venons de voir, grâce à l'étude expérimentale réalisée, que l'ajout de compatibiliseur au mélange EPDM/PP permettait un effet de renforcement plus important des particules de PolyPropylène sur le comportement de l'EPDM et ceci grâce à une amélioration de l'adhésion entre l'EPDM et les particules de PP. Cependant, cette analyse expérimentale ne permet pas de savoir à quel point cette adhérence a été améliorée. Un de nos objectifs est ainsi de déterminer si l'adhésion obtenue peut être considérée comme quasi-parfaite. Afin, de répondre à ce but, nous allons mettre en œuvre le modèle d'homogénéisation dont les prédictions ont été vérifiées au chapitre III et que l'on sait basé sur une hypothèse d'adhérence matrice-particules parfaite. Par une comparaison des prédictions du modèle d'homogénéisation aux réponses expérimentales, on espère pouvoir évaluer l'efficacité du compatibiliseur, et, par la même, renforcer la validation de la méthode d'homogénéisation.

IV.3.1 Identification du comportement des constituants

On rappelle que la modélisation micromécanique proposée nécessite la connaissance du comportement de chaque phase du matériau et requiert donc une identification des paramètres des lois de comportement utilisées pour les modéliser. C'est ce à quoi nous allons nous attacher à présent.

IV.3.1.1 Principe de l'identification

Pour identifier le comportement du PolyPropylène pur, des essais de traction uniaxiale ont également été réalisés, les résultats obtenus sont représentés sur la figure IV.7. On remarque que le comportement du PP est de nature élasto-plastique, les décharges étant élastiques linéaires avec des déformations permanentes qui subsistent. Cependant, la modélisation micromécanique développée fait l'hypothèse que chaque phase du composite est hyperélastique, ce qui n'est pas le cas du PolyPropylène. Mais, du fait de la faible rigidité de l'EPDM par rapport à celle du PP, les déformations atteintes dans les particules sont espérées suffisamment faibles (nous vérifierons ces propos numériquement dans nos simulations) pour considérer que le PolyPropylène restera dans la phase élastique de son comportement. Ainsi, une modélisation du comportement du PolyPropylène par une densité d'énergie de déformation $W^2(\mathbf{F})$, utilisée pour modéliser un comportement hyperélastique, est alors possible et tout à fait justifiée.

De plus, nous ne considérerons dans un premier temps que des trajets de charge dans nos simulations, ce qui évite tout ennui de prise en compte de phénomène irréversible dans la modélisation du comportement du PolyPropylène. Les trajets charge-décharge ne sont envisagés, au cours du chapitre V, qu'après avoir pris soin de montrer numériquement que les déformations de la phase

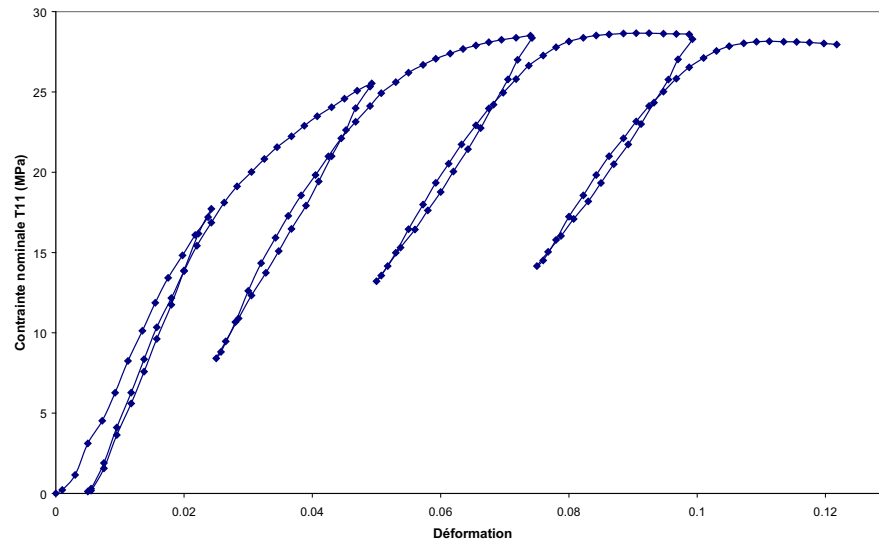


FIG. IV.7 - Réponse expérimentale du PP à une sollicitation uniaxiale

PP demeurent dans le domaine élastique autorisant, de fait, l'utilisation, également dans ce cas, d'une densité d'énergie.

On limitera donc l'identification du comportement du PolyPropylène sur la plage d'élongation allant de 1 à 1,06 (voir figure IV.8).

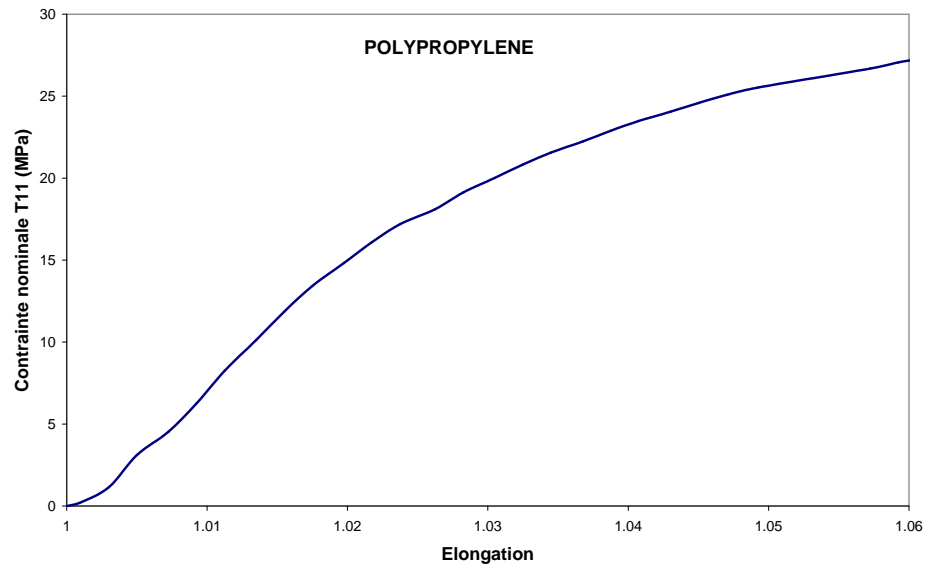


FIG. IV.8 - Comportement uniaxiale du PP servant à l'identification de la densité d'énergie

S'agissant de l'EPDM, l'identification des paramètres de la densité d'énergie de déformation

est faite grâce à la courbe de comportement purement hyperélastique en traction uniaxiale représentée ici sur la figure IV.9.

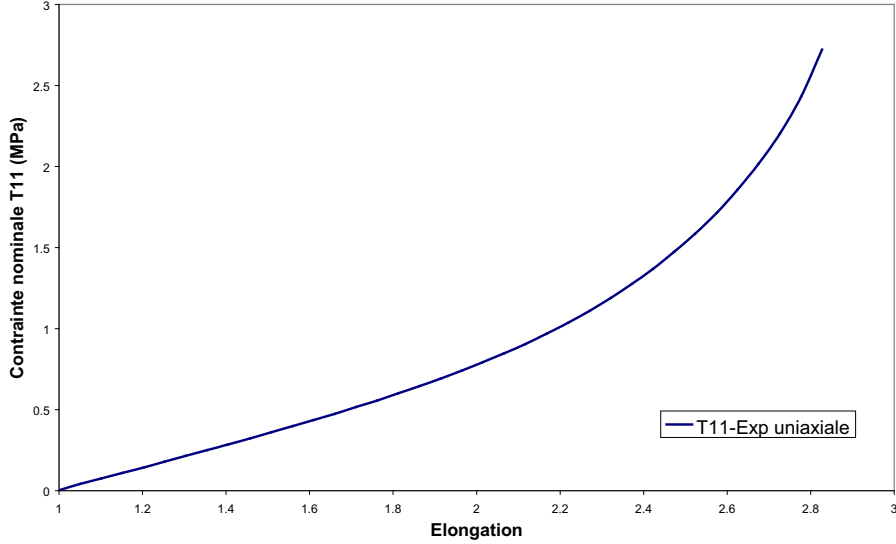


FIG. IV.9 - Réponse de l'EPDM en traction uniaxiale

Intéressons-nous maintenant au principe de l'identification des paramètres de ces densités d'énergie de déformation. Pour un chargement de traction uniaxiale (TU) $\mathbf{F} = \text{Diag}(\lambda, \alpha, \alpha)$ (α étant déterminé afin de vérifier la condition de chargement uniaxial), les expressions des invariants principaux et des contraintes nominales (Piola-Kirchhoff 1) sont :

$$\left\{ \begin{array}{l} I_1 = \lambda^2 + 2\alpha^2 \\ I_2 = \alpha^2(\alpha^2 + 2\lambda^2) \\ I_3 = \lambda^2\alpha^4 \\ T_{11}^{TU\text{-théorique}} = 2\lambda \left[\frac{\partial W}{\partial I_1} + 2\frac{\partial W}{\partial I_2}\alpha^2 + \frac{\partial W}{\partial I_3}\alpha^4 \right] \\ T_{22}^{TU\text{-théorique}} = T_{33}^{TU\text{-théorique}} = 2\alpha \left[\frac{\partial W}{\partial I_1} + \frac{\partial W}{\partial I_2}(\lambda^2 + \alpha^2) + \frac{\partial W}{\partial I_3}\lambda^2\alpha^2 \right] \end{array} \right. \quad (\text{IV.1})$$

Pour l'identification des paramètres d'une densité d'énergie à partir des résultats d'essais de traction uniaxiale, les conditions suivantes sont à vérifier :

$$\left\{ \begin{array}{l} \text{(i)} \quad T_{11}^{TU\text{-expérimentale}} = T_{11}^{TU\text{-théorique}} \\ \text{(ii)} \quad T_{22}^{TU\text{-théorique}} = T_{33}^{TU\text{-théorique}} = 0 \\ \text{(iii)} \quad T_{ij}^{TU\text{-théorique}}(\mathbf{F}) = 0 \quad (i, j = 1..3) \quad \text{lorsque } \mathbf{F} = \mathbf{I} \end{array} \right. \quad (\text{IV.2})$$

La détermination des paramètres est faite, grâce à une méthode des moindres carrés, en minimisant l'erreur relative en contraintes, notée E , par vérification simultanée des conditions (i), (ii), (iii). Pour les n paires contrainte/déformation, l'erreur relative E est définie par :

$$E = \sum_{i=1}^n \left(1 - \frac{\text{contrainte théorique}}{\text{contrainte expérimentale}} \right)^2$$

IV.3.1.2 Identification du comportement du PolyPropylène

Attachons-nous maintenant en particulier à l'identification du comportement du PolyPropylène. La densité d'énergie de déformation utilisée est celle proposée par Ciarlet et Geymonat [32] dont l'expression est :

$$W^{(2)}(\mathbf{F}) = W^{(2)}(I_1, I_2, I_3) = C_1 (I_1 - 3) + C_2 (I_2 - 3) + C_3 (I_3 - 1) - B \ln(I_3) \quad (\text{IV.3})$$

où C_1 , C_2 , C_3 et B sont les paramètres à identifier pour le matériau considéré.

Notons que, dans le cas limite des petites perturbations, le matériau décrit par (IV.3) peut être considéré linéaire et isotrope avec les coefficients de Lamé $\lambda = 4(C_2 + C_3)$ et $\mu = 2(C_1 + C_2)$.

Pour le chargement de traction uniaxiale, les expressions des contraintes nominales (Piola-Kirchhoff 1) deviennent :

$$\begin{cases} T_{11}^{TU\text{-théorique}} = 2\lambda \left[C_1 + 2C_2\alpha^2 + (C_3\alpha^4 - \frac{B}{\lambda^2}) \right] \\ T_{22}^{TU\text{-théorique}} = 2\alpha \left[C_1 + C_2(\lambda^2 + \alpha^2) + (C_3\lambda^2\alpha^2 - \frac{B}{\alpha^2}) \right] \end{cases} \quad (\text{IV.4})$$

et les conditions (IV.2) à vérifier sont alors :

$$\begin{cases} T_{11}^{TU\text{-expérimentale}} = T_{11}^{TU\text{-théorique}} \\ T_{22}^{TU\text{-théorique}} = 0 \Leftrightarrow \alpha^2 = \frac{-(C_1 + C_2\lambda^2) + \sqrt{(C_1 + C_2\lambda^2)^2 + 4B(C_2 + C_3\lambda^2)}}{2(C_2 + C_3\lambda^2)} \\ \text{avec } C_1 + C_2 > 0 \text{ et } C_2 + C_3 > 0 \\ T_{ij}^{TU\text{-théorique}}(\mathbf{I}) = 0 \Leftrightarrow B = C_1 + 2C_2 + C_3 \end{cases} \quad (\text{IV.5})$$

La figure IV.10 illustre le résultat de l'identification des paramètres déterminés à partir de la procédure décrite, les valeurs obtenues étant :

$$C_1 = -826.889 \text{ MPa} ; C_2 = 962.767 \text{ MPa} ; C_3 = 99.90235 \text{ MPa} \text{ et } B = 1198.5469 \text{ MPa}$$

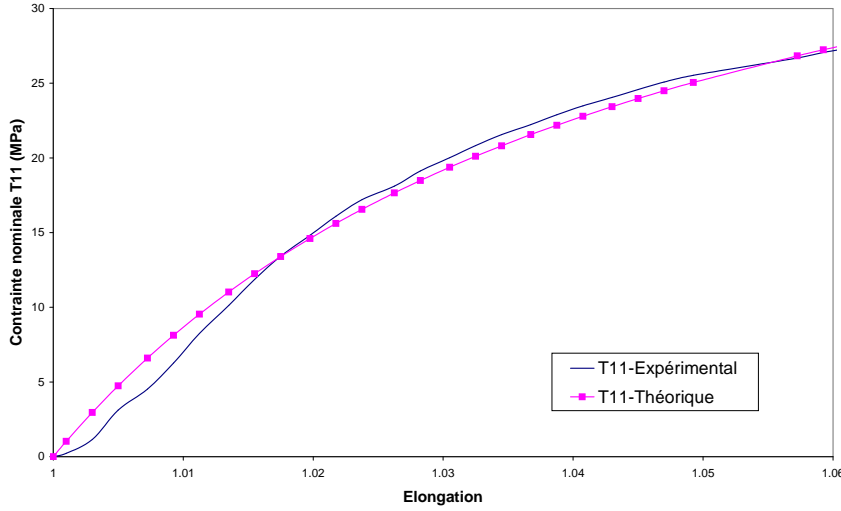


FIG. IV.10 - Confrontation du résultat de la densité d'énergie de Ciarlet et Geymonat aux données expérimentales pour le PP

IV.3.1.3 Identification du comportement de l'EPDM

Pour modéliser le comportement de l'EPDM, la densité d'énergie de déformation utilisée est celle proposée par Lambert-Diani and Rey [66] dont l'expression est :

$$W^{(1)}(\mathbf{F}) = \int_3^{I_1} e^{(\alpha_0 + \alpha_1(I_1-3) + \alpha_2(I_1-3)^2)} dI_1 + \int_3^{I_2} \beta_1 I_2^{\beta_2} dI_2 \quad (IV.6)$$

où α_0 , α_1 , α_2 , β_1 , β_2 sont les paramètres à identifier pour le matériau considéré.

Cette densité d'énergie a été choisie car il a été montré par les auteurs qu'elle était capable de reproduire le comportement des élastomères même aux fortes elongations où l'on a vu au chapitre I qu'il y avait une rigidification du comportement qui est souvent mal prise en compte par d'autres modèles de densité (voir [66]). Les expressions des contraintes nominales (Piola-Kirchhoff 1) pour un chargement de traction uniaxiale deviennent :

$$\begin{cases} T_{11}^{TU-théorique} = 2\lambda \left[e^{(\alpha_0 + \alpha_1(I_1-3) + \alpha_2(I_1-3)^2)} + 2\beta_1 I_2^{\beta_2} \alpha^2 \right] \\ T_{22}^{TU-théorique} = 2\alpha \left[e^{(\alpha_0 + \alpha_1(I_1-3) + \alpha_2(I_1-3)^2)} + \beta_1 I_2^{\beta_2} (\lambda^2 + \alpha^2) \right] \end{cases} \quad (IV.7)$$

et les conditions à vérifier sont alors :

$$\begin{cases} \text{(i)} & T_{11}^{TU-expérimentale} = T_{11}^{TU-théorique} \\ \text{(ii)} & T_{22}^{TU-théorique} = 0 \\ \text{(iii)} & T_{ij}^{théorique}(\mathbf{I}) = 0 \quad (i, j = 1..3) \Leftrightarrow e^{\alpha_0} + 2\beta_1 3^{\beta_2} = 0 \end{cases} \quad (IV.8)$$

Du fait, du choix de la densité d'énergie utilisée pour modéliser le comportement de l'EPDM, la condition (ii) ne peut pas être résolue analytiquement comme c'était le cas avec la densité

polynomiale (IV.3). Ceci est donc fait numériquement en imposant cette condition pour la résolution de (i). Ainsi, la figure IV.11 illustre les résultats de l'identification des paramètres qui ont été déterminés avec les valeurs suivantes :

$$e^{\alpha_0} = 0,2246 \text{ MPa} ; \alpha_1 = 0,013051 ; \alpha_2 = 0,024 ;$$

$$e^{\beta_1} = 0,38104 \text{ MPa} ; \beta_2 = -2,03234$$

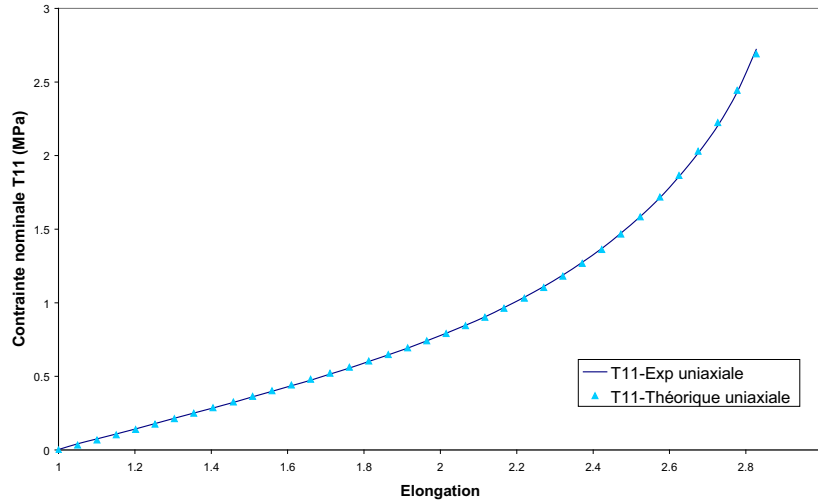


FIG. IV.11 - Confrontation de la densité d'énergie de Lambert-Diani et Rey aux données expérimentales pour l'EPDM

Remarque : Il est à noter qu'il est classiquement reconnu que l'identification d'une densité d'énergie doit être faite à partir de deux essais mécaniques distincts, généralement l'essai de traction uniaxiale et l'essai de traction équi-biaxiale. Malheureusement, seules les éprouvettes de traction uniaxiale étaient à notre disposition. La qualité des densités ainsi identifiées, uniquement à partir de la traction uniaxiale, peut être remise en cause pour d'autres types de chargement.

IV.3.2 Résultats de la modélisation micromécanique et vérification par comparaison aux simulations par éléments finis

Nous venons d'identifier le comportement des 2 constituants du matériau composite étudié : le mélange EPDM/PP, dont la morphologie correspond à des particules supposées sphériques de PolyPropylène noyées dans une matrice élastomérique, l'EPDM. Il est maintenant possible de mettre en œuvre sur ce matériau le modèle d'homogénéisation dont les prédictions se sont avérées de bonne qualité lors de comparaison à des solutions éléments finis (cf. chapitre III).

Dans cette section, en raison de la considération d'une nouvelle densité d'énergie, en l'occurrence celle proposée par Lambert-Diani et Rey, nous commençons par présenter les résultats du modèle que nous confronterons une nouvelle fois pour vérification à des solutions éléments finis. La

confrontation proprement dite aux données expérimentales fera l'objet de la section IV.3.3.

Remarque : Pour appliquer le modèle d'homogénéisation, nous avons dû transformer les fractions massiques (f_m) de chacun des 2 constituants en fractions volumiques (f_v) car le modèle est basé sur ces dernières. Pour cela, nous disposons des masses volumiques de l'EPDM et du PP considérés : $\rho_{EPDM} = 870\text{kg/m}^3$ et $\rho_{PP} = 910\text{kg/m}^3$, et de la relation suivante :

$$f_{v\ PP} = \frac{f_{m\ PP} \rho_{EPDM}}{f_{m\ PP} \rho_{EPDM} + f_{m\ EPDM} \rho_{PP}}.$$

On présente d'abord les prédictions du modèle pour les mélanges 1, 2, 3 et 4 (voir tableau IV.2) sur la figure IV.12. Sur cette figure, on présente les résultats fournis par le modèle d'homogénéisation en considérant :

- d'une part, la méthode du second ordre dans le cas où les particules de PP sont considérées déformables (voir section II.4), c'est-à-dire modélisées avec la densité d'énergie de déformation polynomiale (IV.3) identifiée.
- d'autre part, la méthode du second ordre adaptée aux particules rigides (voir section C.1), une hypothèse de particules rigides indéformables pour le PolyPropylène étant justifiable du fait de la faible rigidité de l'EPDM par rapport à celui-ci.

Ainsi, la comparaison des prédictions de ces 2 configurations permettra d'évaluer la pertinence de l'hypothèse de particules rigides, qui simplifie de nombreux calculs du modèle d'homogénéisation. Les résultats indiquent bien que les 2 configurations, pour décrire les particules de PolyPropylène, sont équivalentes. Nous considérerons donc les particules de PP rigides indéformables par rapport à la matrice EPDM.

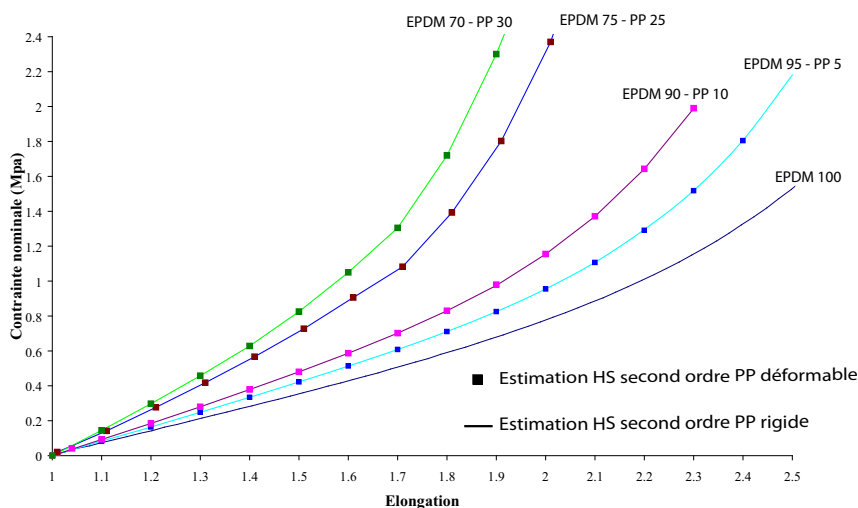


FIG. IV.12 - Confrontation des prédictions du modèle d'Hashin-Shtrikman pour des particules de PP rigides ou déformables

Afin de vérifier de façon plus précise l'hypothèse que nous avons faite au moment de l'identification du comportement du PolyPropylène, c'est-à-dire qu'il resterait au cours du chargement dans sa phase de comportement élastique, nous traçons les courbes d'élongation moyenne et de contrainte moyenne équivalente au sens de Von Mises en fonction de l'élongation macroscopique (respectivement sur les figures IV.13 et IV.14).

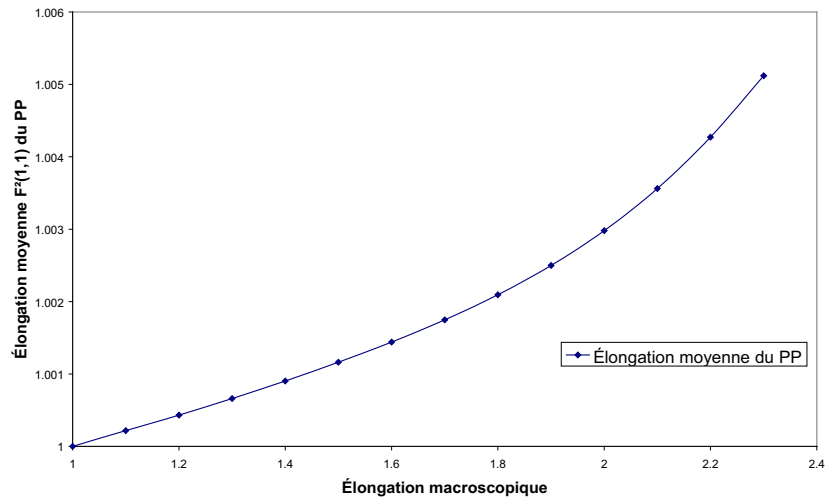


FIG. IV.13 - Élongation moyenne dans le PolyPropylène en fonction de l'élongation macroscopique au cours du chargement de traction uniaxiale

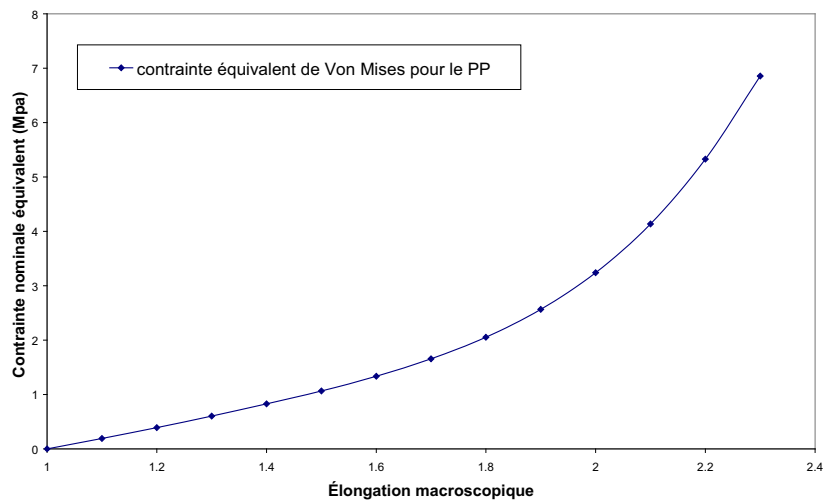


FIG. IV.14 - Contrainte moyenne équivalente dans le PolyPropylène en fonction de l'élongation macroscopique au cours du chargement de traction uniaxiale

Ainsi, on observe, tout d'abord, que l'élongation moyenne reste très faible (inférieure à 1.01) ce qui est conforme à la quasi-rigidité des particules de PolyPropylène par rapport à l'EPDM telle que nous venons de la vérifier. Ensuite, la figure IV.14 nous permet de voir que les contraintes du PolyPropylène restent également faibles au regard de la courbe de comportement IV.7, pour justifier qu'il reste élastique au cours du chargement. En effet, la contrainte équivalente au sens de Von mises pour le PolyPropylène atteint environ 7 MPa alors que l'estimation de la limite élastique à partir des données expérimentales représentées sur la courbe de comportement IV.7 est d'environ 18 MPa. L'hypothèse faite afin de modéliser le comportement du PP, grâce à une densité d'énergie de déformation hyperélastique, s'avère donc tout à fait justifiée.

Vérifions maintenant les prédictions du modèle d'homogénéisation en les comparant aux solutions éléments finis obtenues de la même façon qu'au chapitre III. Cependant, un développement supplémentaire est nécessaire afin de se placer dans un cadre rigoureux de vérification du modèle : il faut introduire, dans le code Abaqus, la densité d'énergie de déformation choisie pour modéliser le comportement de l'EPDM (IV.6). Pour cela, nous allons exploiter la possibilité qu'offre le logiciel Abaqus à l'utilisateur de définir sa propre loi de comportement. Ceci a consisté à programmer, en FORTRAN, une subroutine UMAT spécifique au modèle correspondant à la densité de Lambert-Diani et Rey. Un certain nombre d'entrées de cette subroutine sont gérées par le code, mais l'utilisateur doit fournir les composantes du tenseur des contraintes de Cauchy et la matrice Jacobienne des contraintes vis-à-vis des déformations pour une valeur actuelle donnée de la déformation. Le code travaille en Lagrangien réactualisé. A la fin de chaque incrément, les valeurs des variables d'état du le modèle constitutif doivent être mises à jour.

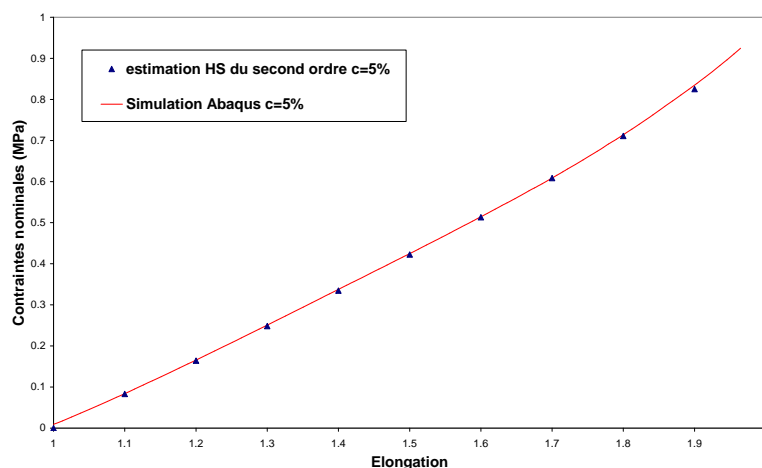


FIG. IV.15 - Confrontation de la prédiction du modèle d'Hashin-Shtrikman à la simulation éléments finis en traction uniaxiale pour l'EPDM contenant 5% de PP

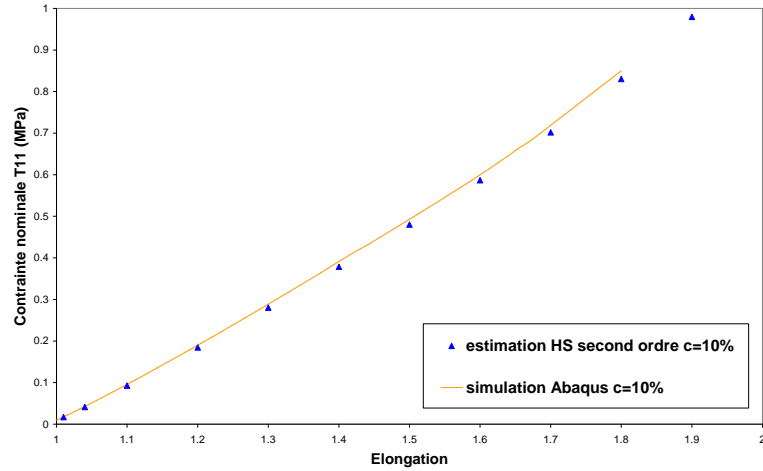


FIG. IV.16 - Confrontation de la prédiction du modèle d'Hashin-Shtrikman à la simulation éléments finis en traction uniaxiale pour l'EPDM contenant 10% de PP

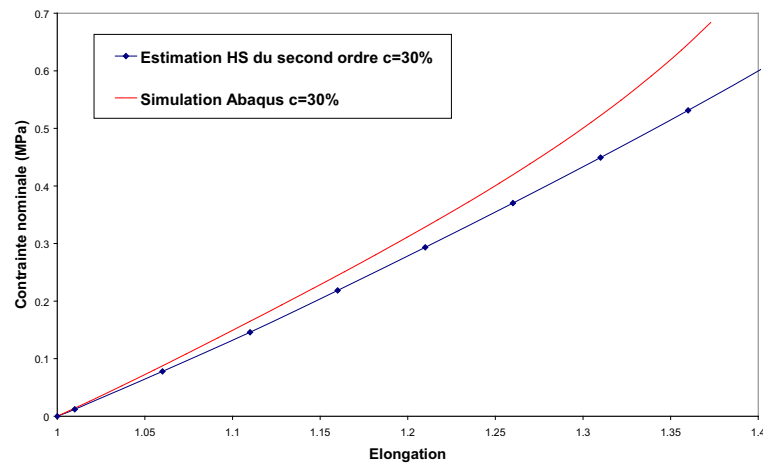


FIG. IV.17 - Confrontation de la prédiction du modèle d'Hashin-Shtrikman à la simulation éléments finis en traction uniaxiale pour l'EPDM contenant 30% de PP

Nous déterminons les contraintes de Cauchy à partir des contraintes de Piola Kirchhoff 1 \mathbf{T} (cf chapitre I) ; l'expression obtenue est la suivante :

$$\boldsymbol{\sigma} = \frac{2}{J} \left(e^{(\alpha_0 + \alpha_1(I_1 - 3) + \alpha_2(I_1 - 3)^2)} + \beta_1 I_2^{\beta_2} I_1 \right) \mathbf{B} - \frac{2}{J} \beta_1 I_2^{\beta_2} \mathbf{B} \cdot \mathbf{B} \quad (\text{IV.9})$$

où $\mathbf{B} = \mathbf{F}\mathbf{F}^t$ est le tenseur de déformation de Cauchy-Green gauche.

Ainsi, la matrice Jacobienne \mathbb{C} du matériau est définie par la variation des contraintes $J\boldsymbol{\sigma}$:

$$\delta(J\boldsymbol{\sigma}) = J\mathbb{C} : \delta\mathbf{D} \quad (\text{IV.10})$$

où $\delta\mathbf{D}$ est le taux de déformation virtuel qui est la partie symétrique du gradient de la variation de déplacement. En fait, il est possible d'exprimer toutes les quantités de $\delta(J\sigma)$ en fonction de $\delta\mathbf{D}$ (pour plus de détails, voir le manuel Abaqus [1]). Nous pouvons alors déterminer la matrice jacobienne du matériau (voir annexe F).

Les figures IV.15, IV.16 représentent les comparaisons des prédictions de traction uniaxiale du modèle d'Hashin-Shtrikman aux solutions éléments finis pour des fractions volumiques de 5% et 10% de PolyPropylène considéré rigide indéformable par rapport à la matrice EPDM. La comparaison est remarquable. On soulignera néanmoins qu'en raison de distorsions trop importantes des mailles, les calculs éléments finis n'ont pu être menés que jusqu'aux valeurs maximales d'élongation indiquées sur ces figures. La figure IV.17 correspondant au taux de charge de 30% montre une concordance un peu moins bonne que pour les cas précédents.

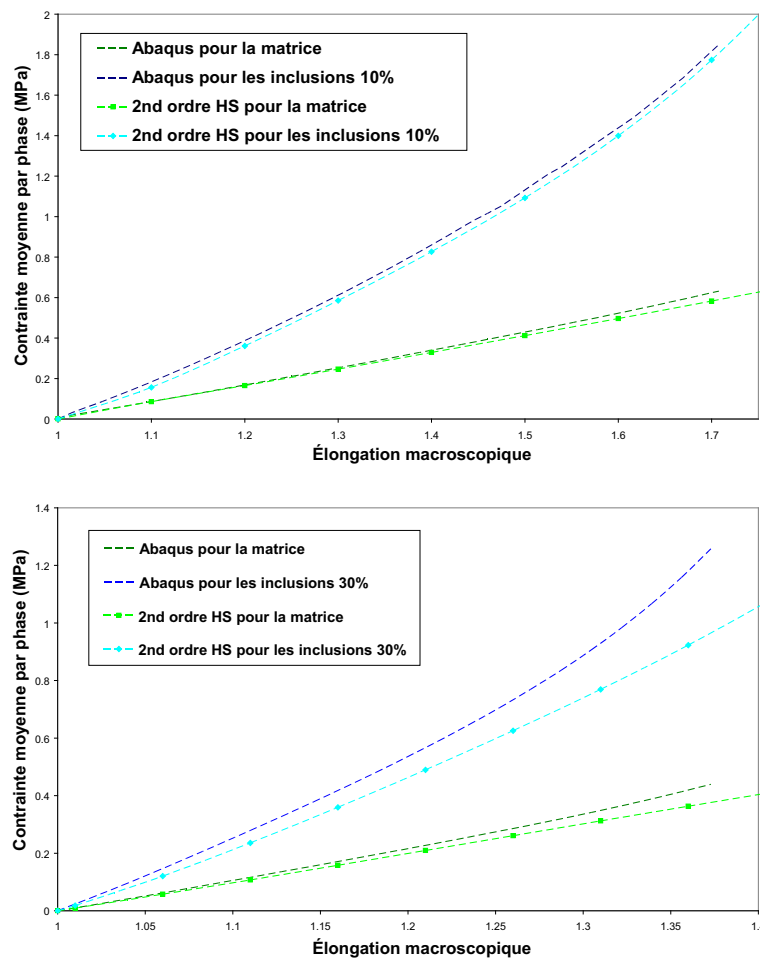


FIG. IV.18 - Confrontation en traction uniaxiale des prédictions des contraintes moyennes par phase du modèle d'Hashin-Shtrikman aux simulations éléments finis pour l'EPDM contenant 10% ou 30% de PP

Pour essayer de mieux comprendre ce moins bon accord pour ce fort taux de renfort, nous comparons les prédictions des contraintes moyennes par phase du modèle aux solutions éléments finis (voir figures IV.18). Ainsi, on observe que la prédiction est moins bonne, dans les renforts, pour l'EPDM contenant 30% de PP que pour celui avec 10%.

De plus, observons, respectivement sur les figures IV.19 et IV.20, les cartes de distributions des contraintes et des déformations axiales obtenues grâce aux simulations par éléments finis.

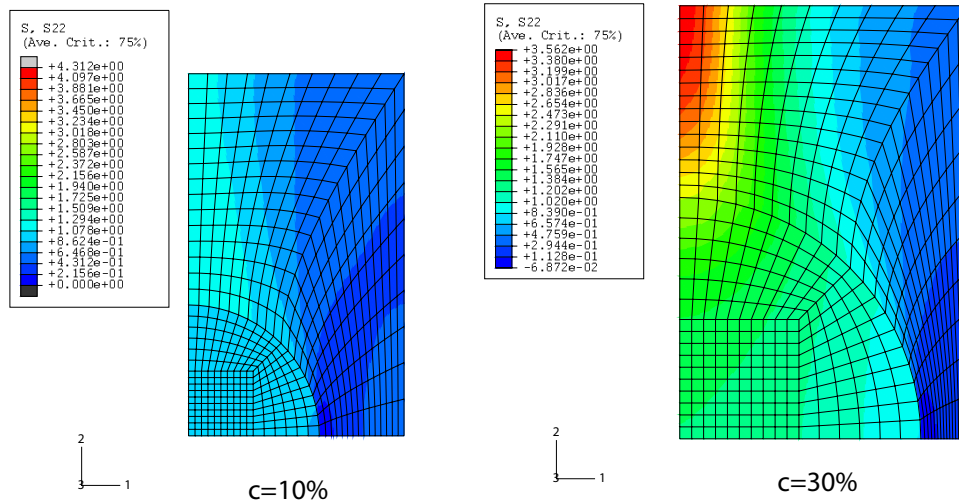


FIG. IV.19 - Distribution des contraintes longitudinales en traction uniaxiale pour une élongation macroscopique $\bar{\mathbf{F}}_{11} = 1.4$ pour des taux de renforts de 10% et 30%

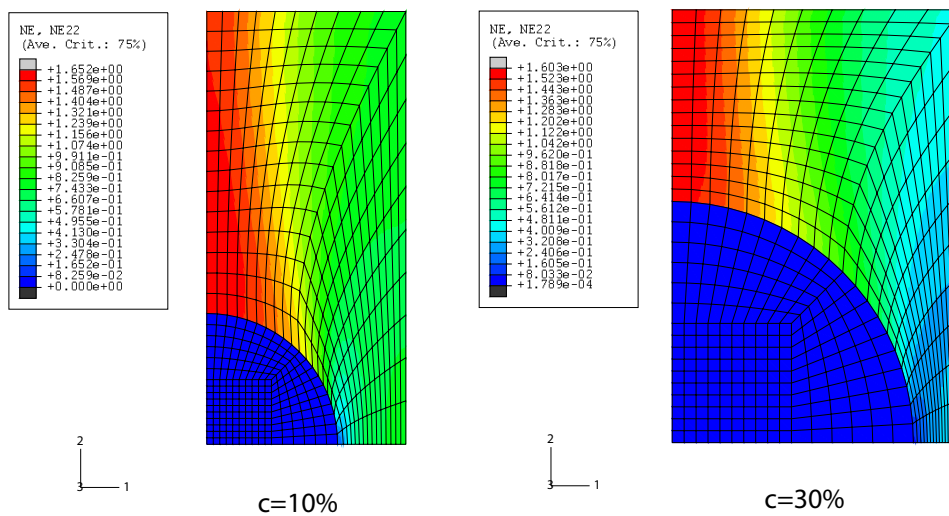


FIG. IV.20 - Distribution des déformations longitudinales en traction uniaxiale pour des taux de renforts de 10% et 30%

On peut ainsi remarquer une hétérogénéité des contraintes plus importantes, que ce soit dans la matrice ou dans les renforts, pour l'EPDM contenant 30% de PP que celui en contenant 10%. C'est cette hétérogénéité et notamment sa prise en compte non complète dans le modèle d'homogénéisation qui pourrait expliquer l'écart observé lors des précédentes comparaisons de prédictions .

Concernant la distribution des déformations, on observe également une forte hétérogénéité, plus particulièrement il y a une zone de forte élongation juste au-dessus des renforts, mais si on compare les déformations axiales moyennes par phase obtenues par le modèle et le calcul par éléments, on observe (voir figure IV.21) un bon accord entre les 2 prédictions et pour chacun des taux de renforts (10% et 30%).

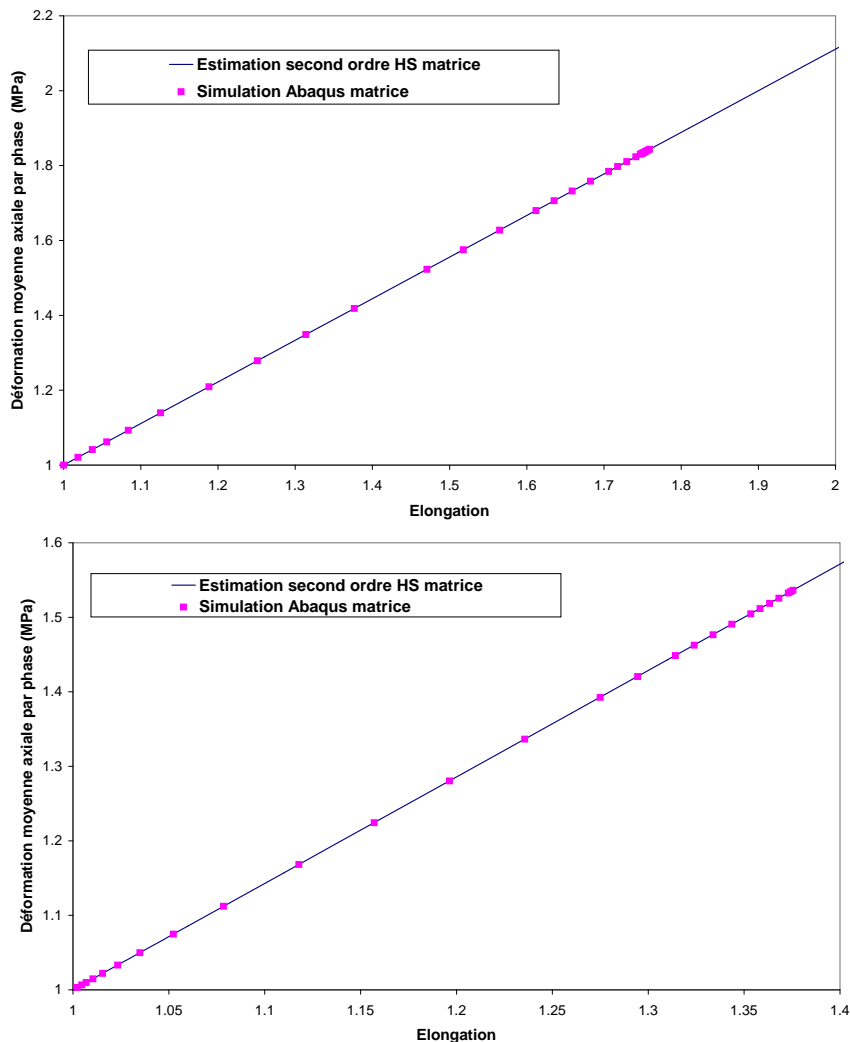


FIG. IV.21 - Confrontation en traction uniaxiale des prédictions des déformations moyennes par phase du modèle d'Hashin-Shtrikman aux simulations éléments finis pour l'EPDM contenant 10% ou 30% de PP

IV.3.3 Comparaison aux données expérimentales

Après avoir vérifié à nouveau les capacités du modèle d'homogénéisation par comparaison de ses prédictions avec des simulations par éléments finis, nous allons maintenant les comparer aux données expérimentales. Dans un premier temps, pour les mélanges ne contenant pas de compatibilisateurs puis, dans un second temps pour le mélange 7 c'est-à-dire l'EPDM contenant 30% de PP et 7% de compatibilisateurs Ma-g-PP dont on a souligné, expérimentalement, la meilleure efficacité en terme d'amélioration d'adhésion matrice-particules, donc de l'effet de renforcement du PP.

IV.3.3.1 Matériau à faible taux de renforts

On présente ici les comparaisons des prédictions du modèle d'homogénéisation basé sur le schéma d'Hashin-Shtrikman couplé à la méthode du second ordre aux données expérimentales de différents mélanges considérés sans compatibilisateurs (voir figures IV.22, IV.23).

On observe, pour ces taux de 5% et 10% de particules renforçantes de PolyPropylène, que les prédictions du modèle d'homogénéisation surestime la contrainte uniaxiale pour une déformation donnée. Le fait que le matériau ne contienne pas de compatibilisateurs, suggère que, lors du chargement, une décohésion particules-matrice se produit, ce qui expliquerait l'écart entre les prédictions et les données expérimentales, le modèle étant basé sur une hypothèse d'adhésion parfaite entre la matrice et les particules.

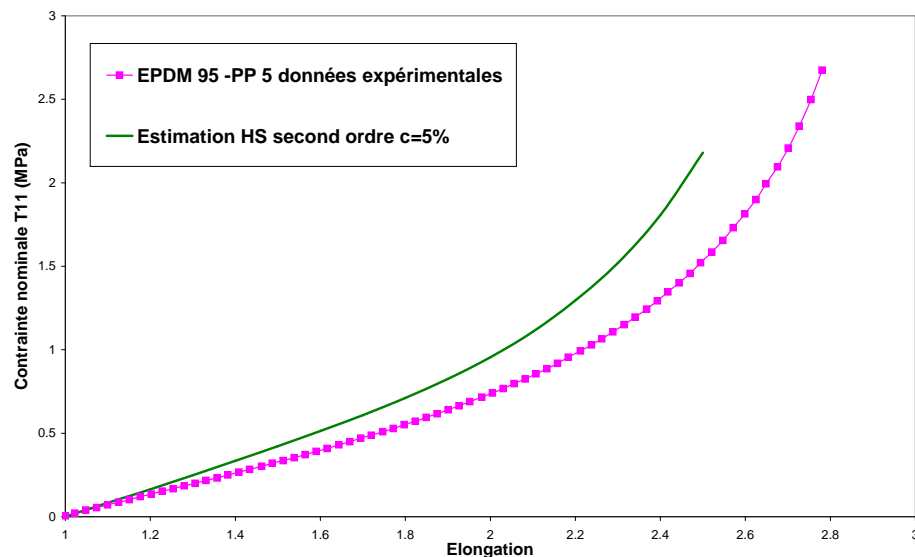


FIG. IV.22 - Confrontation de la prédiction du modèle d'Hashin-Shtrikman aux données expérimentales en traction uniaxiale pour l'EPDM contenant 5% en masse de PP

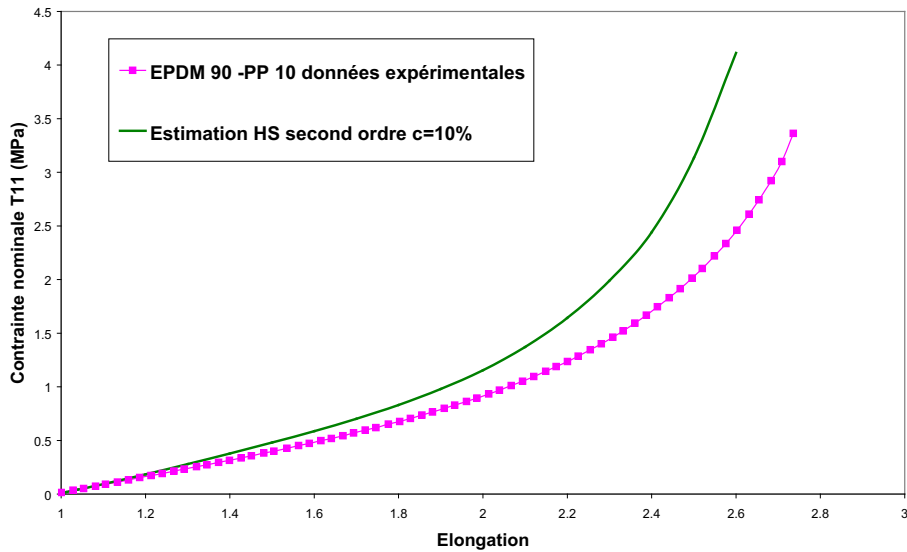


FIG. IV.23 - Confrontation de la prédiction du modèle d'Hashin-Shtrikman aux données expérimentales en traction uniaxiale pour l'EPDM contenant 10% en masse de PP

IV.3.3.2 Matériau à fort taux de renforts

On s'intéresse maintenant au matériau contenant 30% en masse de particules. Les résultats du modèle d'homogénéisation sont comparés aux données expérimentales sur la figure IV.24. Sont également reportées sur cette figure les courbes expérimentales du matériau avec ou sans compatibiliseur. A la différence des résultats de la sous section précédente, le modèle sous estime les données expérimentales en l'absence de compatibiliseur et ses prédictions se trouvent très en deçà de la courbe correspondant au matériau avec compatibiliseur. La confrontation modèle/expérience pour le matériau à 30% en masse de particules se révèle donc moins concluante que pour le matériau à faible taux de charge. Diverses explications peuvent être avancées pour cela :

- Le matériau considéré ici présente un contraste de phases très différent de celui que nous avons analysé au chapitre III. Il est donc fort probable que le léger écart noté auparavant sur les champs locaux dans les renforts (cf. Chapitre III) soit amplifié ici, ceci peut être significatif pour le comportement macroscopique correspondant aux matériaux à forts taux de renforts.
- Pour les forts taux de particules, il est possible que le comportement de l'EPDM soit modifié au sein du composite. Un tel type de modification a été déjà notée par certains auteurs pour des composites à matrice métallique.
- L'identification de la loi de comportement de la matrice a été réalisée sur les données de traction uniaxiale. Or, l'état local prédit par le modèle d'homogénéisation est multiaxial.

On peut donc se demander dans quelle mesure cela affectera la réponse locale et par suite la réponse macroscopique du composite.

- Enfin, toute la modélisation est basée sur l’hypothèse de phases compressibles. Qu’en est-il en réalité pour le matériau étudié ?

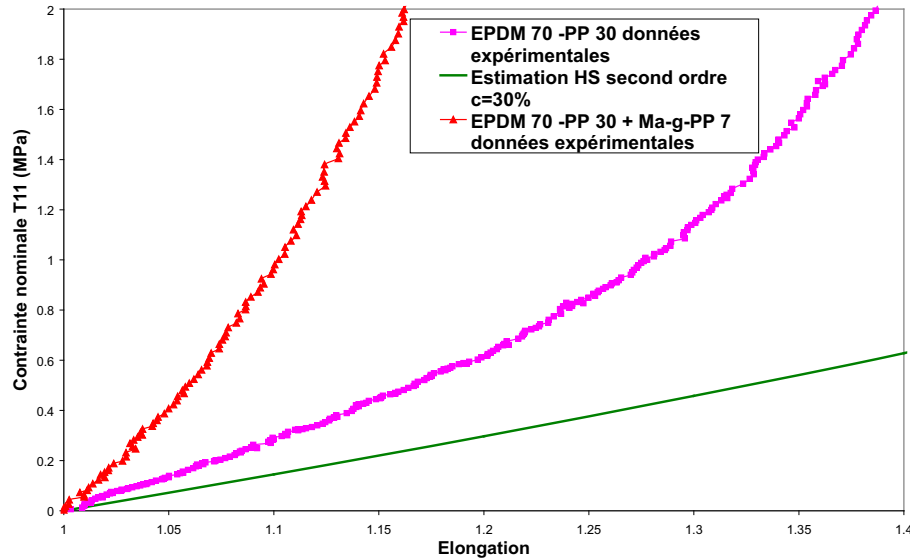


FIG. IV.24 - Confrontation de la prédiction du modèle d'Hashin-Shtrikman aux données expérimentales en traction uniaxiale pour l'EPDM contenant 30% en masse de PP

IV.4 Conclusions

Dans ce chapitre, une étude expérimentale du comportement mécanique de différents mélanges d'EPDM et de PP a été menée. Les mélanges étudiés conduisent à un comportement hyperélastique du composite, ce qui justifie la mise en œuvre du modèle d'homogénéisation proposé.

L'étude expérimentale a permis de caractériser l'effet de renforcement des particules de Poly-Propylène avec ou sans ajout de compatibilisateurs pour améliorer la liaison entre les constituants. Nous avons ensuite étudié l'efficacité des compatibilisateurs selon leur type et leur quantité dans le mélange ; les résultats indiquent que le mélange (EPDM 70 - PP 30) contenant 7% en masse de compatibilisateur Ma-g-PP donne les meilleurs résultats en terme d'effet de renforcement des particules de PP donc de compatibilisation de l'EPDM et du PP.

Disposant de données expérimentales pour chacun des 2 constituants des mélanges, nous avons pu mettre en œuvre la méthode d'homogénéisation du second ordre et comparer ses résultats aux données expérimentales. Tout d'abord, l'étude des mélanges ne contenant pas de compatibilisateurs a permis de noter que pour de faibles taux de renforts (5% et 10%), le modèle surestime

les contraintes. Ce résultat est conforme au fait que l'adhérence entre les phases dans le matériau réel n'est pas parfaite comme le suppose le modèle. Ceci incite donc, à remettre en cause l'hypothèse d'adhésion parfaite entre les particules de PP et la matrice élastomérique. L'analyse du matériau à fort taux de renfort est moins concluante, le modèle sous estimant les contraintes dans ce cas. Diverses raisons ont été évoquées pour expliquer ce résultat (cf. sous section IV.3.3.2). Tout au moins pour les matériaux à 5% et 10% de renforts, l'écart entre le modèle micromécanique et les données expérimentales peut être imputé à une non prise en compte d'autres mécanismes de déformation tels que par exemple une décohésion à l'interface imparfaite matrice-particules ou d'autres modes d'endommagement induits lors de la première charge. Le dernier chapitre vise à incorporer dans la modélisation micromécanique certains phénomènes d'endommagement.

Chapitre V

Modélisation micromécanique de l'endommagement des élastomères

Suite à l'étude expérimentale, menée au cours du chapitre précédent et qui a révélé que le modèle d'homogénéisation n'était pas en bon accord avec les données expérimentales et compte tenu de sa vérification grâce à des simulations éléments finis permettant une comparaison rigoureuse des prédictions des deux approches, nous sommes arrivés à la conclusion qu'il est nécessaire d'incorporer d'autres mécanismes de déformation dans le modèle.

On s'attache, dans ce chapitre, à la prise en compte des phénomènes d'endommagement pouvant apparaître au sein des matériaux élastomères au cours d'un chargement. Plus précisément, nous explorons la modélisation de la présence et/ou croissance de microcavités dans la matrice non linéaire (voir [21]). Les phénomènes de cavitation, traités par exemple par [43] ou [126], ne seront pas abordés dans cette étude. La démarche adoptée peut être déclinée en trois points : i) on particularise les résultats du modèle d'homogénéisation précédemment élaboré pour une matrice hyperélastique et des inclusions déformables (cf. chapitres II et III) au cas des élastomères poreux. Ceci permettra, par exemple dans le cas de microcavités sphériques, d'obtenir la densité d'énergie macroscopique \widetilde{W} du matériau poreux comme fonction de la déformation macroscopique $\widetilde{\mathbf{F}}$ et de la porosité c qui apparaît alors comme une variable interne d'endommagement isotrope ; le modèle de milieu poreux hyperélastique est validé par comparaison avec des résultats de calcul éléments finis ; ii) par combinaison des résultats de l'homogénéisation du matériau poreux et d'arguments classiques de la thermodynamique des milieux endommageables, on formule un modèle complet d'endommagement incluant la loi d'évolution de la porosité (endommagement) ; iii) le modèle d'endommagement isotrope, à base micromécanique, est ensuite testé et appliqué sur le composite EPDM/PP pour lequel on dispose de données expérimentales. Le but recherché à ce stade de l'étude est simplement d'illustrer l'intérêt et les capacités du modèle hyperélastique endommageable à rendre compte du comportement de l'EPDM/PP. Le chapitre s'achève sur la description d'une extension préliminaire du modèle par incorporation de

l'anisotropie induite par le chargement mécanique.

Il convient d'ores et déjà de souligner que, par construction, la démarche suivie confère une base physique claire au modèle d'endommagement qui sera proposé.

V.1 Homogénéisation des élastomères poreux

Il est communément reconnu que la porosité affecte de façon significative la réponse macroscopique de matériaux hyperélastiques tels que les élastomères. Des tentatives diverses ont été faites pour modéliser les élastomères poreux. Blatz et Ko [13] proposent une approche phénoménologique qui a été récemment appliquée par Kakavas [58] pour la propagation de fissures dans ces milieux. Cependant, la formulation phénoménologique de ces modèles limitent leur domaine de validité. S'agissant des approches micromécaniques, on mentionnera tout particulièrement les travaux de Danielsson et al. [33] qui ont considéré un champ cinématiquement admissible pour construire la densité macroscopique d'une cellule poreuse, en l'occurrence une sphère creuse. Comme souligné par [75], le modèle proposé par [33] correspond rigoureusement à une borne supérieure associée à l'assemblage de sphères d'Hashin. La méthode du second ordre, que nous retenons également pour l'étude des milieu poreux, fournit au contraire un cadre de modélisation s'appliquant à des microstructures plus générales. Il convient de noter l'existence d'autres types de modélisation par changement d'échelle, en particulier celles proposées par [34], pour l'étude de l'endommagement des élastomères chargés.

Au chapitre II, nous avons présenté la technique d'homogénéisation du second ordre et les algorithmes de mise en œuvre tridimensionnelle, que nous avons développés pour traiter le cas des matériaux hyperélastiques renforcés par des particules rigides ou déformables. Nous décrivons, maintenant dans cette section, comment la méthode s'adapte aux élastomères poreux.

Ainsi, après avoir précisé l'adaptation de la modélisation micromécanique précédemment proposée au cas des élastomères poreux, nous procéderons à sa vérification par comparaison à des solutions de référence obtenues à l'aide de simulations par éléments finis. Nous reviendrons ensuite à l'étude du mélange EPDM/PP, qui a fait l'objet du chapitre précédent, le but étant maintenant d'explorer en première approche l'effet d'une micro-porosité sur le comportement macroscopique du matériau.

V.1.1 Théorie du second ordre adaptée aux matériaux hyperélastiques poreux

Les matériaux composites que nous avons étudiés dans les précédents chapitres (à l'aide de la méthode du second ordre) consistent en une matrice hyperélastique contenant des inclusions de forme ellipsoïdale, aléatoirement dispersées. On note $c^{(2)} = c$ la fraction volumique de ces inclusions. Le comportement hyperélastique de la matrice est modélisé à l'aide d'une densité d'énergie de déformation $W^{(1)}(\mathbf{F})$.

L'étude des élastomères poreux peut être réalisée de manière simple en modélisant les micropores comme des milieux hyperélastiques de densité d'énergie de déformation nulle : $W^{(2)} = 0$. Une telle modélisation est rendue possible grâce à l'étude des inclusions déformables telle que nous l'avons faite au chapitre II. Ainsi l'estimation de la densité macroscopique \widetilde{W} (II.18) du matériau poreux prend la forme suivante :

$$\widetilde{W}(\bar{\mathbf{F}}) \simeq (1-c) \left\{ W^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) + \frac{1}{2} (\bar{\mathbf{F}} - \bar{\mathbf{F}}^{(1)}) : \mathbf{T}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) \right\} \quad (\text{V.1})$$

Celle des contraintes macroscopiques s'écrit :

$$\bar{\mathbf{T}}(\bar{\mathbf{F}}) = \frac{1-c}{2} \left[\mathbf{T}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) + [\mathbf{T}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) + \mathbb{L}^1(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) : (\bar{\mathbf{F}} - \bar{\mathbf{F}}^{(1)})] : \frac{\partial \bar{\mathbf{F}}^{(1)}}{\partial \bar{\mathbf{F}}} \right] \quad (\text{V.2})$$

avec $\mathbf{T}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) = \frac{\partial W^{(1)}}{\partial \mathbf{F}}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)})$ et $\mathbb{L}^1(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) = \mathbb{L}_t^1(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) = \frac{\partial^2 W^{(1)}}{\partial \mathbf{F} \partial \mathbf{F}}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)})$.

La seule inconnue à déterminer pour la mise en œuvre de la méthode du second ordre dans ce contexte est le gradient moyen de la transformation de la matrice, $\bar{\mathbf{F}}^{(1)}$, dans le composite linéaire de comparaison.

Nous avons vu que pour les composites biphasés, la procédure de résolution du problème de thermoélasticité (II.13), fournissant les déformations moyennes de chaque phase, est notablement simplifiée, grâce au théorème de Levin (1967) qui, dans le cas des matériaux poreux, devient :

$$\bar{\mathbf{F}}^{(r)} = \mathbb{A}^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) : \bar{\mathbf{F}} + \left(\mathbb{A}^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) - \mathbb{I} \right) : \left(\mathbb{L}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) \right)^{-1} : \boldsymbol{\tau}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}); \quad r = 1, 2. \quad (\text{V.3})$$

avec $\boldsymbol{\tau}^{(1)}$ déterminé comme dans (II.11).

En pratique, comme dans le cas des particules déformables, on résout l'équation (V.3) pour $\bar{\mathbf{F}}^{(1)}$ qui est la seule grandeur nécessaire pour le calcul des contraintes macroscopiques. On pourra, si on le souhaite, déduire les déformations du pores en calculant $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$ grâce à la relation de moyenne : $(1-c)\bar{\mathbf{F}}^{(1)} + c\bar{\mathbf{F}}^{(2)} = \bar{\mathbf{F}}$.

Dans le cas des matériaux poreux, le schéma d'Hashin-Shtrikman [53] est caractérisé par les tenseurs de localisation suivants, obtenus en considérant $\mathbb{L}^{(1)}$ comme tenseur des modules de référence :

$$\mathbb{A}^{(1)} = \left[(1-c)\mathbb{I} + c[\mathbb{I} - \mathbb{P} : \mathbb{L}^{(1)}]^{-1} \right]^{-1}; \quad \mathbb{A}^{(2)} = \left[\mathbb{I} - (1-c)\mathbb{P} : \mathbb{L}^{(1)} \right]^{-1} \quad (\text{V.4})$$

Le tenseur de Hill \mathbb{P} est toujours défini par l'expression (II.28) dans laquelle on peut prendre en compte la forme des cavités à travers un tenseur \mathbf{Z} caractérisant la "symétrie ellipsoïdale" de la microstructure.

En ce qui concerne l'implémentation numérique de la méthode dans le contexte des milieux poreux, on utilise les mêmes procédures numériques et algorithmiques que dans le cas des particules déformables (voir section II.4).

Remarque : Il est important de souligner, compte tenu de la dépendance des tenseurs de localisation et donc de $\bar{\mathbf{F}}^{(1)}$ en c (cf. (V.4)), que l'expression (V.1) de la densité macroscopique dépend, dans le cas de l'estimation d'Hashin-Shtrikman, de façon non linéaire de c . A titre de comparaison, le modèle de Voigt fournit l'estimation, $\widetilde{W}(\bar{\mathbf{F}}) \simeq (1 - c)W^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)})$, linéaire en c .

V.1.2 Vérification des prédictions par comparaison avec des simulations éléments finis

Afin de comparer les prédictions du modèle d'homogénéisation aux résultats des simulations éléments finis, on considère, comme au chapitre III, des densités d'énergie de déformation, disponibles dans le logiciel Abaqus, pour chaque phase du matériau hyperélastique considéré. La matrice est modélisée à l'aide de la même densité d'énergie de type Mooney-Rivlin qu'au chapitre II (II.33). Les paramètres utilisés pour la matrice sont toujours $C_{10} = C_{01} = 1 \text{ MPa}$ et $D_1 = 2/3 \text{ MPa}^{-1}$.

V.1.2.1 Cas des cavités sphériques

Dans ce paragraphe, on s'intéresse au cas où les cavités sont initialement sphériques et distribuées aléatoirement dans la matrice. Ainsi, le calcul du tenseur de Hill \mathbb{P} se fait en considérant le tenseur \mathbf{Z} égal à l'identité \mathbf{I} . Avant de procéder à l'évaluation proprement dite du modèle micromécanique de matériau poreux, on représente (figure V.1) la réponse macroscopique en traction uniaxiale pour différents niveaux de porosités (fractions volumiques de pores). On observe logiquement un comportement de plus en plus souple avec l'augmentation de la porosité.

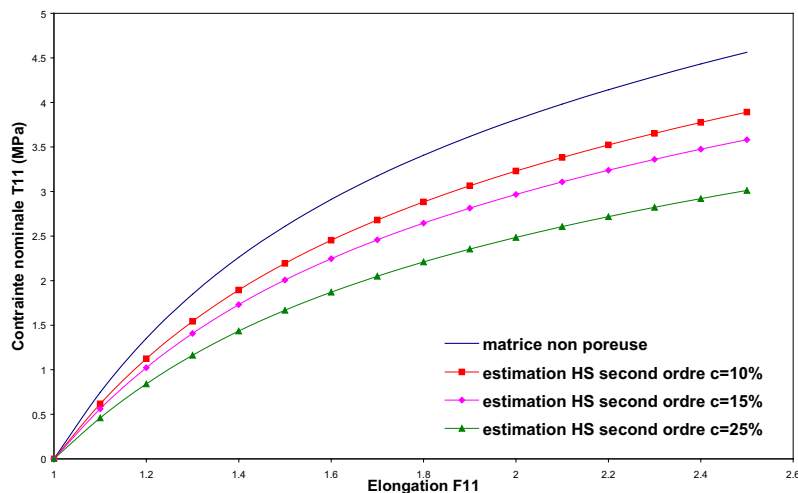


FIG. V.1 - Prédications par le modèle basé sur le schéma d'Hashin-Shtrikman de la contrainte nominale T_{11} en traction uniaxiale pour différents taux de pores sphériques

Comme au chapitre III, les prédictions des contraintes macroscopiques sont comparées aux solutions de référence issues des calculs éléments finis correspondant à 15% et 25% de porosité (figures V.2 et V.3). On observe encore un très bon accord entre les solutions éléments finis et les prédictions du modèle (la borne supérieure d'Hashin-Shtrikman est considérée). Il convient de souligner que pour une porosité de 25% et de fortes elongations, comme d'ailleurs dans le cas des particules renforçantes rigides ou déformables, on observe un léger écart entre les prédictions du modèle et les simulations éléments finis.

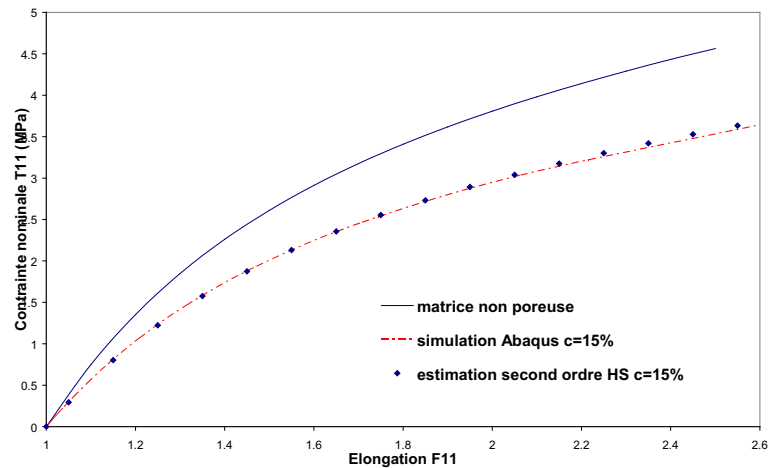


FIG. V.2 - Prédiction de la contrainte nominale T_{11} par le modèle d'Hashin-Shtrikman en **traction uniaxiale** comparée à la réponse numérique pour le composite contenant 15% de **pores initialement sphériques**

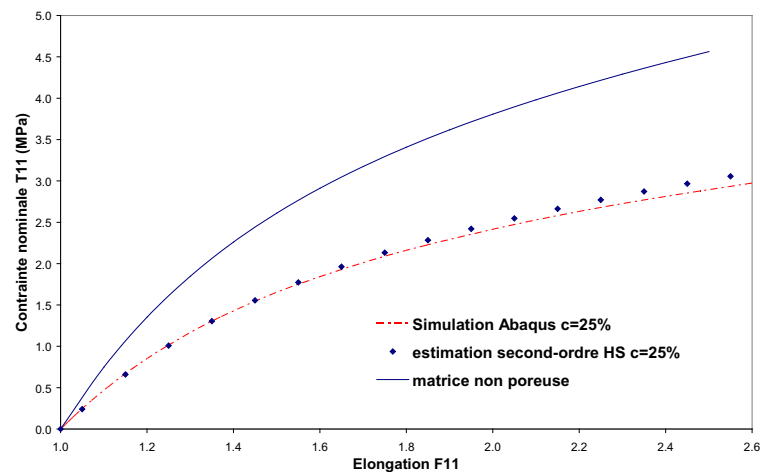


FIG. V.3 - Prédiction de la contrainte nominale T_{11} par le modèle d'Hashin-Shtrikman en **traction uniaxiale** comparée à la réponse numérique pour le composite contenant 25% de **pores initialement sphériques**

La comparaison des prédictions des contraintes moyennes par phases (il s'agit ici uniquement de la matrice) aux solutions de référence éléments finis correspondantes est présentée sur les figures V.4 et V.5. Cette vérification au niveau local permet, une fois de plus, de confirmer les bonnes capacités de prédictions du modèle d'Hashin-Shtrikman couplé à la méthode du second ordre, toujours avec un petit écart aux fortes elongations pour la porosité de 25%.

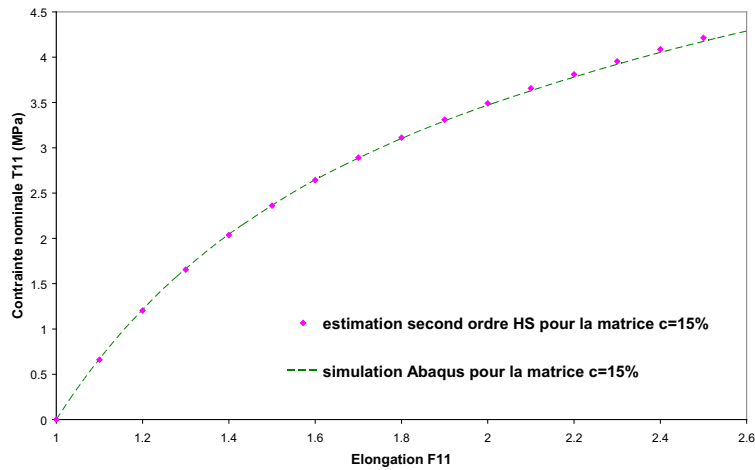


FIG. V.4 - Prédiction en **traction uniaxiale** de la contrainte moyenne T_{11} dans la matrice du modèle d'Hashin-Shtrikman comparée à la réponse numérique pour le composite contenant des 15% de **pores initialement sphériques**

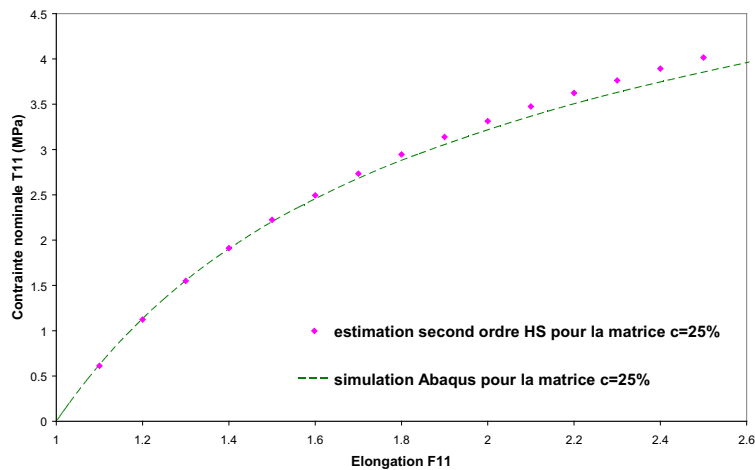


FIG. V.5 - Prédiction en **traction uniaxiale** de la contrainte moyenne T_{11} dans la matrice du modèle d'Hashin-Shtrikman comparée à la réponse numérique pour le composite contenant des 25% de **pores initialement sphériques**

V.1.2.2 Cas des cavités sphéroïdales allongées ou aplaties

On s'intéresse, maintenant, au cas des cavités initialement sphéroïdales. Ainsi, on rappelle que le modèle d'Hashin-Shtrikman que nous utilisons dans la méthode du second ordre permet de prendre en compte la forme des pores à travers le calcul du tenseur de Hill, \mathbb{P} . On fournit ainsi une autre vérification des prédictions du modèle en comparant ses réponses globales pour un chargement de traction uniaxiale aux solutions éléments finis, et ceci pour des inclusions initialement sphéroïdales allongées ou aplaties respectivement caractérisées par leur rapport d'aspect $\omega_0 = 2$ et $\omega_0 = 0.5$.

On peut noter l'effet significatif de la forme initiale des pores sur le comportement macroscopique en traction uniaxiale selon l'axe de révolution des cavités sphéroïdales pour une porosité de 15% (figure V.6). On observe qu'un pore initialement sphéroïdale aplati (oblate) dégrade plus le matériau qu'un pore initialement allongé.

En outre, pour ce qui concerne les comparaisons des prédictions du modèle aux solutions éléments finis, pour différentes formes initiales de cavités, on note également un très bon accord (voir figure V.6).

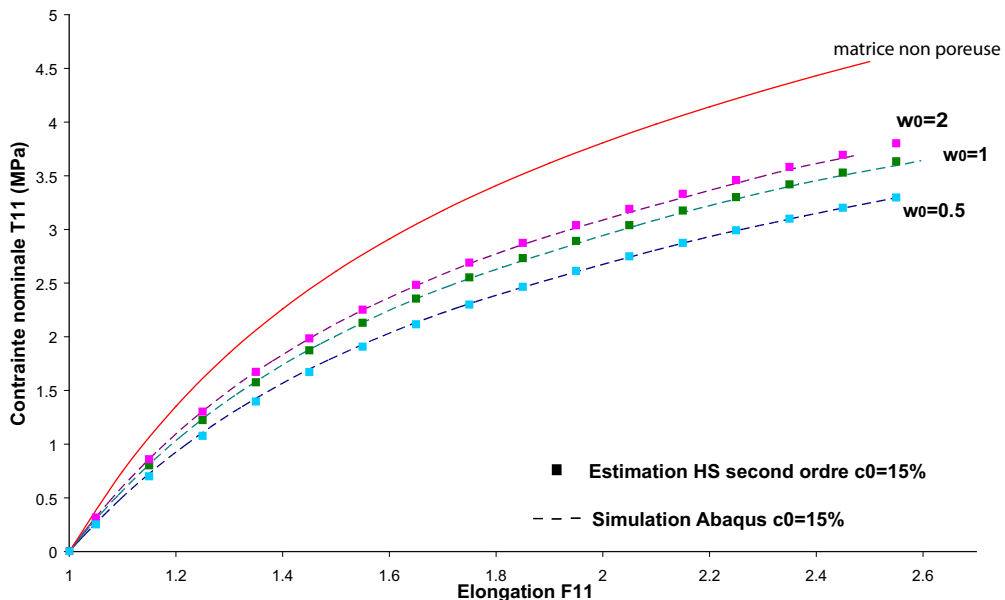


FIG. V.6 - Prédictions des contraintes du modèle d'Hashin-Shtrikman pour des sphéroïdes comparées aux réponses numériques pour le composite contenant 15% de pores

V.1.3 Premières prédictions pour les élastomères renforcés contenant des pores sphériques

Grâce à l'étude expérimentale menée au cours du chapitre IV, nous avons pu observer qu'un certain écart existe entre les prédictions du modèle d'homogénéisation et les données expérimentales pour les faibles taux de renforts. Il est probable que ceci soit dû à une non prise en compte de l'ensemble des mécanismes de déformation. Ainsi, une première approche d'étude a consisté à quantifier, grâce à l'adaptation de la méthode du second ordre aux élastomères poreux, l'effet d'une micro-porosité sur le comportement macroscopique de l'EPDM/PP. Cette microporosité pourrait par exemple être dû au procédé d'élaboration,

La figure V.7 illustre l'effet de la présence de pores sphériques (10% de porosité) sur la réponse en traction uniaxiale prédite par le modèle d'homogénéisation pour l'EPDM contenant 10% de PP. Soulignons que ces résultats sont obtenus grâce à une homogénéisation en deux étapes⁸. En effet, on modélise d'abord le comportement de l'EPDM renforcé, puis on considère le résultat comme celui d'un milieu homogène équivalent auquel on ajoute ensuite des pores sphériques. Nous avons pu modéliser ce milieu homogène équivalent, qui sert de matrice dans la seconde étape du changement d'échelle, à l'aide de la densité d'énergie de déformation (IV.6) avec les paramètres suivants :

$$e^{\alpha_0} = 0,307285 \text{ MPa} ; \quad \alpha_1 = 0,02682 ; \quad \alpha_2 = 0,04307 ;$$

$$e^{\beta_1} = 0,642126 \text{ MPa} ; \quad \beta_2 = -0,96385$$

Les résultats issus de cette double procédure de changement d'échelle (cf. figure V.7) indiquent qu'il est possible d'obtenir un accord entre la modélisation et les données expérimentales par incorporation d'une microporosité de l'ordre de $c = 10\%$ dans la version du modèle d'homogénéisation considéré au chapitre IV. Ce résultat a motivé le développement d'un modèle d'endommagement dans lequel la porosité serait amenée à croître à partir de sa valeur initiale du fait du chargement mécanique.

V.2 Formulation d'un modèle d'endommagement à base micro-mécanique

Cette section est dédiée à la formulation d'une loi d'endommagement basée sur l'homogénéisation des milieux hyperélastiques poreux telle que nous l'avons décrite dans la section V.1. On rappelle d'abord le cadre thermodynamique usuel des lois d'endommagement, en soulignant

⁸ Cette procédure d'homogénéisation en deux étapes n'est pleinement justifiée que s'il y a séparation d'échelles entre les pores et les renforts, i.e. si les pores sont de taille plus importante que les renforts. Dans le cas où une telle condition de séparation d'échelle n'est pas satisfaite, le matériau devrait être traité comme un triphasé (matrice EPDM+renforts+pores) que l'on pourra alors étudier en une seule étape d'homogénéisation.

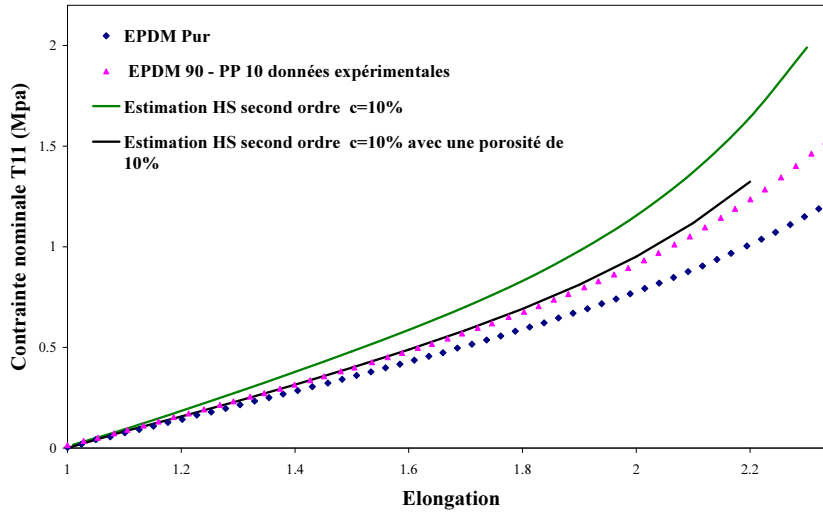


FIG. V.7 - Effet d'une porosité (10%) sur la réponse en traction uniaxiale de l'EPDM contenant 10% en masse de PP

l'apport dans le cas présent de la micromécanique. Des arguments classiques de thermodynamique des milieux hyperélastiques endommageables permettent de construire la loi d'évolution de l'endommagement moyennant le choix d'un pseudo potentiel de dissipation. On exposera ensuite les besoins numériques de la mise en œuvre du modèle en précisant l'algorithme utilisé.

V.2.1 Un modèle d'endommagement micromécanique isotrope pour les élastomères

V.2.1.1 Densité d'énergie macroscopique et lois d'état

Comme précédemment indiqué, la modélisation de l'endommagement, telle qu'abordée dans ce chapitre, s'appuie sur les résultats établis pour la densité d'énergie de déformation macroscopique, \widetilde{W} , d'un matériau élastomère poreux. En effet, il a été montré que \widetilde{W} peut être exprimée comme une fonction du gradient de la déformation macroscopique, $\bar{\mathbf{F}}$, et de la porosité, c , qui joue alors le rôle de variable interne d'endommagement pour le matériau considéré. A la différence des approches purement macroscopiques, la démarche proposée ici fournit un cadre d'interprétation physique claire de la variable d'endommagement du matériau, en ayant en tête que les évolutions de porosité considérées ici sont de nature irréversible.

Le raisonnement thermodynamique que nous allons présenter est en tout point identique à celui usuellement fait dans le contexte de la modélisation du couplage élasticité-endommagement. Le lecteur intéressé par l'endommagement des milieux hyperélastiques peut se référer à [23] ou [109]. L'approche thermodynamique de l'endommagement se décline classiquement en trois étapes : i) choix de la variable interne d'endommagement et du potentiel thermodynamique ; les lois d'état dérivent de ce potentiel ; ii) formulation de la loi d'évolution de la variable d'endommagement.

La combinaison de ces deux étapes permet d'aboutir à une écriture complète de la loi constitutive.

Comme déjà indiqué, l'approche par homogénéisation a permis de disposer des éléments de l'étape i) (cf. section V.1), à savoir le choix de la porosité comme variable d'endommagement isotrope ainsi que de l'expression du potentiel macroscopique $\widetilde{W}(\bar{\mathbf{F}}, c)$. C'est, répétons-le, une contribution essentielle de la micromécanique, qui va même rejaillir sur la seconde étape de la modélisation de l'endommagement. Il convient toutefois de noter que l'hypothèse d'isotropie de l'endommagement suppose que même au cours de l'évolution, l'endommagement restera isotrope. C'est-à-dire que les effets liés aux changements de forme des cavités sont supposés négligeables. Nous reviendrons un peu sur cette hypothèse à la section V.4.3.

On rappelle donc que le potentiel thermodynamique retenu est donné par l'équation (V.1) dans laquelle la déformation moyenne $\bar{\mathbf{F}}^{(1)}$ de la phase matricielle est solution du problème de thermoélasticité (cf. (V.3)) et dépend de la porosité c .

La première loi d'état dérivant du potentiel \widetilde{W} et donnant la contrainte macroscopique de Piola-Kirchoff 1 $\bar{\mathbf{T}}(\bar{\mathbf{F}}, c) = \frac{\partial \widetilde{W}(\bar{\mathbf{F}}, c)}{\partial \bar{\mathbf{F}}}$, est donnée, dans le contexte isotherme de la présente étude, par (V.2).

La seconde loi d'état fournit la force thermodynamique, \mathcal{F} , associée à la variable d'endommagement, c , et s'obtient par dérivation de \widetilde{W} par rapport à c :

$$\begin{aligned} \mathcal{F} &= -\frac{\partial \widetilde{W}(\bar{\mathbf{F}}, c)}{\partial c} \\ &= W^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) + \frac{1}{2}(\bar{\mathbf{F}} - \bar{\mathbf{F}}^{(1)}) : \mathbf{T}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) \\ &\quad - \frac{(1-c)}{2} \left[\mathbf{T}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) + (\bar{\mathbf{F}} - \bar{\mathbf{F}}^{(1)}) : \mathbb{L}^1(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) \right] : \frac{\partial \bar{\mathbf{F}}^{(1)}}{\partial c} \end{aligned} \quad (\text{V.5})$$

On notera que \mathcal{F} est un taux de restitution de l'énergie. De plus, de par leur dépendance avec \widetilde{W} , les expressions des deux lois d'état sont intimement liées au schéma d'homogénéisation utilisé.

V.2.1.2 Lois d'évolution de l'endommagement

Il reste maintenant à préciser la loi d'évolution de l'endommagement (porosité irréversible) au cours d'un chargement quelconque. Pour une cohérence complète de la démarche micromécanique, cette loi d'évolution devrait être également déduit de considérations microscopiques (par exemple à partir d'une analyse locale des grandeurs mécaniques). Cependant, on ne dispose pas à l'heure actuelle d'éléments théoriques ou de données physiques permettant la construction d'une telle loi d'évolution. Sur ce point particulier, le raisonnement adopté est de la même nature que dans les modèles purement macroscopiques. Elle s'appuie sur des arguments thermodynamiques classiques liés notamment à l'analyse de la dissipation intrinsèque en présence d'endommagement.

Le point de départ est l'inégalité de Clausius-Duhem écrite en conditions isothermes (cf. Annexe A) :

$$\left(\mathbf{T} - \frac{\partial W}{\partial \mathbf{F}} \right) : \frac{\partial \mathbf{F}}{\partial t} - \frac{\partial W}{\partial c} \frac{\partial c}{\partial t} \geq 0 \quad (\text{V.6})$$

Cette inégalité devant être vérifiée, quelle que soit l'histoire des variables d'état \mathbf{F} et c , et en tenant compte des lois d'état (cf. la sous section V.2.1.1), on en déduit la condition suivante qui traduit la positivité de la dissipation intrinsèque

$$\mathcal{F} \frac{\partial c}{\partial t} \geq 0$$

Un moyen usuel pour déterminer les lois d'évolution des variables internes consiste à postuler l'existence d'un potentiel de dissipation, ϕ , tel que :

$$\phi = \phi\left(\frac{\partial c}{\partial t}\right) \quad (\text{V.7})$$

Pour vérifier la positivité de la dissipation, il suffit que ϕ soit convexe, positive et nulle en $\frac{\partial c}{\partial t} = 0$ et que l'on ait [51] :

$$\mathcal{F} = \frac{\partial \phi}{\partial \frac{\partial c}{\partial t}} \quad (\text{V.8})$$

ou plus généralement, si le potentiel ϕ n'est pas différentiable :

$$\mathcal{F} \in \partial_{\frac{\partial c}{\partial t}} \phi \quad (\text{V.9})$$

où $\partial_{\frac{\partial c}{\partial t}} \phi$ est le sous-différentiel de ϕ par rapport à $\frac{\partial c}{\partial t}$.

Un autre moyen plus fréquemment utilisé, consiste à considérer la transformée de Legendre-Fenchel de ϕ qui définit le pseudo-potentiel de dissipation $\phi^*(\mathcal{F})$, dual de ϕ par rapport à $\frac{\partial c}{\partial t}$:

$$\phi^*(\mathcal{F}) = \sup_{\frac{\partial c}{\partial t}} \left\{ \mathcal{F} \frac{\partial c}{\partial t} - \phi\left(\frac{\partial c}{\partial t}\right) \right\} \quad (\text{V.10})$$

Ainsi, si ϕ^* est dérivable, on obtient la loi complémentaire de la forme suivante :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{\partial \phi^*}{\partial \mathcal{F}} \quad (\text{V.11})$$

avec, rappelons-le, ϕ^* un pseudo-potentiel de dissipation différentiable, convexe, positif et nul en $\mathcal{F} = 0$. Suivant en cela [23], le pseudo-potentiel utilisé dans la présente étude est de type Norton (cf. [44]) et s'écrit :

$$\phi^*(\mathcal{F}) = \frac{\alpha}{\beta + 1} \mathcal{F}^\beta, \quad \alpha \geq 0, \quad \beta \geq 0 \quad (\text{V.12})$$

Remarque : La borne d'Hashin-Shtrikman est le schéma d'homogénéisation principalement utilisé dans ce chapitre pour l'analyse de l'endommagement. Il peut être instructif de considérer

dans un but d'information un schéma de Voigt dont on connaît bien la simplicité et les limites⁹. En effet, comme nous l'avons déjà indiqué, le modèle de Voigt qui repose sur l'hypothèse d'une déformation homogène dans le matériau composite (en l'occurrence poreux ici), $\bar{\mathbf{F}}^{(1)} = \bar{\mathbf{F}}^{(2)} = \bar{\mathbf{F}}$, est régi par $\widetilde{\mathbf{W}}(\bar{\mathbf{F}}, c) = (1 - c)\mathbf{W}^1(\bar{\mathbf{F}})$.

La contrainte macroscopique qui s'en déduit ne dépend que linéairement de c :

$$\bar{\mathbf{T}}(\bar{\mathbf{F}}, c) = (1 - c)\mathbf{T}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}) \quad (\text{V.13})$$

Il vient également que la force thermodynamique \mathcal{F} est indépendante de la porosité :

$$\mathcal{F} = \mathbf{W}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}) \quad (\text{V.14})$$

On notera que ce modèle d'endommagement qui en résulte, similaire au modèle purement macroscopique de Lemaitre et Chaboche [69] (cf. également [78] pour l'élasto-endommagement), est celui décrit dans le contexte de l'hyperélasticité par Simo et Govindjee [48], [49]) et dont de nombreuses variantes ont été utilisées dans la littérature [29], [109], [71] etc..

V.2.1.3 Mise en œuvre et algorithme

La mise en œuvre du modèle d'endommagement requiert donc simultanément la résolution du problème d'homogénéisation couplé à l'évolution de l'endommagement. Nous adoptons une méthode de résolution de ce problème consistant à découpler les problèmes en espace, le problème d'homogénéisation, et en temps, l'évolution de l'endommagement. Ainsi, la solution recherchée sera obtenue par enchaînement des 2 étapes successives : pour une porosité initiale c_0 et un tenseur de déformation macroscopique $\bar{\mathbf{F}}(t)$ imposé à un instant t fixé, on calcule d'abord $\widetilde{\mathbf{W}}(\bar{\mathbf{F}}(t), c_0)$ donc $\bar{\mathbf{T}}(\bar{\mathbf{F}}(t), c_0)$ puis on détermine la valeur de la porosité $c_1(t)$ et on calcule de nouveau $\widetilde{\mathbf{W}}(\bar{\mathbf{F}}(t), c_1(t))$ et $\bar{\mathbf{T}}(\bar{\mathbf{F}}(t), c_1(t))$. Un test de convergence sur la porosité est effectué et si la convergence n'est pas obtenue (c'est-à-dire $|c_1(t) - c_0| \leq \varepsilon$ avec ε très petit), on continue les étapes successives jusqu'à vérification du test pour la $k^{\text{ième}}$ itération : $|c_k(t) - c_{k-1}(t)| \leq \varepsilon$. Cette méthode est assimilable à une méthode de type Picard [28] et a été utilisée dans le cas d'approche micro-macro périodique par Brieu [25]. Un algorithme détaillé est proposé plus loin.

i - Démarche de mise en œuvre du modèle d'endommagement

Nous allons maintenant décrire les différentes étapes de calcul nécessaires à la mise en œuvre de ce modèle d'endommagement. Premièrement, la résolution du problème d'homogénéisation permet la détermination des contraintes macroscopiques $\bar{\mathbf{T}}(\bar{\mathbf{F}}, c)$ pour une déformation macroscopique $\bar{\mathbf{F}}$ et une porosité c données. Pour ce calcul, les mêmes méthodes numériques, déjà

⁹A titre d'exemple de limitation, ce schéma prévoit qu'un matériau constitué d'une matrice incompressible contenant des cavités serait macroscopiquement incompressible. Or, il est clair qu'en raison de la compressibilité introduite par la présence des vides, le matériau ne sera pas incompressible. C'est un argument également bien connu dans le domaine de l'endommagement des matériaux ductiles.

décrites au chapitre II (voir section II.4) pour le cas des particules déformables, sont utilisées pour résoudre le problème de thermoélasticité (dont l'équation est (V.3) dans le cas du milieu poreux) et pour calculer la dérivée $\frac{\partial \bar{\mathbf{F}}^{(1)}}{\partial \bar{\mathbf{F}}}$.

Pour le calcul de la force thermodynamique $\mathcal{F}(t)$, il est commode d'observer que toutes les grandeurs intervenant dans (V.6) ont déjà été déterminées lors du calcul de $\bar{\mathbf{T}}$, à l'exception de la dérivée de $\bar{\mathbf{F}}^{(1)}$ par rapport à c . Comme pour le calcul de $\frac{\partial \bar{\mathbf{F}}^{(1)}}{\partial \bar{\mathbf{F}}}$, on procède à une dérivation numérique rendue nécessaire par l'absence d'expression analytique pour $\bar{\mathbf{F}}^{(1)}$. A ce niveau, un schéma numérique de différences finies centrées a été considéré pour chacun des 9 termes $\frac{\partial \bar{\mathbf{F}}_{ij}^{(1)}}{\partial c}$. Et comme au chapitre II, une méthode de Ridders-Richardson [103] permettant une optimisation du pas de dérivation est considérée.

Il reste maintenant à déterminer la porosité, à un instant t donné, au cours du chargement caractérisé par le tenseur des déformations macroscopiques $\bar{\mathbf{F}}(t)$ et pour une porosité initiale c_0 . Celle-ci est donnée par :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = \frac{\partial \phi^*}{\partial \mathcal{F}}(\mathcal{F}) = \frac{\alpha\beta}{\beta+1} \mathcal{F}^{(\beta-1)} \quad (\text{V.15})$$

dont la solution doit vérifier :

$$\int_{t_0=0}^t \frac{\partial c}{\partial t} dt = \int_{t_0=0}^t \frac{\alpha\beta}{\beta+1} \mathcal{F}(t)^{(\beta-1)} dt \quad (\text{V.16})$$

L'intégration conduit à :

$$c(t) = c_0 + \frac{\alpha\beta}{\beta+1} \int_{t_0=0}^t \mathcal{F}(t)^{(\beta-1)} dt \quad (\text{V.17})$$

Bien qu'il soit possible pour l'évaluation de $c(t)$ de mettre en œuvre des méthodes de résolution d'équations différentielles telles qu'une méthode de Runge-Kutta, nous avons opté pour un schéma classique d'intégration par trapèzes de (V.16).

L'intervalle de temps $[t_0, t]$ est ainsi découpé en sous-intervalles suffisamment petits pour assurer la précision de la méthode. Ainsi, en introduisant l'incrément de temps $\Delta t = \frac{(t-t_0)}{N}$, N étant le nombre d'intervalles souhaités, on peut approximer (V.16) par :

$$c(t) = c_0 + \frac{\alpha\beta}{\beta+1} \left(f(t_0) + f(t) + 2 \sum_{i=1}^{(N-1)} f(t_0 + i\Delta t) \right) \quad (\text{V.18})$$

avec $f(\tau) = \mathcal{F}(\tau)^{(\beta-1)}$, ce qui nécessite de connaître la force thermodynamique à chaque instant $t_0 + i\Delta t$ ($i = 0, N$).

La démarche à suivre pour déterminer la contrainte macroscopique de Piola-Kirchoff 1 et la valeur de la porosité à un instant t quelconque étant présentée, on décrit maintenant la méthode

permettant la détermination de l'évolution de l'endommagement sur un intervalle de temps $[0, T]$. Considérons donc des temps intermédiaires t_j pour lesquels on pourra déterminer les contraintes macroscopiques du milieu endommagé et la valeur de la porosité, à chaque instant t_j , de la façon décrite précédemment.

De plus, de façon à connaître les valeurs des forces thermodynamiques requises pour l'intégration par la méthode des trapèzes, on considère le même pas de temps $\Delta t = \frac{T}{N}$ pour la découpe des intervalles $[0, t_j]$ et $[0, T]$. La porosité à chaque instant t_j sera donc déterminée par :

$$c(t_j) = c_0 + \frac{\alpha\beta}{\beta+1} \left(\mathcal{F}(t_j)^{(\beta-1)} + 2 \sum_{i=1}^{(j-1)} \mathcal{F}(i\Delta t)^{(\beta-1)} \right) \quad (\text{V.19})$$

dans lequel on a tenu compte de la nullité de la force thermodynamique à $t=0$.

ii - Algorithme pour un chargement de traction uniaxiale

On souhaite, dans ce paragraphe, décrire plus précisément l'algorithme utilisé pour étudier l'évolution de l'endommagement par croissance de cavités sur un intervalle de temps $[0, T]$ au cours d'un chargement de traction uniaxiale.

Comme nous l'avons déjà précisé précédemment, on découpe cet intervalle $[0, T]$ en N sous-intervalles suffisamment petits pour garantir une bonne précision des calculs ; les temps intermédiaires t_j sont définis par $t_j = j\Delta t = j\frac{T}{N}$. Le gradient de la transformation macroscopique, à un instant t_j , associé à un chargement de traction uniaxiale s'écrit sous la forme :

$$\bar{\mathbf{F}}(t_j) = \text{Diag}(\lambda(t_j), \alpha(t_j), \alpha(t_j)) \quad t_j \in [0, T]$$

avec $\lambda(t_j)$ défini, à partir d'un taux de déformation $\dot{\lambda}$ que nous choisisons :

$$\lambda(t_j) = 1 + t_j \dot{\lambda} = 1 + j \frac{T}{N} \dot{\lambda}$$

Comme nous avons déjà pu le souligner, au cours du chapitre II, pour appliquer la méthode d'homogénéisation du second ordre, le contrôle du chargement appliqué s'effectue en déformation. Ainsi à chaque instant $t_j \in [0, T]$, le matériau composite considéré étant supposé compressible, il faut déterminer $\alpha(t_j)$ pour un $\lambda(t_j)$ donné, afin de vérifier la condition de traction uniaxiale :

$$\bar{\mathbf{T}}(t_j) = \text{Diag}(\bar{T}_{11}(t_j), 0, 0)$$

On procède, comme auparavant (cf. sections C.1.3 et II.4), à une recherche de $\alpha(t_j)$ par un processus itératif de dichotomie. L'algorithme utilisé pour résoudre le problème en espace, c'est-à-dire le problème d'homogénéisation, est celui décrit sur la figure II.3 pour le cas d'une matrice élastomérique contenant des particules déformables.

Nous pouvons maintenant décrire l'algorithme utilisé pour simuler un essai de traction uniaxiale

avec évolution de l'endommagement par croissance de cavités dans des matériaux hyperélastiques (voir figure V.8). Pour débiter le processus itératif permettant de déterminer la porosité du matériau au cours du chargement, on initialisera cette porosité, à un temps quelconque, t_j , par la porosité au temps précédent, t_{j-1} .

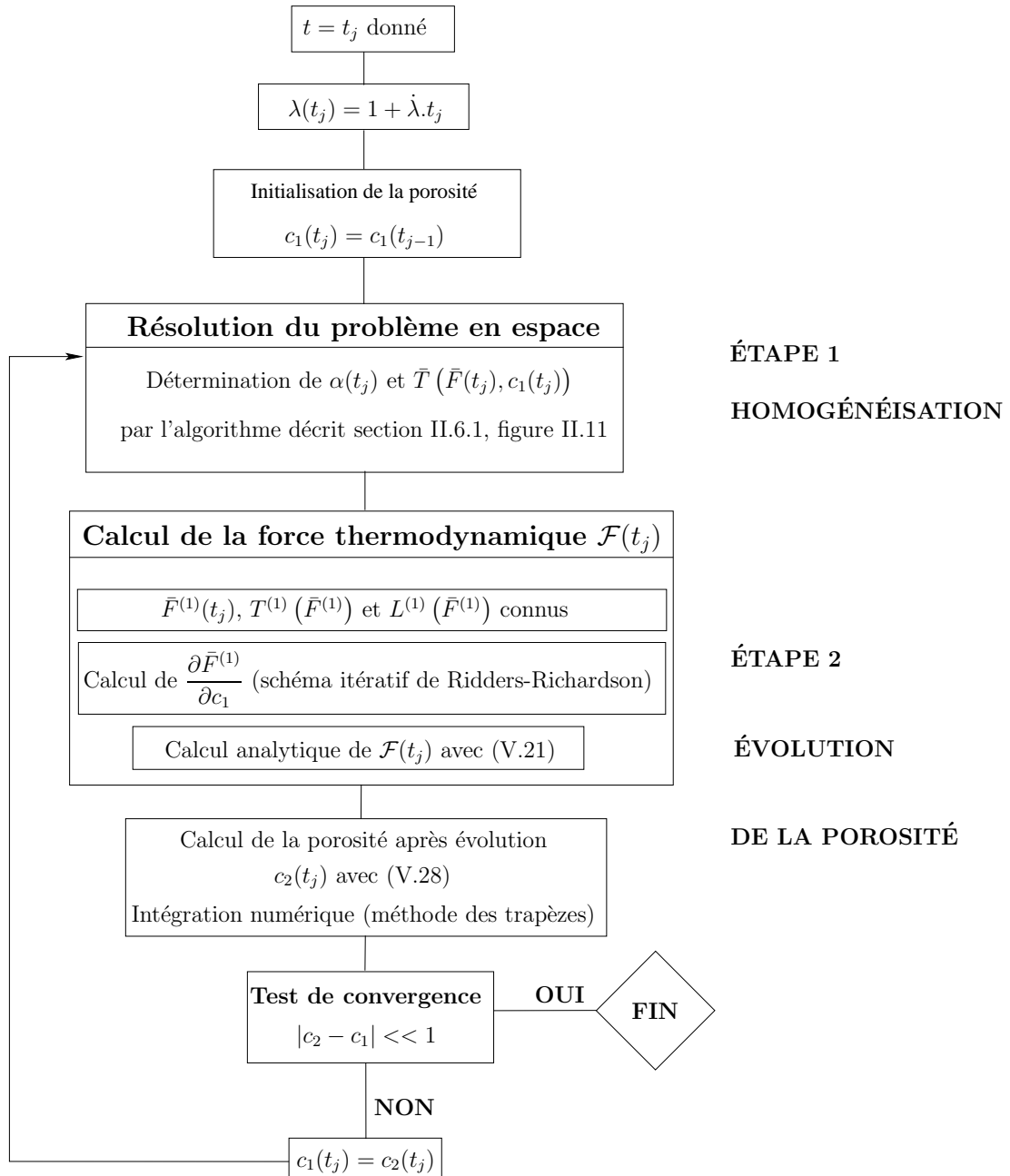


FIG. V.8 - Algorithme de mise en œuvre du modèle d'endommagement par croissance de cavités

Remarque : On rappelle que pour la mise en œuvre du modèle avec le schéma de Voigt, l'étape d'homogénéisation est largement simplifiée car ne nécessitant pas de résoudre le problème de thermoélasticité (V.3) pour déterminer $\bar{\mathbf{F}}^{(1)}$ et $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$. Ainsi, cette étape se résume, dans le cas d'une traction uniaxiale, à la recherche de $\alpha(t_j)$.

V.2.2 Exemples de prédictions obtenues

Nous nous attachons, dans cette section, à illustrer le modèle micromécanique d'endommagement dont nous venons de décrire les principaux éléments. Pour cela, considérons toujours le même matériau hyperélastique modélisé par une densité d'énergie de déformation de type Mooney-Rivlin (II.33) avec les mêmes paramètres : $C_{10} = C_{01} = 1 \text{ MPa}$ et $D_1 = 2/3 \text{ MPa}^{-1}$ et contenant des pores initialement sphériques.

On présente maintenant quelques résultats de simulation d'essais de traction uniaxiale sur une période de 1600s que l'on a subdivisée en 200 sous-intervalles ; la vitesse de déformation considérée est de 1.10^{-3} s^{-1} .

A titre d'exemple, les résultats, présentés sur la figure V.9, sont ceux obtenus grâce aux schémas de Voigt et d'Hashin-Shtrikman en considérant les paramètres positifs suivants pour le pseudo-potential de dissipation ϕ^* : $\alpha = 1.10^{-4} \text{ s}^{-1}$ et $\beta = 0.8$ et une porosité initiale de 5%. Sur cette figure, on a ainsi reporté la réponse uniaxiale du matériau endommagé, mais également celle du modèle sans endommagement, ceci afin d'illustrer les effets de la dégradation induite par la croissance de cavités.

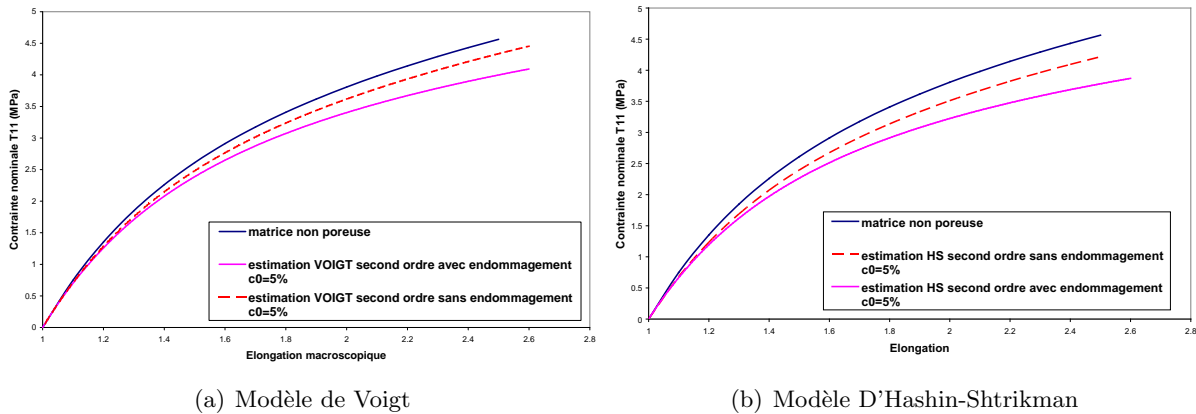


FIG. V.9 - Réponse en traction uniaxiale du matériau considéré avec une porosité initiale de 5% : prédictions du modèle avec et sans prise en compte d'endommagement

Sur la figure V.10 on compare les prédictions du modèle d'endommagement issu des deux schémas d'homogénéisation (Voigt, Hashin-Shtrikman). On observe alors que le modèle de Voigt surestime les contraintes par rapport aux prédictions du schéma d'Hashin-Shtrikman. De plus, on représente sur la figure V.11, l'évolution de la porosité au cours du chargement. Ainsi, on observe

que la porosité est passée des 5% initiaux à environ 10-12% pour une élongation de 2.6 que ce soit pour l'un ou l'autre des schémas. L'évolution de porosité, prédite est légèrement plus importante pour le modèle de Voigt, même si on a vu que les contraintes étaient surestimées. L'explication de cette observation peut être trouvée dans les différences de structure mathématique des deux modèles ; en clair, il s'agit de deux modèles complètement différents.

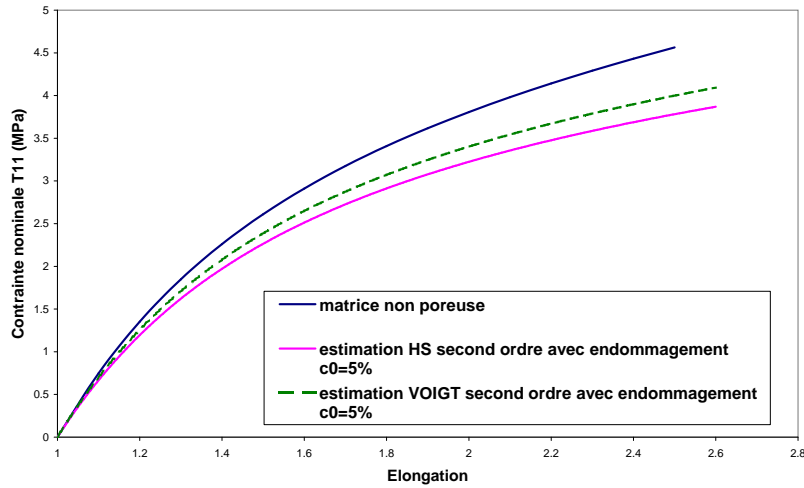


FIG. V.10 - Réponse en traction uniaxiale du matériau considéré avec une porosité initiale de 5% : prédictions des modèles de **Voigt** et d'**Hashin-Shtrikman** avec endommagement

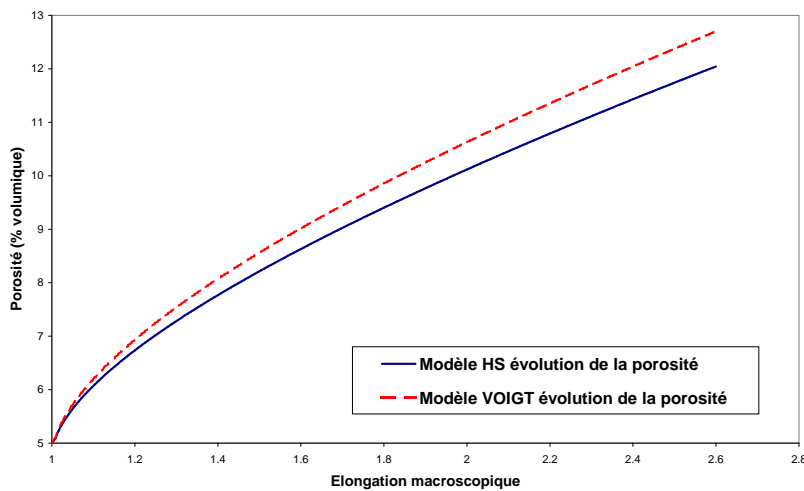


FIG. V.11 - Évolution de la porosité au cours du chargement de traction uniaxiale pour les modèles de **Voigt** et **Hashin-Shtrikman**

V.3 Potentialité de l'approche micro-macro de l'endommagement pour l'étude de l'EPDM/PP

V.3.1 Application au mélange EPDM/PP

Comme nous avons déjà pu le faire dans la section V.1.3, nous souhaitons évaluer l'effet d'une micro-porosité sur le comportement global du mélange EPDM/PP. Ainsi, nous allons maintenant appliquer à ce composite le modèle d'endommagement que nous avons développé et précédemment décrit. L'utilisation d'un modèle d'endommagement (par croissance de cavités) pour l'étude de ce matériau nous a semblé opportun, la porosité pouvant être d'origine (par exemple due au procédé d'élaboration) ou induite à l'interface renforts/matrice par le chargement mécanique.

Ainsi, nous mettons en œuvre le modèle d'endommagement en suivant une procédure de double changement d'échelle décrite auparavant et décrite dans ce qui suit. On reprend d'abord les résultats de l'homogénéisation du composite EPDM/PP ; les renforts de PP sont supposés sphériques. Puis on considère le milieu homogène équivalent, alors obtenu, comme matrice à laquelle on adjoint une porosité initiale sous forme de cavités sphériques. Cette seconde étape du double changement d'échelle requiert ainsi d'identifier une densité d'énergie W^1 pour la "matrice" EPDM/PP homogénéisé (une densité du type (IV.6) est choisie). Nous considérons pour cette étude, les mélanges EPDM/PP contenant 10% et 5% de PP. Dans un premier temps, nous appliquons le modèle de croissance de cavités à l'EPDM contenant 10% de PP afin de calibrer les paramètres d'endommagement α et β . Lors de cette application, les paramètres identifiés pour la densité d'énergie de déformation (IV.6) sont les mêmes que ceux indiqués au début du présent chapitre (cf. section V.1.3), la porosité initiale utilisée est faible : 0.1% et nous simulons un essai de traction uniaxiale sur une période de 1600s que l'on a subdivisé en 200 sous-intervalles avec une vitesse de déformation de 1.10^{-3} s^{-1} . Les paramètres d'endommagement ainsi calibrés sont : $\alpha = 2.10^{-4} \text{ s}^{-1}$ et $\beta = 0.8$.

Dans un second temps, afin de valider le modèle d'endommagement et la calibration des paramètres α et β , nous considérons l'EPDM contenant cette fois 5% de particules de PP. Il a été nécessaire d'identifier de nouveau les paramètres de la densité d'énergie de déformation (IV.6) pour ce mélange. Les résultats de cette identification sont :

$$e^{\alpha_0} = 0,3026 \text{ MPa} ; \alpha_1 = -0.07695 ; \alpha_2 = 0,04921 ;$$

$$e^{\beta_1} = 0,5129 \text{ MPa} ; \beta_2 = -1.3514$$

Les résultats ainsi obtenus respectivement pour la calibration et la validation sont présentés sur les figures V.12 et V.13 où les réponses respectives du modèle sans endommagement et du modèle basé sur le schéma de Voigt ont été également reportées.

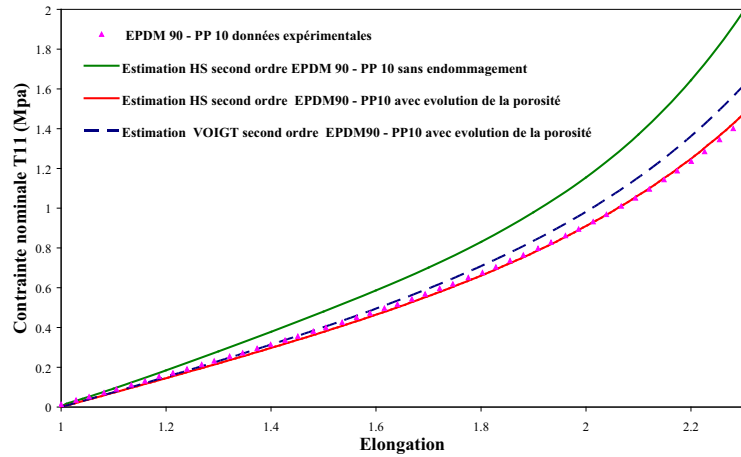


FIG. V.12 - Réponse en traction uniaxiale de l'EPDM contenant 10% en masse de PP : données expérimentales et prédictions du modèle avec et sans prise en compte d'endommagement

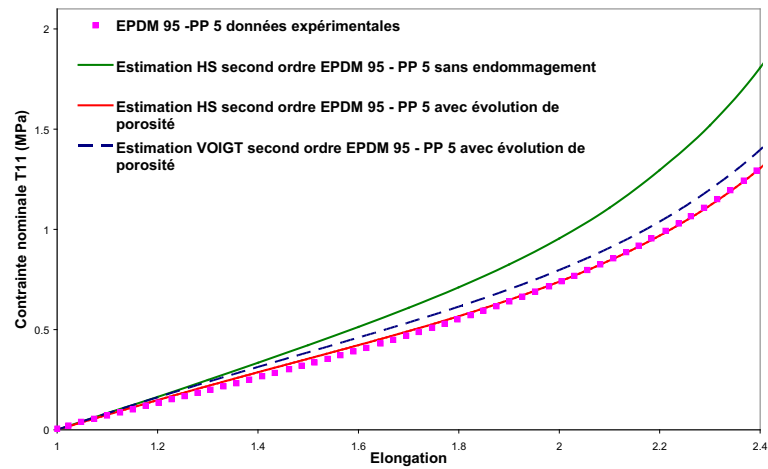


FIG. V.13 - Réponse en traction uniaxiale de l'EPDM contenant 5% en masse de PP : données expérimentales et prédictions du modèle avec et sans prise en compte d'endommagement

Pour le modèle basé sur la borne d'Hashin-Shtrikhman, on observe un bon accord obtenu avec les données expérimentales, la porosité ayant évolué à partir de 0.1% jusqu'à 18% pour une élongation de 2.4 (voir figures V.14 et V.15). Ces niveaux d'endommagement restent tout à fait raisonnables et inférieurs à ceux prédits par le modèle de Voigt à même niveau de déformation macroscopique.

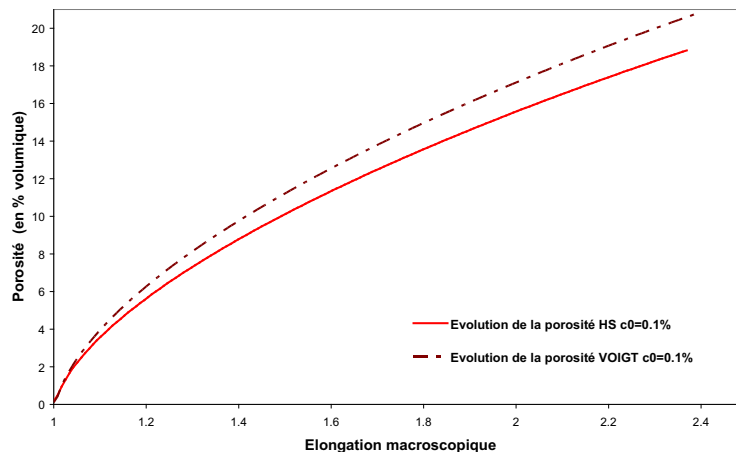


FIG. V.14 - Évolution de la porosité au cours du chargement de traction uniaxiale (EPDM90-PP10)

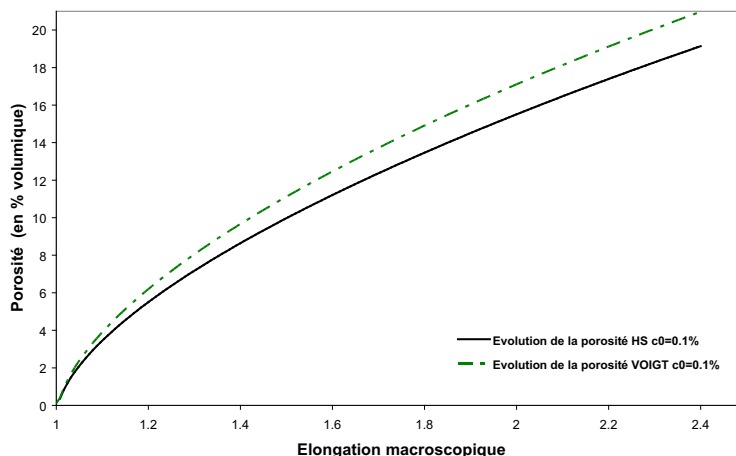


FIG. V.15 - Évolution de la porosité au cours du chargement de traction uniaxiale (EPDM95-PP5)

Hormis quelques réserves que l'on peut émettre sur l'identification des paramètres du modèle d'endommagement, identification encore un peu sommaire, il importe de souligner que le modèle est en mesure de reproduire la réponse expérimentale du matériau, juste en y incorporant l'endommagement isotrope par croissance de microcavités. Néanmoins, en toute rigueur, il aurait été préférable, du moins souhaitable, de calibrer expérimentalement les paramètres du potentiel de dissipation en se basant sur des données relatives à l'évolution de porosité du matériau. Ceci est actuellement hors de portée en raison du fait que de telles données ne sont pas disponibles.

V.3.2 Modélisation d'essais de traction uniaxiale cyclique

Cette sous section est consacrée à l'étude de la réponse cyclique en traction uniaxiale prédite par le modèle d'endommagement. Les essais sont simulés de la façon suivante : on sollicite le matériau jusqu'à une élongation donnée. L'accroissement de porosité étant irréversible, si on décharge et recharge jusqu'à l'élongation déjà imposée, la porosité n'évolue plus et les réponses en décharge et recharge sont identiques. En revanche, si on poursuit la recharge au delà de l'élongation maximale préalablement imposée, le matériau voit son endommagement évoluer. Nous présentons, sur la figure V.16 un exemple de réponse cyclique prédite pour l'EPDM90-PP10 contenant initialement 0.1% de pores sphériques; les valeurs des paramètres considérés sont : $\alpha = 4.10^{-4} s^{-1}$ et $\beta = 0.65$. Il s'agit d'une réponse idéalisée puisque le modèle ne tient pas compte des phénomènes de viscosité. Cette réponse peut être rapprochée de celle de la figure I.6.

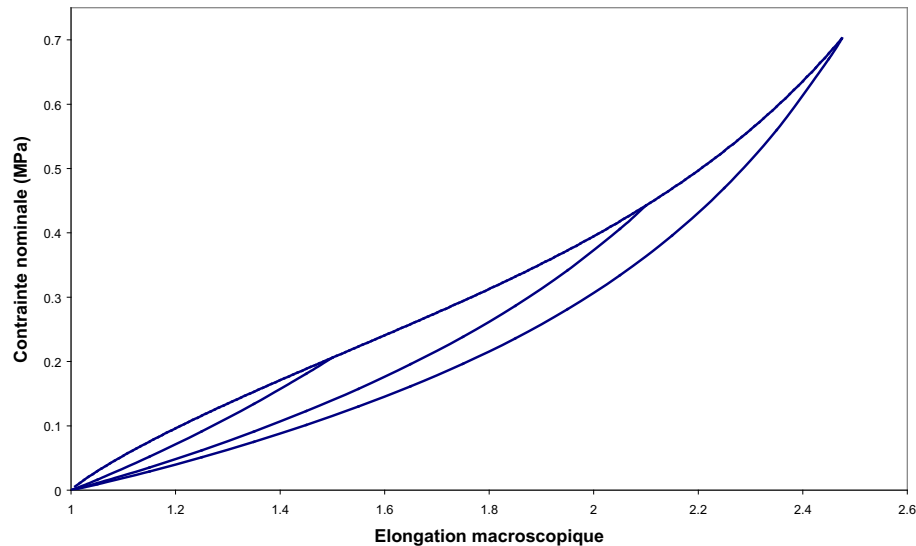


FIG. V.16 - Réponse cyclique prédite par le modèle d'endommagement avec le schéma d'Hashin-Shtrikman pour l'EPDM90-PP10

V.4 Modèle d'endommagement avec évolution de la forme des micro cavités

V.4.1 Eléments de formulation d'un modèle d'endommagement anisotrope

Le modèle d'endommagement que nous venons de présenter permet de modifier de manière réversible la forme initiale des pores. En raison de l'isotropie, elle ne prend pas en compte l'éventualité d'un changement irréversible de cette forme au cours du chargement. On propose ici de

réaliser une extension du modèle consistant non seulement à réactualiser la porosité à chaque pas de temps, mais également la forme des cavités grâce à la loi d'évolution : $\mathbf{Z}(t_j) = \mathbf{Z}_0(\bar{\mathbf{F}}^{(2)}(t_j))^{-1}$, la quantité $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}(t_j)$ étant la déformation moyenne des pores, \mathbf{Z}_0 et $\mathbf{Z}(t_j)$ caractérisant respectivement la forme initiale des pores et celle à l'instant t_j .

Il importe de souligner que ceci n'est qu'une première approche, cette loi d'évolution de la forme des cavités étant entièrement déduite de la déformation moyenne des pores comme dans la section III.4. Cependant, contrairement à l'étude déjà menée sur l'évolution de la microstructure (section III.4), on est concerné ici par des évolutions irréversibles.

La mise en œuvre de ce modèle très simple implique la recherche, à un instant t_j , des déformations moyennes par phase et de la forme moyenne des pores c'est-à-dire de $\bar{\mathbf{F}}^{(1)}$, $\bar{\mathbf{F}}^{(2)}$ et $\mathbf{Z}(t_j)$ vérifiant le système d'équations suivant :

$$\left\{ \begin{array}{l} (1) \quad \bar{\mathbf{F}}^{(1)} = \mathbb{A}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) : \bar{\mathbf{F}} + \left(\mathbb{A}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) - \mathbb{I} \right) : \left(\mathbb{L}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) \right)^{-1} : \boldsymbol{\tau}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) \\ (2) \quad \bar{\mathbf{F}}^{(2)} = \mathbb{A}^{(2)}(\bar{\mathbf{F}}^{(2)}) : \bar{\mathbf{F}} + \left(\mathbb{A}^{(2)}(\bar{\mathbf{F}}^{(2)}) - \mathbb{I} \right) : \left(\mathbb{L}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) \right)^{-1} : \boldsymbol{\tau}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) \\ (3) \quad \mathbf{Z}(t_j) = \mathbf{Z}_0(\bar{\mathbf{F}}^{(2)}(t_j))^{-1} \end{array} \right. \quad (\text{V.20})$$

Les équations (V.20.1) et (V.20.2) correspondent au problème de thermoélasticité (V.3) et dépendent de la forme des pores. Plus précisément, elles dépendent de $\mathbf{Z}(t_j)$, des tenseurs de localisation $\mathbb{A}^{(1)}$ et $\mathbb{A}^{(2)}$ (V.4) et donc du tenseur de Hill \mathbb{P} (cf. (II.28)). Ceci se traduit par un système de 21 équations pour 21 inconnues dont la résolution est faite à l'aide de la méthode de Newton-Raphson.

Ainsi, pour débiter le processus itératif permettant de déterminer la porosité du matériau au cours du chargement, on initialisera, au temps t_1 par la porosité initiale et la forme initiale du pore, et à un temps quelconque, t_j ($j > 1$), par la porosité et la forme au temps précédent, t_{j-1} . On résout ensuite le problème en espace, c'est-à-dire d'homogénéisation décrit ci-dessus. Puis, on passe à la résolution du problème en temps, en calculant la porosité au temps t_j comme décrit dans la section V.2.1.3. La convergence du schéma itératif porte toujours sur la porosité, l'évolution de la forme des cavités ne dépendant que de la résolution du problème en espace.

V.4.2 Exemple de prédictions obtenues

On illustre, ici, le modèle d'endommagement incorporant à la fois l'évolution irréversible de la porosité et celle de la forme des pores. Les réponses, à un chargement de traction uniaxiale, sont prédites pour le matériau considéré dans la section V.2.2 avec une porosité initiale de 5% de pores initialement sphériques. Le matériau considéré et les paramètres du pseudo-potential de dissipation sont les mêmes que dans la section V.2.2. On peut ainsi comparer (figure V.17) les résultats du modèle d'endommagement avec et sans changement irréversible de forme des pores. On observe que la prise en compte du changement de forme au cours du chargement rend moins

prononcé l'effet endommageant des cavités alors devenues sphéroïdales allongées (voir figure V.18(a)) sur le comportement macroscopique longitudinal. On notera que la porosité évolue de façon équivalente (voir figures V.18(b) et V.11). Ces résultats sont tout à fait conformes aux observations que nous avons déjà faites lors de l'étude de l'effet de forme des cavités (cf. chapitre III) allongées.

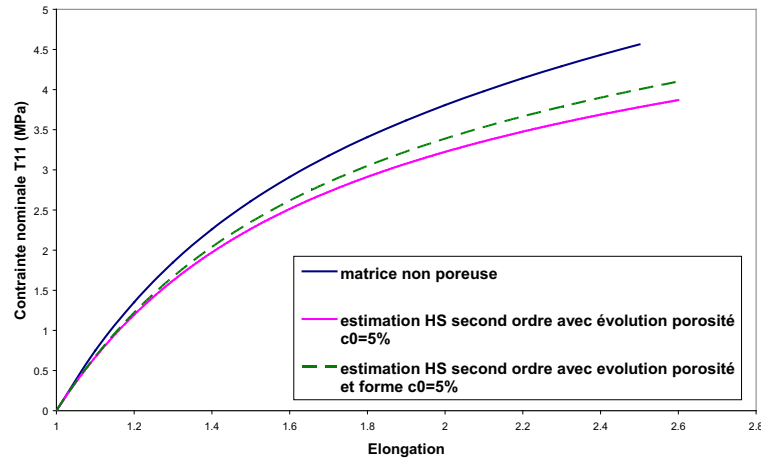
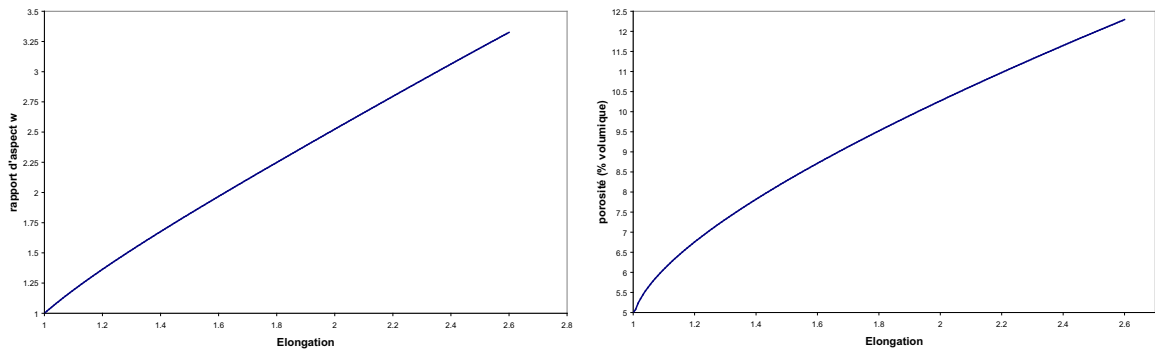


FIG. V.17 - Réponse en traction uniaxiale du matériau considéré avec une porosité initiale de 5% : prédictions avec et sans prise en compte du changement de forme des pores dans le modèle d'endommagement



(a) Évolution du rapport d'aspect des cavités au cours du chargement de traction uniaxiale (b) Évolution de la porosité au cours du chargement de traction uniaxiale

FIG. V.18 -

V.4.3 Une illustration de l'effet de l'anisotropie de l'endommagement

Dans cette section, on souhaite illustrer les conséquences de l'endommagement anisotrope induit par un préchargement de traction uniaxiale. En effet, le changement de forme des pores

au cours du chargement introduit une anisotropie qui affecte naturellement la réponse macroscopique. Ces effets d'anisotropie induite par l'histoire du chargement des milieux élastomères ont été récemment étudiés par [35] dans le contexte d'une approche macromoléculaire. Pour illustrer notre propos, considérons un matériau contenant des pores initialement sphériques. Ce matériau est d'abord soumis à un chargement de traction uniaxiale dans une direction dite longitudinale, caractérisé par le tenseur gradient de déformation macroscopique $\mathbf{F} = \text{Diag}(\lambda, \alpha, \alpha)$. Dans un second temps, le matériau est déchargé puis rechargé à la traction uniaxiale dans la même direction. Ce rechargement sera dénoté 2. Pour mettre en évidence l'effet de l'anisotropie induite, on substitue au rechargement 2, un rechargement de traction uniaxiale dans la direction transverse : $\mathbf{F} = \text{Diag}(\alpha, \lambda, \alpha)$, noté 3. La réponse de ce second cas de rechargement est comparée à la précédente (voit figure V.19). On constate en effet une anisotropie de la réponse qui se traduit par la différence des deux réponses dans la phase de rechargement.

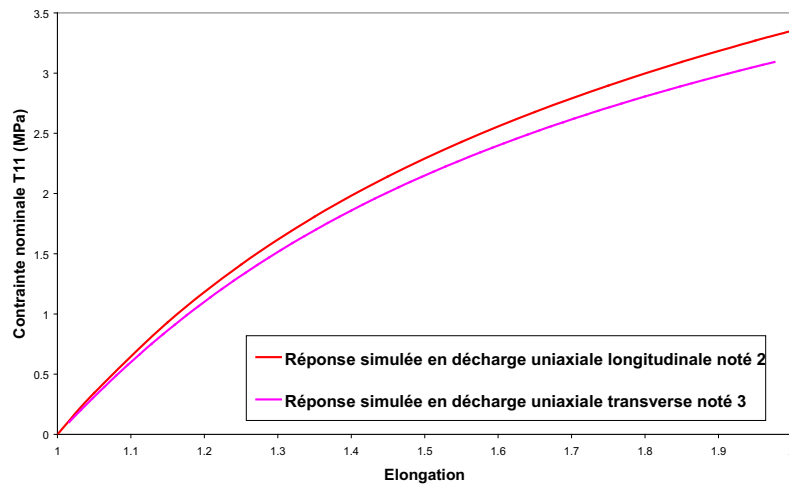


FIG. V.19 - Réponse simulée pour des chargements de traction uniaxiale longitudinale et transverse

V.5 Conclusion

L'objectif de ce chapitre a été de proposer une formulation de lois d'endommagement (par croissance de cavités) s'appuyant sur des résultats de l'approche micromécanique précédemment développée. Nous avons d'abord adapté au cas des élastomères poreux les approches développées dans les précédents chapitres. A l'instar de la démarche suivie au chapitre III, une validation par comparaison à des calculs numériques (Eléments Finis) a été réalisée. Combinant ensuite les résultats de l'homogénéisation non linéaire avec des outils classiques de la thermodynamique des processus irréversibles (ayant permis de formuler une loi d'évolution de la porosité), nous avons pu formuler un modèle complet d'endommagement isotrope. Après calibration des paramètres du modèle, les capacités prédictives de ce modèle ont été illustrées par comparaison à des données

expérimentales pour un composite EPDM/PP. Bien que les résultats apparaissent probants, il importe que cette validation soit poursuivie, en considérant d'autres données et en travaillant sur la procédure d'identification des paramètres. Enfin, grâce à une première approche de prise en compte du changement de forme des cavités dans le modèle d'endommagement, nous avons pu également illustrer les possibilités de prendre en compte dans la modélisation l'anisotropie induite par l'histoire du chargement.

Conclusions générales et perspectives

Les travaux présentés au cours de ce mémoire peuvent être regroupés en deux grands axes correspondant aux principaux objectifs de la thèse :

- modélisation et simulation numérique de la réponse mécanique de matériaux composites à constituants de comportement hyperélastique,
- modélisation et simulation de la propagation d'endommagement au sein de milieux élastomères et composites élastomères.

La réalisation de ces objectifs repose sur deux choix, autour desquels s'articule l'ensemble de ce mémoire : d'une part, le choix d'une technique d'homogénéisation adaptée à la prise en compte de comportements hyperélastiques dans un contexte tridimensionnel permettant de donner un sens rigoureux aux champs et quantités manipulés, et, d'autre part, la volonté de confronter cette méthode d'homogénéisation à des résultats numériques et expérimentaux.

Le développement d'une approche d'homogénéisation non linéaire dédiée aux composites hyperélastiques à microstructure aléatoire, ainsi que sa mise en œuvre ont permis de répondre partiellement au premier objectif, en particulier en raison de la spécificité des trajets de chargements considérés. La mise en œuvre de cette approche dans un contexte tridimensionnel a révélé la complexité numérique des problèmes à traiter. De ce fait, un ensemble de méthodes numériques ont été mises en œuvre afin de permettre une résolution de problèmes non solvables analytiquement.

Afin de valider l'approche d'homogénéisation, nous avons entrepris une confrontation de ses prédictions à des simulations numériques réalisées à l'aide du code Abaqus. Pour cette comparaison, les lois de comportement des constituants sont choisies identiques pour le modèle et dans les calculs numériques. Le comportement de la matrice est décrit par une loi de type Mooney-Rivlin tandis que les renforts sont de type Néo-Hookéen. La confrontation modèle/calculs sur cellule a permis de vérifier la pertinence de la méthode utilisée ainsi que sa mise en œuvre proposée. Les comparaisons sont également probantes pour les grandeurs mécaniques locales par phase.

Cette vérification du modèle ne pouvant être considérée comme suffisante pour prouver sa validité, nous avons entrepris par la suite d'élaborer des matériaux modèles constitués d'un élastomère renforcé de particules afin d'entreprendre une étape de validation expérimentale. Dans la mesure où les modélisations par homogénéisation sont basées sur l'hypothèse d'une adhérence parfaite entre matrice et renforts, nous avons d'abord réalisé une étude expérimentale sur la

compatibilisation physique ou chimique entre les deux phases et vérifié d'un point de vue macroscopique l'efficacité de la qualité de la liaison interfaciale.

Par la suite, après avoir caractérisé le comportement de chacune des phases à l'état massif, nous avons entrepris de confronter la méthode d'homogénéisation aux résultats expérimentaux. Ceci a permis de constater que le modèle développé ne permettait pas de rendre compte de façon suffisamment fiable du comportement du composite, en particulier pour le fort taux de charges. Nous avons alors considéré que, dans la mesure où les vérifications numériques du second chapitre ont permis de montrer que la technique d'homogénéisation fournissait des résultats satisfaisants pour des composites dont les phases sont en parfaite adhérence, il nous a semblé pertinent d'étendre les potentialités de la méthode d'homogénéisation non linéaire en y incorporant des mécanismes d'endommagement. A cette fin, nous avons d'abord adapté la méthode d'homogénéisation au cas des milieux poreux puis nous avons formulé des lois d'évolution de l'endommagement en tirant profit du cadre thermodynamique usuel.

Les vastes potentialités d'une telle approche pour permettre la prise en compte des mécanismes d'endommagement à l'échelle de la microstructure, se heurtent à la carence actuelle en matière de disponibilité de résultats expérimentaux permettant l'identification des divers paramètres et caractéristiques des phénomènes dont on cherche à décrire les évolutions. Ainsi, seules des vérifications numériques de ces méthodes ont été proposées.

Le travail expérimental, déjà démarré de concert avec le développement des outils de modélisation doit être poursuivi pour permettre une validation plus complète des modèles d'homogénéisation, y compris à l'échelle des phases.

Enfin, ce travail ouvre naturellement de nombreuses perspectives parmi lesquelles on pourra mentionner :

- Une étude expérimentale plus approfondie portant sur les conditions d'adhérence entre les différentes phases.

Cette étude, menée sur divers composites hyperélastiques, afin de varier la nature des réponses et des rigidités de chaque phase, et divers taux de renforts, couplée à la mise en œuvre des outils d'homogénéisation développés permettra de comprendre de manière plus approfondie la nature des liaisons interfaciales et les performances des méthodes développées dans ce contexte.

- Le développement de la méthode pour des chargements quelconques.

Ce travail permettra d'envisager l'utilisation de ces approches, après validation, dans un contexte plus large et d'étendre ainsi la portée des outils mis au point.

- Du point de vue des techniques d'homogénéisation mises en œuvre, il convient de noter qu'une des potentialités qui n'a pas été exploitée ici, concerne la possibilité d'appréhender les hétérogénéités intra phases de la déformation. En particulier, l'introduction de techniques de prise en compte des fluctuations permettra d'investiguer de façon plus fine l'hétérogénéité des champs de déformation au sein de chaque phase [95], [96]. La prise

en compte de cette potentialité pourra apporter des validations supplémentaires de la méthode.

- La prise en compte de l'incompressibilité des milieux élastomères. Même si les matériaux étudiés ont été considérés, au cours de ce travail, en première approche comme compressibles ou quasi incompressibles, il conviendrait d'adapter la méthode au cas parfaitement incompressible, avec prise en compte de terme de pression hydrostatique. Ceci permettra d'étendre la portée de ce travail à une plus large gamme de matériaux.
- La prise en compte du caractère visqueux des milieux élastomères. Il serait important d'envisager d'intégrer leur comportement visco-hyperélastique au sein des outils de simulation développés lors de cette étude. Les difficultés, inhérentes à cette extension concernent d'une part la modélisation elle-même, dans un cadre d'homogénéisation, et l'identification des paramètres qui caractérisent de tels comportements et d'autre part aux importantes difficultés numériques induites.
- La modélisation du comportement cyclique et/ou en fatigue des élastomères renforcés. L'analyse des phénomènes d'adoucissement constitue un domaine très actif de recherche pour lequel les contributions des approches micromécaniques peuvent être significatives. En particulier, il serait important d'engager des études permettant la compréhension du rôle des renforts, dont la forte influence n'est plus à prouver, dans le comportement en fatigue des matériaux étudiés.
- L'analyse des instabilités dans les matériaux hyperélastiques, en présence ou non d'endommagement est un domaine dont l'investigation est cruciale pour la description de la transition endommagement - rupture. Les travaux récents dans ce domaine serviront de base à ces perspectives [80], [75], [76].

Bibliographie

- [1] **ABAQUS**. *Abaqus Standard Theory Manual version 6.5*. Hibbit, Karlson & Sorensen, Rhodes Island, 2004.
- [2] **ALEXANDER H.** Tensile instability on initially spherical ballons. *Int. J. Eng. Sci*, 9 : pp. 549–563, 1971.
- [3] **ANAND L.A.** A constitutive model for elastomeric compressible solids. *Computational Mechanics*, 18 : pp. 335–339, 1996.
- [4] **ANDRIEUX F., SAANOUNI K., SIDOROFF F.** Sur les solides hyperélastiques à compressibilité induite par l’endommagement. *Comptes Rendus de l’Académie des Sciences - Series II*, 324 : pp. 281–288, 1997.
- [5] **ARRUDA E.M., BOYCE M.C.** A three-dimensinal constitutive model for the large stretch behavior of rubber elastic materials. *J. Mech. Phys. Solids*, 41 : pp. 389–412, 1993.
- [6] **BALL J.M.** Convexity conditions and existence theorems in nonlinear elasticity. *Arch. Rat. Mech. Anal.*, 63 : pp. 337–403, 1977.
- [7] **BAO G., HUTCHINSON J.W., McMEEKING R.M.** Particle reinforcement of ductile matrices against plastic flow and creep. *Acta Metall. Mater.*, 39 : pp. 1871–1882, 1991.
- [8] **BAZANT Z.P., OH B.H.** . Efficient numerical integration on the surface of a sphere. *ZAMM*, 66 : pp. 37–49, 1986.
- [9] **BEATTY M.F., KRISHNASWAMY S.** A theory of stress-softening in incompressible isotropic materials. *J. Mech. Phys. Solids*, 48 : pp. 1931–1965, 2000.
- [10] **BENSOUSSAN A., LIONS J.L., PAPANICOLAOU G.** Asymptotic analysis for periodic structures. *Studies in applied mathematics and its applications*, 5 : pp. North–Holland, 1978.
- [11] **BERGSTRÖM J.S., BOYCE M.C.** Constitutive modeling of the large strain time dependent behavior of elastomers. *J. Mech. Phys. Solids*, 46-5 : pp. 931–954, 1998.
- [12] **BISHOP J.F., HILL R.** . A theory of the plastic distorsion of polycrystalline aggregate under combined stress. *Phi. Mag.*, 42 : pp. 414–427, 1951.

- [13] **BLATZ P.J., KO W.L.** Application of finite elasticity to deformation of rubber materials. *Trans. Soc. Rheol.*, 6 : pp. 223, 1962.
- [14] **BORNERT M., BRETHERAU T., GILORMINI P.** *Homogénéisation en mécanique des matériaux 1 - Matériaux aléatoires élastiques et milieux périodiques*. Hermes Science publications, 2001.
- [15] **BORNERT M., BRETHERAU T., GILORMINI P.** *Homogénéisation en mécanique des matériaux 2 - Comportements non linéaires et problèmes ouverts*. Hermes Science publications, 2001.
- [16] **BORNERT M., BRETHERAU T., GILORMINI P.** *Homogenization in Mechanics of Materials*. Iste Publishing Company, 2006.
- [17] **BORNERT M., MASSON R., PONTE CASTAÑEDA P., ZAOUI A.** Second order estimates for the effective behaviour of viscoplastic polycrystalline materials. *J. Mech. Phys. Solids*, 49 : pp. 2737–2764, 2001.
- [18] **BOUASSE H., CARRIERE Z.** Courbes de traction du caoutchouc vulcanisé. *Ann. Fac. Sciences de Toulouse*, 5 : pp. 257–283, 1903.
- [19] **BOUCHART V., BRIEU M., KONDO D., NAÏT-ABDELAZIZ M.** . Implementation and numerical verification of a nonlinear homogenization method applied to hyperelastic composites. *Comp. Mater. Sci.*, doi : 10.1016/j.commatsci.2008.01.033, 2008.
- [20] **BOUCHART V., BRIEU M., KONDO D., NAÏT-ABDELAZIZ M.** Macroscopic behavior of a reinforced elastomer : micromechanical modelling and validation. *Mécanique & Industries*, 8 : pp. 199–205, 2007.
- [21] **BOUCHART V., BRIEU M., KONDO D., NAÏT-ABDELAZIZ M.** An homogenization-based hyperelastic damage model : formulation and application to an epdm/pp composite. *C. R. Mécanique*, doi :10.1016/j.crme.2008.02.001, 2008.
- [22] **BOUCHEREAU M.N.** *Formulation des élastomères, Génie mécanique des caoutchoucs*. G'Sell et Coupard, APOLLOR et INPL, 1997.
- [23] **BRIEU M.** *Homogénéisation et endommagement des composites élastomères par techniques de calcul parallèle*. Thèse de doctorat, École normale supérieure de Cachan, 1999.
- [24] **BRIEU M.** *Contribution à l'étude du comportement mécanique des milieux élastomères*. Thèse d'Habilitation à diriger des recherches, USTL, 2004.
- [25] **BRIEU M., ERHEL J.** On the convergence of a non-incremental homogenization methods for nonlinear elastic composites materials. *Numerical Algorithms*, 32 : pp. 141–161, 2003.
- [26] **BUDIANSKY B., HASHIN Z. & SANDERS J.L.** The stress field of a slipped crystal and the early plastic behavior of polycrystalline materials. *In Plasticity, Proc. 2nd Symp. Naval Struct. Mech.*, Pergamon, Oxford, page pp. 239, 1960.

-
- [27] **BUECHE F.** Mullins effect and rubber-filler interactions. *J. Appl. Polymer. Sci.*, 15 : pp. 271–281, 1961.
- [28] **BURRAGE K.** Parallel and sequential methods for ordinary differential equations. *Num. Math and Scien. Comp*, 1995.
- [29] **CANTOURNET S., DESMORAT R.** Modélisation thermodynamique du frottement interne et de l’hystéresis d’un élastomère. *Comptes Rendus de l’Académie des Sciences - Series II*, 331-4 : pp. 265–270, 2003.
- [30] **CHRISTMAN T., NEEDLEMAN A., SURESH S.** An experimental and numerical study of deformation in metal-ceramic composites. *Acta Metall.*, 37-11 : pp. 3029–3050, 1989.
- [31] **CIARLET P.G.** *Elasticité tridimensionnelle*. Masson, 1986.
- [32] **CIARLET P.G., GEYMONAT G.** Sur les lois de comportement en élasticité non linéaire incompressible. *Comptes Rendus de l’Académie des Sciences - Series II*, 295 : pp. 423–426, 1982.
- [33] **DANIELSSON M., PARKS D.M., BOYCE M.C.** Constitutive modeling of porous hyperelastic materials. *Mech. Mater.*, 36 : pp. 347–358, 2004.
- [34] **DARTOIS S., HALM D., NADOT C., DRAGON A., FANGET A.** Introduction of damage evolution in a scale transition approach for highly-filled particulate composites. *Engineering Fracture Mechanics*, doi :10.1016/j.engfracmech.2007.06.010, 2007.
- [35] **DIANI J., BRIEU M., GILORMINI P.** Observation and modeling of the anisotropic visco-hyperelastic behavior of a rubberlike material. *International Journal of Solids and Structures*, 43-10 : pp. 3044–3056, 2006.
- [36] **DIANI J., BRIEU M., VACHERAND J.M.** A damage directional constitutive model for mulins effect with permanent set and induced anisotropy. *European Journal of Mechanics - A/solids*, 25-3 : pp. 483–496, 2006.
- [37] **DIANI J., GILORMINI P.** Combining the logarithmic strain and the full-network model for a better understanding of the hyperelastic behavior of rubber-like materials. *J. Mech. Phys. Solids*, 53-11 : pp. 2579–2596, 2005.
- [38] **DOGHRI I., OUAAR A.** Homogenization of two-phase elasto-plastic composite materials and structures study of tangent operators, cyclic plasticity and numerical algorithms. *International Journal of Solids and Structures*, 40 : pp. 1681–1712, 2003.
- [39] **DRUCKER D.C.** A definition of stable inelastic material. *Journal of Applied Mechanics, Transactions of the American Society of Mechanical Engineers*, 26 : pp. 101–106, 1959.
- [40] **DUMONTET H.** *Homogénéisation et effets de bords dans les composites*. Thèse de doctorat d’état, Université Pierre et Marie Curie, Paris 6, 1990.
- [41] **ESHELBY J.D.** The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion and related problems. *Proc. R. Soc. London, A*, 241 : pp. 376–396, 1957.

- [42] **FARIS R.J.** The influence of vacuole formation on the response and failure of filled elastomers. *Trans. Soc. Rheol*, 12 : pp. 315–334, 1968.
- [43] **FOND C.** Cavitation criterion for rubber materials : a review of void-growth models. *J. Polym. Sci., B-Polym.Phys.*, 39-17 : pp. 2081–2096, 2001.
- [44] **FRIAÂ A.** Le matériau de norton-hoff généralisé et ses applications en analyse limite. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Serie A*, 286 : pp. 953–956, 1978.
- [45] **GAVAZZI A.C., LAGOUDAS D.C.** On the numerical evaluation of eshelby's tensor and its applications to elastoplastic fibrous composites. *Comp. Mech.*, 7 : pp. 13–19, 1990.
- [46] **GENTOT L.** *Adoucissement par fatigue des milieux élastomères : caractérisation, modélisation et simulation numérique.* Thèse de doctorat, Université des Sciences et Technologies de Lille, 2003.
- [47] **GHAHREMANI F.** Numerical evaluation of the stresses and strains in ellipsoidal inclusions in an anisotropic elastic material. *Mechanics Research Communications*, 4-2 : pp. 89–91, 1977.
- [48] **GOVINDGEE S., SIMO J.C.** A micro-mechanically bases continuum damage model for carbon black-filled rubbers incorporating mullins effect. *J. Mech. Phys. Solids*, 39-1 : pp. 87–112, 1991.
- [49] **GOVINDGEE S., SIMO J.C.** Transition from micro-mechanics to computationally efficient phenomenology : carbon black-filled rubbers incorporating mullins effect. *J. Mech. Phys. Solids*, 40-1 : pp. 231–233, 1991.
- [50] **GUIOT B., NADOT-MARTIN C., DRAGON A.** A multiscale (visco)-hyperelastic modelling for particulate composites. *Mechanics Research Communications*, 33-4 : pp. 441–449, 2006.
- [51] **HALPHEN B., SON N.Q.** Sur les matériaux standards généralisés. *J. Méc.*, 14 : pp. 39–63, 1975.
- [52] **HARTH-SMITH J.L.** Elasticity parameters for finite deformations of rubber-like materials. *Math. Phys*, 17 : pp. 608–625, 1996.
- [53] **HASHIN Z. AND SHTRIKMAN S.** On some variational principles in anisotropic and nonhomogeneous elasticity. *J. Mech. Phys. Solids*, 10-4 : pp. 335–342, 1962.
- [54] **HILL R.** Continuum micro-mechanics of elastoplastic polycrystals. *J. Mech. Phys. Solids*, 13 : pp. 89–101, 1965.
- [55] **HILL R.** Convexity conditions and existence theorems in non linear elasticity. *Arch. Rat. Mech. Anal.*, 63 : pp. 337–403, 1972.
- [56] **HORGAN C.O., SACCOMANDI G.** A new constitutive theory for fiber-reinforced incompressible non linearly elastic solids. *J. Mech. Phys. Solids*, 53 : pp. 1985–2015, 2005.

-
- [57] **JOHNSON M.A., BEATTY M.F.** The mullins effect in equibiaxial extension and its influence on the inflation of a balloon. *International Journal of Engineering Science*, 33-2 : pp. 223–169, 1995.
- [58] **KAKAVAS, P.A.** Influence of the cavitation on the stress-strain fields of compressible blatz-ko materials at finite deformation. *International Journal of Solids and Structures*, 39 : pp. 783–795, 2002.
- [59] **KALISKE M., ROTHERT H.** On damage modelling for elastic and viscoelastic materials at large strain. *Comp Struc*, 79-22/25 : pp. 2133–2141, 2001.
- [60] **KRÖNER E.** Zur plastischen verformung des vielkristalls. *Acta Metall.*, 9 : pp. 155–161, 1961.
- [61] **KUHN W.** The relation between molecular size, statistical molculat shape and elastic properties of highly polymerized substances. *Kolloidzshr*, 76 : pp. 258–271, 1936.
- [62] **KUHN W., GRÜN F.** Relation between the elasticity constant and extension double diffraction of highly elastic substances. *Kolloidzshr*, 101 : pp. 248–271, 1942.
- [63] **LAHELLEC N.** *Homogénéisation et étude expérimentale de composites hyperélastiques et visco-hyperélastiques.* Thèse de doctorat, Université de la Méditerranée Aix-Marseille II, 2001.
- [64] **LAHELLEC N., MAZEROLLE F., MICHEL J.C.** Second-order estimate of the macroscopic behavior of periodic hyperelastic composites : theory and experimental validation. *J. Mech. Phys. Solids*, 52 : pp. 27–49, 2004.
- [65] **LAMBERT-DIANI J., REY C.** Elaboration de nouvelles lois de comportement pour les élastomères. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series II*, 326 :483–488, 1998.
- [66] **LAMBERT-DIANI J., REY C.** New phenomenological behavior laws for rubbers and thermoplastic elastomers. *European journal of mechanics - A/solids*, 18 : pp. 1027–1043, 1999.
- [67] **LARRABA-ABBES F.** *Etude du comportement hyperélastique de 2 élastomères de type NR et EPDM par extensométrie optique bidimensionnelle.* Thèse de doctorat, ECP, 1998.
- [68] **LAWS N.** On the thermostatics of composite materials. *J. Mech. Phys. Solids*, 21 : pp. 9–17, 1973.
- [69] **LEMAITRE J., CHABOCHE L.** *Mécanique des matériaux solides.* DUNOD, 2ⁱème édition, 1988.
- [70] **LEVIN V.M.** Thermal expansion coefficients of heterogeneous materials. *Mekh. Tverd. Tela*, 2 : pp. 93–94, 1967.
- [71] **LI J., MAYAU D., LAGARRIGUE V.** A constitutive model dealing with damage due to cavity growth and the mullins effect in rubber-like materials under triaxial loading. *J. Mech. Phys. Solids*, doi :10.1016/j.jmps.2007.06.009, 2007.

- [72] **LION A.** A constitutive model for carbon black filled rubber : experimental investigations and mathematical representation. *Continuum Mech. Therm.*, 8 : pp. 153–169, 1996.
- [73] **LLORCA J., SEGURADO J.** Three-dimensional multiparticle cell simulations of deformation and damage in sphere-reinforced composites. *Mater. Sci. Eng., A* 365 1-2 : pp. 267–274, 2004.
- [74] **LOPEZ-PAMIES O.** *On the effective behavior, microstructure evolution and macroscopic stability of elastomeric composites.* Thèse de doctorat, Ecole Polytechnique, 2006.
- [75] **LOPEZ-PAMIES O., PONTE CASTAÑEDA P.** Homogenization-based constitutive models for porous elastomers and implications for macroscopic instabilities : I, analysis. *J. Mech. Phys. Solids*, 55-8 : pp. 1677–1701, 2007.
- [76] **LOPEZ-PAMIES O., PONTE CASTAÑEDA P.** Homogenization-based constitutive models for porous elastomers and implications for macroscopic instabilities : II, results. *J. Mech. Phys. Solids*, 55-8 : pp. 1702–1728, 2007.
- [77] **MARCKMANN, G., VERRON, E., GORNET, L., CHAGNON, G., CHARRIER, P., FORT, P.** A theory of network alteration for the mullins effect. *J. Mech. Phys. Solids*, 50 : pp. 2011–2028, 2002.
- [78] **MARIGO J.J.** Formulation d’une loi d’endommagement d’un matériau élastique. *Comptes Rendus de l’Académie des Sciences - Series II*, 292 : pp. 1309–1312, 1981.
- [79] **MASSON R., BORNERT M., SUQUET P., ZAOUI A.** An affine formulation for the prediction of the effective properties of nonlinear composites and polycrystals. *J. Mech. Phys. Solids*, 48 : pp. 1203–1227, 2000.
- [80] **MICHEL J.C., LOPEZ-PAMIES P., PONTE CASTAÑEDA P., TRIANTAFYLLIDIS N.** Microscopic and macroscopic instabilities in finitely strained porous elastomers. *J. Mech. Phys. Solids*, 55-5 : pp. 900–938, 2007.
- [81] **MIEHE C.** Discontinuous and continuous damage evolution in ogden-type large-strain elastic materials. *European journal of mechanics - A/solids*, 14-5 : pp. 697–720, 1995.
- [82] **MIEHE S., KECK J.** Surimposed finite elastic-viscoelastic-plastoelastic stress response with damage in filled rubbery polymers, experiments, modelling and algorithmic implementation. *J. Mech. Phys. Solids*, 48-2 : pp. 323–365, 2000.
- [83] **MÜLLINS L.** Softening of rubber by deformation. *Rubber Chem. Technol.*, 42 : pp. 339–362, 1969.
- [84] **MÜLLINS L., TOBIN N.R.** Theoretical model for the elastic behavior of filled-reinforced vulcanized rubbers. *Rubber Chem. Technol.*, 30 : pp. 551–571, 1947.
- [85] **MOONEY M.** A theory of large elastic deformation. *J. Appl. Phys*, 11 : pp. 582–592, 1940.

-
- [86] MURA T. *Micromechanics of defects in solids, 2nd edition*. Martinus Nijhoff Pub., The Hague, Boston, 1987.
- [87] NEMAT-NASSER S., IWAKUMA T., HEJAZI M. On composites with periodic structure. *Mechanicals of Materials*, 1 : pp. 239–267, 1982.
- [88] OGDEN R. Extremum principles in non-linear elasticity and their application to composites : I-theory. *International Journal of Solids and Structures*, 14 : pp. 265–282, 1978.
- [89] OGDEN R.W. Non linear elastic deformations. *Dover Publications Inc, New York*, 1984.
- [90] OGDEN R.W., ROXBURGH D.G. A pseudo-elastic model for the mullins effect in filled rubber. *Proc. R. Soc. London, A*, 455 : pp. 2861–2877, 1999.
- [91] OMNÈS B., HENRI T., THUILLIER S., PILVIN P. . Modelling of the mechanical behaviour of filled elastomer with a self-consistent homogenization technique. *European Conference for Constitutive Models for Rubber IV*, pages pp. 197–202, 2005.
- [92] POLIGNONE D.A., HORGAN C.O. Effects of material anisotropy and inhomogeneity on cavitation for composite incompressible anisotropic elastic spheres. *International Journal of Solids and Structures*, 30 : pp. 3381–3416, 1993.
- [93] PONTE CASTAÑEDA P. The overall constitutive behaviour of nonlinearly elastic composites. *Proc. R. Soc. London, A*, 422 : pp. 147–171, 1989.
- [94] PONTE CASTAÑEDA P. The effective mechanical properties of nonlinear isotropic composites. *J. Mech. Phys. Solids*, 39 : pp. 45–71, 1991.
- [95] PONTE CASTAÑEDA P. Second-order homogenization estimates for nonlinear composites incorporating field fluctuations : I-theory. *J. Mech. Phys. Solids*, 50-4 : pp. 737–757, 2002.
- [96] PONTE CASTAÑEDA P. Second-order homogenization estimates for nonlinear composites incorporating field fluctuations : II-applications. *J. Mech. Phys. Solids*, 50-4 : pp. 759–782, 2002.
- [97] PONTE CASTAÑEDA P., KAILASAM M. A general constitutive theory for linear and nonlinear particulate media with microstructure evolution. *J. Mech. Phys. Solids*, 46-3 : pp. 427–465, 1998.
- [98] PONTE CASTAÑEDA P., SUQUET P. Non linear composites. *Adv. Appl. Mech.*, 34 : pp. 171–302, 1998.
- [99] PONTE CASTANEDA P. Exact second order estimates for the effective mechanical properties of non linear composite materials. *J. Mech. Phys. Solids*, 44 : pp. 827–862, 1996.
- [100] PONTE CASTANEDA P., TIBERIO E. A second order homogenization method in finite elasticity and applications to black-filled elastomers. *J. Mech. Phys. Solids*, 48 : pp. 1389–1411, 2000.

- [101] **PONTE CASTANEDA P., WILLIS J.** The effect of spatial distribution on the effective behavior of composite materials and cracked media. *J. Mech. Phys. Solids*, 43-12 : pp. 1915–1951, 1995.
- [102] **PONTE CASTANEDA P., WILLIS J.** Variational second order estimates for non linear composites. *Proc. R. Soc. London, A*, 455 : pp. 1799–1811, 1999.
- [103] **PRESS W.H., TEUKOLSKY S.A., VETTERLING W.T., FLANNERY B.P.** Numerical recipes in fortran, the art of scientific computing, 2nd edition. *Cambridge University Press*, 1992.
- [104] **PRUCHNICKI E.** Hyperelastic homogenized law for reinforced elastomer at finite strain with edge effects. *Acta Mech.*, 129 : pp. 139–162, 1998.
- [105] **QIU G.Y., PENCE T.J.** Remarks on the behavior of simple directionally reinforced incompressible non linearly elastic solids. *Journal of Elasticity*, 49 : pp. 1–30, 1997.
- [106] **REESE S., GOVINDGEE S.** A theory of finite viscoelasticity and numerical aspects. *International Journal of Solids and Structures*, 35-26/27 : pp. 3455–3482, 1998.
- [107] **RIVLIN R.S.** Large elastic deformation of isotropic materials, in fundamental concepts. *Ph. Tr. R. Soc., A*, 240 : pp. 459–490, 1948.
- [108] **SAANOUNI K., SIDOROFF F., ANDRIEUX F.** Damaged hyperelastic solid with induced volume variation. effects of loading. *Damage mechanics in Engineering materials in Studies in Appl. Mech.*, 46 : pp. 503–522, 1998.
- [109] **SACCOMANDI G., OGDEN R.W.** *Mechanics and Thermomechanics of Rubberlike Solids. CISM Courses and Lectures Series 452.* Springer, Wein, New York, 2004.
- [110] **SALENÇON J.** *Handbook of continuum Mechanics : Concepts, Thermoelasticity.* Springer, 2001.
- [111] **SANCHEZ-HUBERT J., SANCHEZ-PALENCIA E.** *Introduction aux méthodes asymptotiques et à l'homogénéisation.* MASSON, 1992.
- [112] **SANCHEZ-PALENCIA E., SANCHEZ-HUBERT J.** Sur certains phénomènes physiques d'homogénéisation donnant lieu à des phénomènes de relaxation. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - A*, 286 : pp. 903–906, 1978.
- [113] **SIMO J.C.** On a fully three-dimensionnal finite-strain viscoelastic damage model : formulation and computational aspects. *Computer Methods in applied mechanics and engineering*, 60 : pp. 153–173, 1987.
- [114] **SPENCER A.J.M.** *Deformations of fiber-reinforced materials.* Oxford University Press, Oxford, 1972.
- [115] **SPENCER A.J.M.** *Continuum theory of the mechanics of fiber-reinforced composites.* Springer, Wein, New York, 1984.

-
- [116] **SUQUET P.** *Plasticité et homogénéisation*. Thèse de doctorat d'état, Université de Paris 6, 1982.
- [117] **SUQUET P.** Overall properties of nonlinear composites : a modified secant moduli theory and its link with ponte castañeda's non linear variational procedure. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Series II*, 320 : pp. 563–571, 1995.
- [118] **SUQUET P., PONTE CASTAÑEDA P.** Small contrast perturbation expansions for the effective properties of non linear composites. *Comptes Rendus de l'Académie des Sciences - Serie II*, 317 : pp. 1515–1522, 1993.
- [119] **TALBOT D.R.S., WILLIS J.R.** Variational principles for inhomogeneous non linear media. *IMA Journal of Applied Mathematics*, 35 : pp. 39–54, 1985.
- [120] **TAYLOR G.I.** Plastic strain in metal. *J. Inst. Metals.*, 62 : pp. 307–324, 1938.
- [121] **TREOLAR L.R.G.** *The physics of rubber elasticity*. 3ième édition, Oxford University Press, 1975.
- [122] **WANG M.C., GUTH E.** Statistical theory of networks of non-gaussian flexible chains. *J. Chem. Phys.*, 20 : pp. 427–433, 1952.
- [123] **WILLIS J.R.** Bounds and self consistent estimates for the overall moduli of anisotropic composites. *J. Mech. Phys. Solids*, 25 : pp. 185–202, 1977.
- [124] **WILLIS J.R.** Variational and related methods for the overall properties of composites. *Adv. Appl. Mech.*, 21 : pp. 1–78, 1981.
- [125] **ZAOUÏ A.** Matériaux hétérogènes et composites. *Cours de l'Ecole Polytechnique*, 2000.
- [126] **ZAÏRI F., NAÏT-ABDELAZIZ M., WOZNICA K., GLOAGUEN J.M.** Constitutive equations for the viscoplastic-damage behaviour of a rubber-modified polymer. *Eur. J. of Mech. A/Solids*, 24 : pp. 169–182, 2005.
- [127] **ZHU Q.** *Applications des approches d'homogénéisation à la modélisation tridimensionnelle de l'endommagement des matériaux quasi fragiles : formulations, validations et implémentations numériques*. Thèse de doctorat, Université des Sciences et Technologies de Lille, 2006.

Annexe A

Compléments du chapitre 1 : Rappels de thermodynamique des milieux continus

A.1 Premier Principe

On considère un matériau qui occupe un domaine ω de Ω de frontière $\partial\omega$. Le premier principe de la thermodynamique traduit la conservation de l'énergie totale de ω :

$$\frac{d}{dt}(\Psi + E_c) = P^{\text{ext}} + Q \quad (\text{A.1})$$

où Ψ et E_c sont respectivement l'énergie interne et l'énergie cinétique "eulériennes" de ω . P^{ext} représente la puissance des efforts extérieurs et Q le taux de chaleur reçue.

Soit ψ l'énergie interne spécifique (c'est-à-dire par unité de masse) en variables eulériennes reliées à l'énergie interne Ψ par :

$$\Psi = \int_{\omega} \rho \psi d\omega$$

Soit, d'autre part, l'énergie cinétique eulérienne de ω définie par :

$$E_c = \frac{1}{2} \int_{\omega} \rho \underline{V} \cdot \underline{V} d\omega$$

où \underline{V} est la vitesse eulérienne d'une particule $M \in \omega \subset \Omega$.

Si l'on note \underline{q} le vecteur flux de chaleur reçu et par r la densité de chaleur volumique fournie à ω , tous deux exprimés en variables eulériennes, alors le taux de chaleur reçu Q par $\omega \subset \Omega$ est :

$$Q = \int_{\omega} r d\omega - \int_{\partial\omega} \underline{q} \cdot \underline{n} ds$$

où \underline{n} est la normale unitaire extérieure à $\partial\omega$.

Enfin la puissance des efforts extérieurs P , exprimée en variables eulériennes, est donnée par :

$$P = \int_{\omega} \underline{f}_v \cdot \underline{V} d\omega + \int_{\partial\omega} (\underline{\sigma} \cdot \underline{n}) \cdot \underline{V} ds$$

Ainsi, la conservation de l'énergie s'écrit de la façon suivante :

$$\int_{\omega} \rho \left[\frac{d\psi}{dt} + \underline{V} \cdot \underline{\gamma} \right] d\omega = \int_{\omega} (\underline{f}_v \cdot \underline{V} + r) d\omega + \int_{\partial\omega} [(\underline{\sigma} \cdot \underline{n}) \cdot \underline{V} - \underline{q} \cdot \underline{n}] ds \quad (\text{A.2})$$

A l'aide du théorème de la divergence, on transforme l'intégrale de surface en intégrale de volume :

$$\begin{aligned} \int_{\partial\omega} [(\underline{\sigma} \cdot \underline{n}) \cdot \underline{V} - \underline{q} \cdot \underline{n}] ds &= \int_{\omega} [\text{div}_{\underline{x}}(\underline{\sigma} \cdot \underline{V}) - \text{div}_{\underline{x}}(\underline{q})] d\omega \\ &= \int_{\omega} [\text{div}_{\underline{x}}(\underline{\sigma}) \cdot \underline{V} + \underline{\sigma} : \mathbf{grad}_{\underline{x}} \underline{V} - \text{div}_{\underline{x}}(\underline{q})] d\omega \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

Alors, en tenant compte des équations du mouvement (I.14) et de la symétrie du tenseur des contraintes, il vient :

$$\int_{\omega} \left[-\rho \frac{d\psi}{dt} + \underline{\sigma} : \mathbf{D} + r - \text{div}_{\underline{x}}(\underline{q}) \right] d\omega = 0 \quad (\text{A.4})$$

où $\underline{\sigma} : \mathbf{D}$ est le produit contracté de $\underline{\sigma}$ par \mathbf{D} ($\underline{\sigma} : \mathbf{D} = \sigma_{ij} D_{ij}$), et \mathbf{D} le tenseur des taux de déformation défini par :

$$\mathbf{D} = \frac{1}{2} (\mathbf{grad}_{\underline{x}} \underline{V} + \mathbf{grad}_{\underline{x}} \underline{V}^t)$$

Sous forme locale, et en configuration eulérienne, on obtient alors, comme l'égalité A.4 est valable pour tout $\omega \subset \Omega$:

$$\rho \frac{d\psi}{dt} = \underline{\sigma} : \mathbf{D} + r - \text{div}_{\underline{x}} \underline{q} \quad \forall M \in \omega \subset \Omega \quad (\text{A.5})$$

En configuration lagrangienne, on déduit classiquement de (A.2) :

$$\rho_0 \frac{\partial \psi}{\partial t} = \mathbf{T} : \frac{\partial \mathbf{F}}{\partial t} + r_0 - \text{div}_{\underline{X}}(\underline{q}_0) \quad \forall M_0 \in \omega_0 \subset \Omega_0 \quad (\text{A.6})$$

où toutes les variables sont exprimées en variables lagrangiennes, r_0 désignant la densité de chaleur reçue ($r_0 = J r$) et \underline{q}_0 le vecteur flux de chaleur reçu ($\underline{q}_0 = J \mathbf{F}^{-1} \cdot \underline{q}$).

A.2 Second principe

Le second principe à satisfaire fait intervenir l'entropie S du domaine $\omega \subset \Omega$. On admet qu'il existe une entropie spécifique s , ainsi qu'une température absolue T_a ($T_a > 0$), toutes deux définies en configuration eulérienne, de sorte que :

$$S = \int_{\omega} \rho s dx$$

Le second principe s'exprime par :

$$\frac{dS}{dt} \geq \int_{\omega} \frac{r}{T_a} dx - \int_{\partial\omega} \frac{\underline{q} \cdot \underline{n}}{T_a} dS \quad (\text{A.7})$$

En configuration eulérienne, le développement de (A.7) conduit à :

$$\rho \frac{ds}{dt} + \operatorname{div}_{\underline{x}} \left(\frac{q}{T_a} \right) - \frac{r}{T_a} \geq 0, \quad \forall M \in \omega \subset \Omega \quad (\text{A.8})$$

ou encore, en configuration lagrangienne, à :

$$\rho_0 \frac{\partial s}{\partial t} + \operatorname{div}_{\underline{X}} \left(\frac{q_0}{T_a} \right) - \frac{r_0}{T_a} \geq 0, \quad \forall M_0 \in \omega_0 \subset \Omega_0 \quad (\text{A.9})$$

où s et T_a sont ici les expressions lagrangiennes de l'entropie spécifique et de la température absolue.

En combinant respectivement (A.5), (A.6), (A.8) et (A.9), on obtient :

– en variables eulériennes

$$\rho \left(T_a \frac{ds}{dt} - \frac{d\psi}{dt} \right) + \boldsymbol{\sigma} : \mathbf{D} - \frac{q}{T_a} \operatorname{grad}_{\underline{x}}(T_a) \geq 0, \quad \forall M \in \omega \subset \Omega \quad (\text{A.10})$$

– en variables lagrangiennes

$$\rho_0 \left(T_a \frac{\partial s}{\partial t} - \frac{\partial \psi}{\partial t} \right) + \mathbf{T} : \frac{\partial \mathbf{F}}{\partial t} - \frac{q_0}{T_a} \operatorname{Grad}_{\underline{X}}(T_a) \geq 0, \quad \forall M_0 \in \omega_0 \subset \Omega_0 \quad (\text{A.11})$$

Ces inégalités, appelées inégalités de Clausius-Duhem, sont bien entendu équivalentes au sens de la dualité Lagrange/Euler et constituent une condition nécessaire d'admissibilité thermodynamique pour les lois de comportement.

Annexe B

Compléments du chapitre 2

B.1 Calcul de la densité d'énergie homogénéisée

Lorsque la condition de stationnarité de l'équation (II.8) est satisfaite c'est-à-dire que $\mathbf{F}^{(r)} = \langle \mathbf{F} \rangle^{(r)} = \bar{\mathbf{F}}^{(r)}$, la densité d'énergie qui s'écrivait sous la forme suivante :

$$\tilde{W}(\bar{\mathbf{F}}) = \sum_{r=1}^N c^{(r)} \left(\begin{array}{l} W^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) + \langle \mathbf{F} - \bar{\mathbf{F}}^{(r)} \rangle^{(r)} : \mathbf{T}^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)})_+ \\ \left\langle \frac{1}{2}(\mathbf{F} - \bar{\mathbf{F}}^{(r)}) : \tilde{\mathbb{L}}^{(r)} : (\mathbf{F} - \bar{\mathbf{F}}^{(r)}) \right\rangle^{(r)} \end{array} \right) \quad (\text{B.1})$$

devient

$$\tilde{W}(\bar{\mathbf{F}}) = \sum_{r=1}^N c^{(r)} \left(\begin{array}{l} W^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) + \\ \left\langle \frac{1}{2}(\mathbf{F} : \tilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F} + \bar{\mathbf{F}}^{(r)} : \tilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \bar{\mathbf{F}}^{(r)} - 2\bar{\mathbf{F}}^{(r)} : \tilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F}) \right\rangle^{(r)} \end{array} \right) \quad (\text{B.2})$$

En tenant compte de la relation suivante $\langle \bar{\mathbf{F}}^{(r)} : \tilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F} \rangle^{(r)} = \bar{\mathbf{F}}^{(r)} : \tilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \bar{\mathbf{F}}^{(r)}$, la densité d'énergie va s'écrire sous la forme :

$$\tilde{W}(\bar{\mathbf{F}}) = \sum_{r=1}^N c^{(r)} \left(\begin{array}{l} W^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) + \\ \frac{1}{2} \left\langle (\mathbf{F} : \tilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F}) \right\rangle^{(r)} - \frac{1}{2} \bar{\mathbf{F}}^{(r)} : \tilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \bar{\mathbf{F}}^{(r)} \end{array} \right) \quad (\text{B.3})$$

On souhaite exprimer les seconds moments $\langle \mathbf{F} : \tilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F} \rangle^{(r)}$ en termes de premier moment $\bar{\mathbf{F}}^{(r)}$, pour cela on procède de la manière suivante :

Grâce à une intégration par partie sur Ω_0 de $(\boldsymbol{\tau} : \mathbf{F})$ en utilisant les équations d'Euler-Lagrange (II.13) associés au problème thermoélastique (II.13), on obtient alors :

$$\langle \mathbf{F} : (\tilde{\mathbb{L}}_0 : \mathbf{F} + \boldsymbol{\tau}) \rangle = \bar{\mathbf{F}} : \langle \tilde{\mathbb{L}}_0 : \mathbf{F} + \boldsymbol{\tau} \rangle \quad (\text{B.4})$$

ce qui équivaut à

$$\sum_{r=1}^N c^{(r)} \left\langle \mathbf{F} : (\widetilde{\mathbb{L}}_0 : \mathbf{F} + \boldsymbol{\tau}) \right\rangle^{(r)} = \bar{\mathbf{F}} : \sum_{r=1}^N c^{(r)} \left\langle \widetilde{\mathbb{L}}_0 : \mathbf{F} + \boldsymbol{\tau} \right\rangle^{(r)} \quad (\text{B.5})$$

avec $\widetilde{\mathbb{L}}_0(\underline{\mathbf{X}}) = \sum_{r=1}^N \theta^{(r)}(\underline{\mathbf{X}}) \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)}$ et $\boldsymbol{\tau}(\underline{\mathbf{X}}) = \sum_{r=1}^N \theta^{(r)}(\underline{\mathbf{X}}) \boldsymbol{\tau}^{(r)}$

Ainsi, nous avons

$$\sum_{r=1}^N c^{(r)} \left\langle \mathbf{F} : (\widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F} + \boldsymbol{\tau}^{(r)}) \right\rangle^{(r)} = \bar{\mathbf{F}} : \sum_{r=1}^N c^{(r)} \left\langle \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F} + \boldsymbol{\tau}^{(r)} \right\rangle^{(r)} \quad (\text{B.6})$$

or $\boldsymbol{\tau}^{(r)} = \mathbf{T}^{(r)}(\bar{\mathbf{F}}^{(r)}) - \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \bar{\mathbf{F}}^{(r)}$, ce qui nous donne

$$\begin{aligned} & \sum_{r=1}^N c^{(r)} \left\langle \mathbf{F} : \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F} + \mathbf{F} : \mathbf{T}^{(r)} - \mathbf{F} : \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \bar{\mathbf{F}}^{(r)} \right\rangle^{(r)} \\ &= \bar{\mathbf{F}} : \sum_{r=1}^N c^{(r)} \left\langle \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F} + \mathbf{T}^{(r)} - \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \bar{\mathbf{F}}^{(r)} \right\rangle^{(r)} \end{aligned} \quad (\text{B.7})$$

Et après simplification, le résultat est

$$\sum_{r=1}^N c^{(r)} \left(\left\langle \mathbf{F} : \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \mathbf{F} \right\rangle^{(r)} - \bar{\mathbf{F}}^{(r)} : \widetilde{\mathbb{L}}^{(r)} : \bar{\mathbf{F}}^{(r)} \right) = \sum_{r=1}^N c^{(r)} \left(\bar{\mathbf{F}} - \bar{\mathbf{F}}^{(r)} \right) : \mathbf{T}^{(r)}$$

Finalement, en injectant cette relation dans l'expression (B.3), nous obtenons :

$$\tilde{\mathbf{W}}(\bar{\mathbf{F}}) \simeq \sum_{r=1}^N c^{(r)} \left\{ \mathbf{W}^{(r)}(\mathbf{F}^{(r)}) + \frac{1}{2} \left(\bar{\mathbf{F}} - \bar{\mathbf{F}}^{(r)} \right) : \mathbf{T}^{(r)} \right\} \quad (\text{B.8})$$

B.2 Tenseur des modules tangents et sa dérivée par rapport à \mathbf{F}

La définition du tenseur des modules tangents est :

$$\mathbb{L}_t(\mathbf{F}) = \frac{\partial \mathbf{T}}{\partial \mathbf{F}}(\mathbf{F}) = \frac{\partial^2 \mathbf{W}}{\partial \mathbf{F} \partial \mathbf{F}}(\mathbf{F}) \quad (\text{B.9})$$

Si la densité d'énergie de déformation considérée s'écrit en fonction des invariants i_1, i_2, i_3 , l'expression des contraintes est :

$$\mathbf{T} = \frac{\partial \mathbf{W}}{\partial i_1} \frac{\partial i_1}{\partial \mathbf{F}} + \frac{\partial \mathbf{W}}{\partial i_2} \frac{\partial i_2}{\partial \mathbf{F}} + \frac{\partial \mathbf{W}}{\partial i_3} \frac{\partial i_3}{\partial \mathbf{F}} \quad (\text{B.10})$$

ce qui s'écrit en notation indicelle :

$$\mathbf{T}_{ij} = \frac{\partial \mathbf{W}}{\partial i_1} \frac{\partial i_1}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial \mathbf{W}}{\partial i_2} \frac{\partial i_2}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial \mathbf{W}}{\partial i_3} \frac{\partial i_3}{\partial \mathbf{F}_{ij}} \quad (\text{B.11})$$

Donc,

$$\begin{aligned} \mathbb{L}^t_{ijkl} &= \left\{ \frac{\partial^2 W}{\partial I_1^2} \frac{\partial I_1}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial^2 W}{\partial I_2 \partial I_1} \frac{\partial I_2}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial^2 W}{\partial I_3 \partial I_1} \frac{\partial I_3}{\partial \mathbf{F}_{ij}} \right\} \frac{\partial I_1}{\partial \mathbf{F}_{kl}} \\ &+ \left\{ \frac{\partial^2 W}{\partial I_2 \partial I_1} \frac{\partial I_1}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial^2 W}{\partial I_2^2} \frac{\partial I_2}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial^2 W}{\partial I_2 \partial I_3} \frac{\partial I_3}{\partial \mathbf{F}_{ij}} \right\} \frac{\partial I_2}{\partial \mathbf{F}_{kl}} \\ &+ \left\{ \frac{\partial^2 W}{\partial I_3 \partial I_1} \frac{\partial I_1}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial^2 W}{\partial I_3 \partial I_2} \frac{\partial I_2}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial^2 W}{\partial I_3^2} \frac{\partial I_3}{\partial \mathbf{F}_{ij}} \right\} \frac{\partial I_3}{\partial \mathbf{F}_{kl}} \\ &+ \frac{\partial W}{\partial I_1} \frac{\partial^2 I_1}{\partial \mathbf{F}_{ij} \partial \mathbf{F}_{kl}} + \frac{\partial W}{\partial I_2} \frac{\partial^2 I_2}{\partial \mathbf{F}_{ij} \partial \mathbf{F}_{kl}} + \frac{\partial W}{\partial I_3} \frac{\partial^2 I_3}{\partial \mathbf{F}_{ij} \partial \mathbf{F}_{kl}} \end{aligned} \quad (\text{B.12})$$

avec

$$\frac{\partial I_1}{\partial \mathbf{F}_{ij}} = 2\mathbf{F}_{ij} \quad (\text{B.13})$$

$$\frac{\partial I_2}{\partial \mathbf{F}_{ij}} = 2(I_1 \mathbf{F}_{ij} - \mathbf{F} \mathbf{C}_{ij}) \quad (\text{B.14})$$

$$\frac{\partial I_3}{\partial \mathbf{F}_{ij}} = 2I_3 \mathbf{F}_{ij}^{-t} \quad (\text{B.15})$$

et

$$\frac{\partial^2 I_1}{\partial \mathbf{F}_{ij} \partial \mathbf{F}_{kl}} = 2 \frac{\partial \mathbf{F}_{ij}}{\partial \mathbf{F}_{kl}} = \delta_{ik} \delta_{jl} \quad (\text{B.16})$$

$$\frac{\partial^2 I_2}{\partial \mathbf{F}_{ij} \partial \mathbf{F}_{kl}} = 2(2\mathbf{F}_{ij} \mathbf{F}_{kl} + I_1 \delta_{ik} \delta_{jl} - \delta_{ik} \mathbf{C}_{lj} - \mathbf{F}_{il} \mathbf{F}_{kj} - \delta_{jl} \mathbf{B}_{ki}) \quad (\text{B.17})$$

$$\frac{\partial^2 I_3}{\partial \mathbf{F}_{ij} \partial \mathbf{F}_{kl}} = 2I_3 \mathbf{F}_{ij}^{-t} \mathbf{F}_{kl}^{-t} + J \varepsilon_{ikn} \varepsilon_{jlm} \mathbf{F}_{nm} \quad (\text{B.18})$$

Nous utilisons pour ces calculs la définition suivante :

$$\mathbf{F}_{pq}^{-t} = \frac{1}{2 \det \mathbf{F}} \varepsilon_{pjn} \varepsilon_{qlm} \mathbf{F}_{jl} \mathbf{F}_{nm} \quad (\text{B.19})$$

où les ε_{pjn} sont les symboles de permutations.

Après calcul et utilisation de toutes ces relations, nous obtenons le résultat suivant pour le tenseur des modules tangents :

$$\begin{aligned} \mathbb{L}^t_{ijkl} &= 2 \frac{\partial W}{\partial I_1} \delta_{ik} \delta_{jl} + 2 \frac{\partial W}{\partial I_2} (2\mathbf{F}_{ij} \mathbf{F}_{kl} + I_1 \delta_{ik} \delta_{jl} - \mathbf{C}_{lj} \delta_{ik} - \mathbf{F}_{il} \mathbf{F}_{kj} - \mathbf{B}_{ik} \delta_{jl}) \\ &+ 2 \frac{\partial W}{\partial I_3} \left(I_3 \mathbf{F}_{ij}^{-t} \mathbf{F}_{kl}^{-t} + J \varepsilon_{ikn} \varepsilon_{jlm} \mathbf{F}_{nm} \right) + 4 \frac{\partial^2 W}{\partial I_1 \partial I_1} \mathbf{F}_{ij} \mathbf{F}_{kl} \\ &+ 4 \frac{\partial^2 W}{\partial I_2 \partial I_2} (I_1 \mathbf{F}_{ij} - \mathbf{F}_{in} \mathbf{C}_{nj}) (I_1 \mathbf{F}_{kl} - \mathbf{F}_{kn} \mathbf{C}_{nl}) \\ &+ 4 \frac{\partial^2 W}{\partial I_3 \partial I_3} I_3^2 \mathbf{F}_{ij}^{-t} \mathbf{F}_{kl}^{-t} + 4 \frac{\partial^2 W}{\partial I_1 \partial I_2} (2I_1 \mathbf{F}_{ij} \mathbf{F}_{kl} - \mathbf{F}_{kn} \mathbf{C}_{nl} \mathbf{F}_{ij} - \mathbf{F}_{kl} \mathbf{F}_{in} \mathbf{C}_{nj}) \\ &+ 4 \frac{\partial^2 W}{\partial I_2 \partial I_3} I_3 \left(\mathbf{F}_{kl}^{-t} (I_1 \mathbf{F}_{ij} - \mathbf{F}_{in} \mathbf{C}_{nj}) + \mathbf{F}_{ij}^{-t} (I_1 \mathbf{F}_{kl} - \mathbf{F}_{kn} \mathbf{C}_{nl}) \right) \\ &+ 4 \frac{\partial^2 W}{\partial I_1 \partial I_3} I_3 \left(\mathbf{F}_{ij} \mathbf{F}_{kl}^{-t} + \mathbf{F}_{kl} \mathbf{F}_{ij}^{-t} \right) \end{aligned} \quad (\text{B.20})$$

Si on considère une densité d'énergie exprimée en $\bar{i}_1 = J^{-2/3}i_1$, $\bar{i}_2 = J^{-4/3}i_2$ et $J = \det(\mathbf{F})$ comme celle définie dans le logiciel Abaqus alors on a l'expression des contraintes suivante :

$$\mathbf{T}_{ij} = \frac{\partial W}{\partial \bar{I}_1} \frac{\partial \bar{I}_1}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial W}{\partial \bar{I}_2} \frac{\partial \bar{I}_2}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial W}{\partial J} \frac{\partial J}{\partial \mathbf{F}_{ij}} \quad (\text{B.21})$$

Donc,

$$\begin{aligned} \mathbb{L}^t_{ijkl} = & \left\{ \frac{\partial^2 W}{\partial \bar{I}_1^2} \frac{\partial \bar{I}_1}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial^2 W}{\partial \bar{I}_2 \partial \bar{I}_1} \frac{\partial \bar{I}_2}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial^2 W}{\partial J \partial \bar{I}_1} \frac{\partial J}{\partial \mathbf{F}_{ij}} \right\} \frac{\partial \bar{I}_1}{\partial \mathbf{F}_{kl}} \\ & + \left\{ \frac{\partial^2 W}{\partial \bar{I}_2 \partial \bar{I}_1} \frac{\partial \bar{I}_1}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial^2 W}{\partial \bar{I}_2^2} \frac{\partial \bar{I}_2}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial^2 W}{\partial \bar{I}_2 \partial J} \frac{\partial J}{\partial \mathbf{F}_{ij}} \right\} \frac{\partial \bar{I}_2}{\partial \mathbf{F}_{kl}} \\ & + \left\{ \frac{\partial^2 W}{\partial J \partial \bar{I}_1} \frac{\partial \bar{I}_1}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial^2 W}{\partial J \partial \bar{I}_2} \frac{\partial \bar{I}_2}{\partial \mathbf{F}_{ij}} + \frac{\partial^2 W}{\partial J^2} \frac{\partial J}{\partial \mathbf{F}_{ij}} \right\} \frac{\partial J}{\partial \mathbf{F}_{kl}} \\ & + \frac{\partial W}{\partial \bar{I}_1} \frac{\partial^2 \bar{I}_1}{\partial \mathbf{F}_{ij} \partial \mathbf{F}_{kl}} + \frac{\partial W}{\partial \bar{I}_2} \frac{\partial^2 \bar{I}_2}{\partial \mathbf{F}_{ij} \partial \mathbf{F}_{kl}} + \frac{\partial W}{\partial J} \frac{\partial^2 J}{\partial \mathbf{F}_{ij} \partial \mathbf{F}_{kl}} \end{aligned} \quad (\text{B.22})$$

avec

$$\frac{\partial \bar{I}_1}{\partial \mathbf{F}_{ij}} = 2J^{-2/3} \left(\mathbf{F}_{ij} - \frac{1}{3} \mathbf{F}_{ij}^{-t} \right) \quad (\text{B.23})$$

$$\frac{\partial \bar{I}_2}{\partial \mathbf{F}_{ij}} = 2J^{-4/3} \left(\mathbf{I}_1 \mathbf{F}_{ij} - \mathbf{F} \mathbf{C}_{ij} - \frac{2}{3} \mathbf{I}_1 \mathbf{F}_{ij}^{-t} \right) \quad (\text{B.24})$$

$$\frac{\partial J}{\partial \mathbf{F}_{ij}} = J \mathbf{F}_{ij}^{-t} \quad (\text{B.25})$$

et

$$\frac{\partial^2 \bar{I}_1}{\partial \mathbf{F}_{ij} \partial \mathbf{F}_{kl}} = 2J^{-2/3} \left(\frac{-2}{3} \mathbf{F}_{ij} \mathbf{F}_{kl}^{-t} + \delta_{ik} \delta_{jl} + \frac{5}{9} \mathbf{F}_{ij}^{-t} \mathbf{F}_{kl}^{-t} - \frac{1}{3J} \varepsilon_{ikn} \varepsilon_{jlm} \mathbf{F}_{nm} \right) \quad (\text{B.26})$$

$$\frac{\partial^2 \bar{I}_2}{\partial \mathbf{F}_{ij} \partial \mathbf{F}_{kl}} = 2J^{-4/3} \left[\begin{aligned} & \frac{-4}{3} \mathbf{F}_{kl}^{-t} \left(\mathbf{I}_1 \mathbf{F}_{ij} - \mathbf{F} \mathbf{C}_{ij} - \frac{2}{3} \mathbf{I}_1 \mathbf{F}_{ij}^{-t} \right) \\ & + \frac{-4}{3} \mathbf{F}_{ij}^{-t} \left(\mathbf{I}_1 \mathbf{F}_{kl} - \mathbf{F} \mathbf{C}_{kl} - \frac{2}{3} \mathbf{I}_1 \mathbf{F}_{kl}^{-t} \right) \\ & + 2\mathbf{F}_{ij} \mathbf{F}_{kl} - \delta_{ik} \mathbf{C}_{lj} - \mathbf{F}_{il} \mathbf{F}_{kj} - \delta_{jl} \mathbf{B}_{ki} \\ & - \frac{2}{3J} \mathbf{I}_2 \varepsilon_{ikn} \varepsilon_{jlm} \mathbf{F}_{nm} \end{aligned} \right] \quad (\text{B.27})$$

$$\frac{\partial^2 J}{\partial \mathbf{F}_{ij} \partial \mathbf{F}_{kl}} = \varepsilon_{ikn} \varepsilon_{jlm} \mathbf{F}_{nm} \quad (\text{B.28})$$

On obtient alors l'expression du tenseur des modules tangents correspondant à une densité exprimée en $\bar{i}_1 = J^{-2/3}i_1$, $\bar{i}_2 = J^{-4/3}i_2$ et $J = \det(\mathbf{F})$ en utilisant toutes les expressions présentées ci-dessus.

Il est également possible d'obtenir l'expression de $\frac{\partial \mathbb{L}^t_{ijkl}}{\partial \mathbf{F}_{pq}}$ en procédant de la même façon. Du fait de la lourdeur des expressions alors obtenues, on ne les présente pas ici.

Annexe C

Compléments du chapitre 2 : Mise en œuvre spécifique du modèle pour le cas des particules rigides

C.1 Théorie du second ordre appliquée aux matériaux hyperélastiques renforcés par des particules rigides

L'estimation variationnelle de la densité d'énergie homogénéisée (II.18), établie dans la section II.2 est assez générale pour être applicable à différentes classes de composites hyperélastiques. Les applications considérées dans cette annexe se limitent au cas particulier des matériaux hyperélastiques renforcés par des particules rigides indéformables, ce qui simplifie la mise en œuvre de la méthode, en particulier dans la résolution du problème d'homogénéisation thermoélastique.

C.1.1 Théorie du second ordre particularisée aux particules rigides indéformables

Le contexte est celui des composites biphasés constitués d'inclusions ellipsoïdales rigides dispersées aléatoirement avec une "symétrie ellipsoïdale" et une fraction volumique $c^{(2)} = c$ dans une matrice hyperélastique de densité d'énergie $W^{(1)}$.

Le fait que les particules soient rigides indéformables implique que la moyenne du gradient de la transformation dans les inclusions soit égale à l'identité (i.e $\bar{\mathbf{F}}^{(2)} = \mathbf{I}$). Il en suit donc que la moyenne du gradient de la transformation dans la matrice hyperélastique est donnée par :

$$\bar{\mathbf{F}}^{(1)} = \frac{1}{1-c} (\bar{\mathbf{F}} - c\mathbf{I}) \quad (\text{C.1})$$

en vertu de la relation de moyenne sur la déformation $(1-c)\bar{\mathbf{F}}^{(1)} + c\bar{\mathbf{F}}^{(2)} = \bar{\mathbf{F}}$.

On s'appuie ici sur l'estimation de \widetilde{W} déterminée par Ponte Castañeda et Tiberio [100] qui ont

particularisé l'estimation (II.18) au cas limite des particules rigides. Le résultat pour $\widetilde{\mathbf{W}}$ est le suivant :

$$\widetilde{\mathbf{W}}(\bar{\mathbf{F}}) = (1-c)\mathbf{W}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) + \frac{1}{2}(\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) : \left[\widetilde{\mathbb{L}} - \frac{1}{1-c}\mathbb{L} \right] : (\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) \quad (\text{C.2})$$

où $\mathbb{L} = \mathbb{L}_t^{(1)}$ représente le tenseur des modules tangents (II.16) de la matrice dans le composite thermoélastique linéaire de comparaison, et $\widetilde{\mathbb{L}}$ le tenseur des modules effectifs correspondant au même composite (biphasé). On rappelle que ce composite est constitué d'inclusions rigides de fraction volumique c distribuées dans une matrice ayant un tenseur de modules \mathbb{L} et la même microstructure que le composite non linéaire élastique dans sa configuration non déformée.

Les contraintes macroscopiques sont obtenues par dérivation de (C.2) par rapport à $\bar{\mathbf{F}}$. Ainsi, les calculs conduisent à :

$$\begin{aligned} \bar{\mathbf{T}}(\bar{\mathbf{F}}) = \mathbf{T}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) &+ \frac{1}{2}(\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) : \left[\widetilde{\mathbb{L}} - \frac{1}{1-c}\mathbb{L} \right] + \frac{1}{2} \left[\widetilde{\mathbb{L}} - \frac{1}{1-c}\mathbb{L} \right] : (\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) \\ &+ \frac{1}{2}(\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) : \frac{\partial}{\partial \bar{\mathbf{F}}} \left[\widetilde{\mathbb{L}} - \frac{1}{1-c}\mathbb{L} \right] : (\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) \end{aligned} \quad (\text{C.3})$$

Comme pour le cas des particules déformables, on peut déterminer l'expression des contraintes moyennes par phases. En effet, on a

$$\bar{\mathbf{T}} = (1-c)\bar{\mathbf{T}}^{(1)} + c\bar{\mathbf{T}}^{(2)} \quad (\text{C.4})$$

avec

$$\bar{\mathbf{T}}^{(1)} = \frac{1}{2} \left[\frac{(2-c)}{(1-c)} \mathbf{T}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) - \frac{(c)}{(1-c)^2} (\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) : \mathbb{L} \right] \quad (\text{C.5})$$

$$\begin{aligned} \bar{\mathbf{T}}^{(2)} &= \frac{1}{2} \left[\mathbf{T}^{(1)}(\bar{\mathbf{F}}^{(1)}) + \frac{1}{(1-c)} (\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) : \mathbb{L} + \frac{1}{c} (\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) : \left[\widetilde{\mathbb{L}} - \frac{1}{1-c}\mathbb{L} \right] \right. \\ &\left. + \frac{1}{c} \left[\widetilde{\mathbb{L}} - \frac{1}{1-c}\mathbb{L} \right] : (\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) + \frac{1}{c} (\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) : \frac{\partial}{\partial \bar{\mathbf{F}}} \left[\widetilde{\mathbb{L}} - \frac{1}{1-c}\mathbb{L} \right] : (\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) \right] \end{aligned} \quad (\text{C.6})$$

Les résultats qui viennent d'être établis sont valables pour toute estimation du tenseur des modules tangents effectif $\widetilde{\mathbb{L}}$ du composite linéaire de comparaison. On pourra par exemple utiliser les estimations de Reuss, de Hashin-shtrikman (pour des composites à morphologie matrice-inclusion) ou autocohérente (pour des composites de type granulaire). Dans le paragraphe suivant, sont détaillés les résultats correspondant au schéma d'homogénéisation linéaire de type Hashin-Shtrikman.

C.1.2 Schéma d'homogénéisation linéaire utilisé : estimation de type Hashin-Shtrikman

Dans le cas des particules rigides, la borne supérieure de Voigt de l'homogénéisation linéaire devient infinie et n'a donc pas de pertinence physique. Ainsi, nous pouvons considérer l'approximation de type Reuss ainsi que celle d'Hashin-Shtrikman. Cependant, le modèle de type Reuss n'étant exact qu'au premier ordre par rapport au contraste, nous choisissons d'utiliser une estimation basée sur le modèle d'Hashin-Shtrikman. Ainsi, à partir des formules générales (cf. [125]) d'homogénéisation linéaire pour un biphasé, on montre pour le cas des élastomères renforcés avec des particules rigides que (voir annexe C.2) :

$$\tilde{\mathbb{L}} = \mathbb{L} + \frac{c}{1-c} \mathbb{P}^{-1} \quad (\text{C.7})$$

où $\mathbb{P} = \mathbb{P}^{(1)}$ est obtenu grâce à l'expression (II.28). L'estimation d'Hashin-Shtrikman requiert ainsi le calcul du tenseur de Hill \mathbb{P} qui dépend de l'anisotropie de \mathbb{L} . Cette dernière dépendance fait que l'on ne dispose pas de résultats analytiques, ce qui alourdit la mise en oeuvre numérique du modèle. Le calcul de \mathbb{P} a été réalisé par intégration numérique sur la sphère unité.

L'introduction de $\tilde{\mathbb{L}}$ dans l'expression (C.3) des contraintes macroscopiques conduit à :

$$\begin{aligned} \bar{\mathbf{T}}(\bar{\mathbf{F}}^1)(\bar{\mathbf{F}}) = \mathbf{T}^{(1)} &+ \frac{1}{2} \frac{c}{1-c} (\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) : [\mathbb{P}^{-1} - \mathbb{L}] + \frac{1}{2} \frac{c}{1-c} [\mathbb{P}^{-1} - \mathbb{L}] : (\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) \\ &+ \frac{1}{2} \frac{c}{1-c} (\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) : \frac{\partial}{\partial \bar{\mathbf{F}}} [\mathbb{P}^{-1} - \mathbb{L}] : (\bar{\mathbf{F}} - \mathbf{I}) \end{aligned} \quad (\text{C.8})$$

L'évaluation de la réponse en contrainte du composite par l'équation qui précède met en évidence une autre difficulté numérique. En effet, cette évaluation requiert une procédure de dérivation numérique robuste, permettant de déterminer de manière précise $\bar{\mathbf{T}}$. En ce qui concerne la dérivation de l'expression $[\mathbb{P}^{-1} - \mathbb{L}]$ par rapport à $\bar{\mathbf{F}}$, le calcul de \mathbb{L} et de sa dérivée $\frac{\partial \mathbb{L}}{\partial \bar{\mathbf{F}}}$ ne pose aucun problème (voir annexe B.2) : le calcul est effectué de façon analytique. En revanche, la dérivation du tenseur \mathbb{P}^{-1} n'est possible qu'avec l'aide d'un outil de dérivation numérique.

C.1.3 Mise en oeuvre numérique

Nous venons de voir que l'estimation des contraintes macroscopiques d'un composite biphasé hyperélastique contenant des particules rigides par la méthode du second ordre utilisant la borne inférieur d'Hashin-Shtrikman comme schéma d'homogénéisation linéaire est assez complexe et requiert l'utilisation d'algorithmes numériques pour le tenseur de Hill \mathbb{P} et de la dérivée de son inverse par rapport à $\bar{\mathbf{F}}$. Ainsi, nous nous attachons maintenant à décrire les algorithmes utilisés pour l'implémentation du schéma d'homogénéisation non linéaire obtenu.

C.1.3.1 Calcul numérique du tenseur de Hill \mathbb{P} et de la dérivée de $\frac{\partial \mathbb{P}^{-1}}{\partial \bar{\mathbf{F}}}$

On sait que le tenseur \mathbb{P} dépend de la taille, de la forme et de l'orientation des inclusions ainsi que de leur distribution. Dans cette étude, on s'intéresse au cas des inclusions ellipsoïdales réparties aléatoirement avec une distribution ellipsoïdale dans une matrice hyperélastique ainsi le tenseur \mathbb{P} s'écrit sous la forme (II.28).

Du fait de l'absence d'expression analytique pour \mathbb{P} , qui est calculé numériquement comme décrit dans la section II.4.1 et qui est nécessaire au calcul des contraintes macroscopiques (C.8), la dérivation de \mathbb{P}^{-1} par rapport à $\bar{\mathbf{F}}$ ne peut pas être réalisée analytiquement. Ainsi, une dérivation numérique par différences finies centrées a été réalisée pour chaque terme $\frac{\partial \mathbb{P}_{ijkl}}{\partial \bar{\mathbf{F}}_{pq}}$ ($9 \times 9 \times 9$ termes). Afin d'avoir une bonne précision de calcul à ce niveau, une méthode de Ridders-Richardson a été mise en oeuvre [103]. L'algorithme permettant de simuler un essai de traction uniaxiale piloté en déformation est similaire à celui précisé lors de la mise en oeuvre de la méthode pour les particules déformables (voir section II.4.1).

C.1.4 Applications et illustrations pour des inclusions sphériques

La mise en oeuvre de la méthode du second ordre dans le cas d'inclusions rigides indéformables nécessite uniquement le choix de la densité d'énergie de déformation associée à la matrice. Notre but étant de comparer les prédictions du modèle avec des simulations élément finis sur une cellule de base (voir section II.4), nous adoptons la densité d'énergie de déformation associée aux matériaux hyperélastiques de Mooney-Rivlin (II.33), disponible dans le logiciel Abaqus. Les paramètres utilisés pour les simulations sont toujours $C_{10} = C_{01} = 1 \text{ MPa}$ et $D_1 = 2/3 \text{ MPa}^{-1}$.

Dans ce paragraphe, nous nous intéressons au cas où les inclusions rigides sont sphériques distribuées aléatoirement dans la matrice ainsi le calcul du tenseur de Hill \mathbb{P} se fait en considérant le tenseur \mathbf{Z} égal à l'identité \mathbf{I} (II.28). Nous souhaitons ainsi évaluer les effets renforçants des inclusions en fonction de la fraction volumique de particules mais également en fonction du chargement considéré. Ainsi, nous exposerons les résultats obtenus pour les chargements de traction uniaxiale et d'extension-compression simples (cf tableau II.1) que nous pourrions reproduire dans les calculs éléments finis. Afin d'évaluer l'effet du renforcement, plusieurs fractions volumiques de particules : 5%, 10%, 15% et 25% sont considérées. La réponse de la matrice non renforcée est à chaque fois reportée sur les figures.

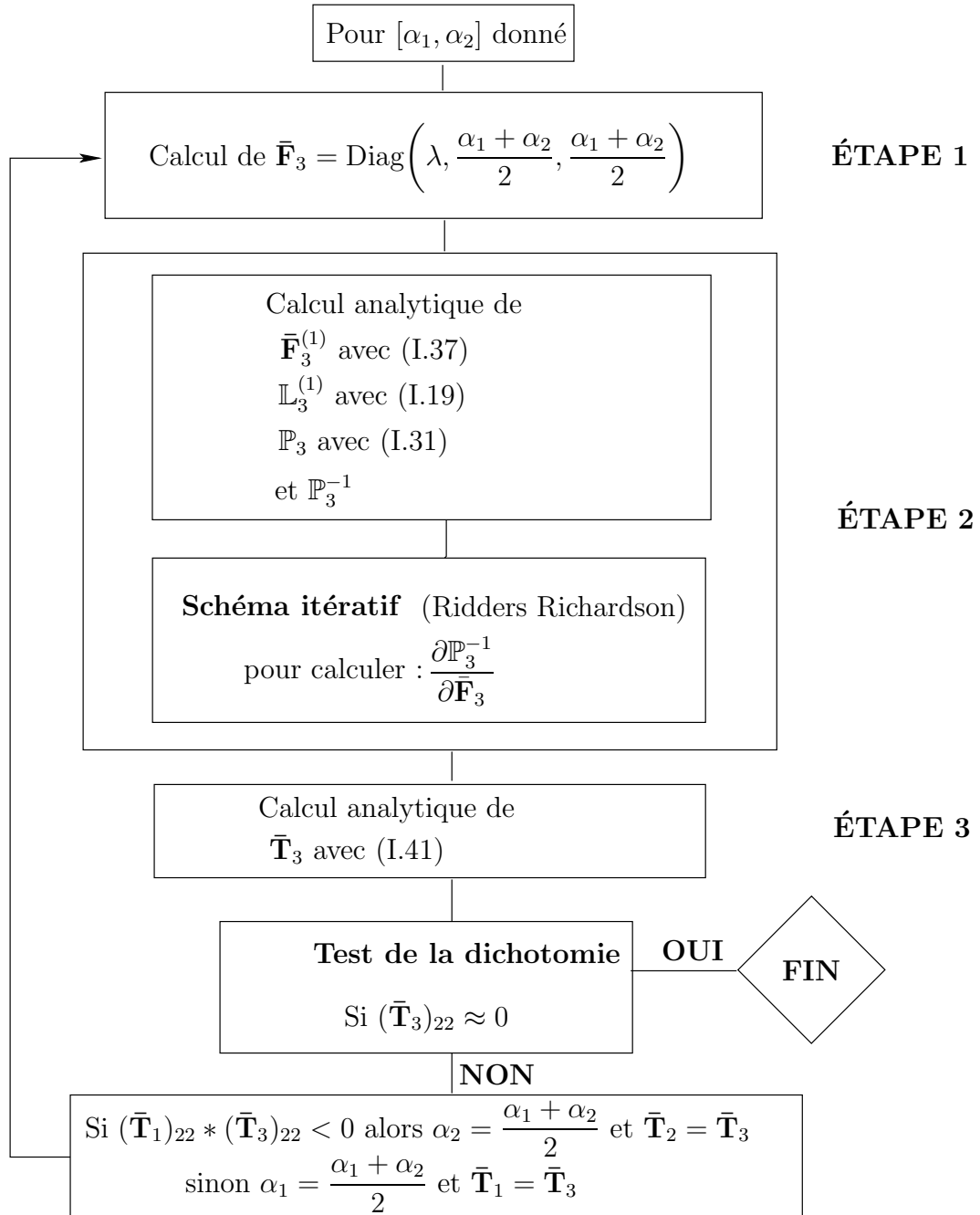


FIG. C.1 - Algorithme de mise en oeuvre de la méthode du second ordre dans le cas d'inclusions rigides indéformables.

i- Traction uniaxiale

Sur la figure C.2 sont reportées les réponses macroscopiques en traction uniaxiale (contrainte nominale T_{11} en fonction de F_{11}) prédites par la méthode d'homogénéisation du second ordre basée sur le schéma d'homogénéisation linéaire d'Hashin-Shtrikman. Ainsi, on observe que le modèle indique que la présence des particules rigides par un effet significatif sur le comportement macroscopique du matériau.

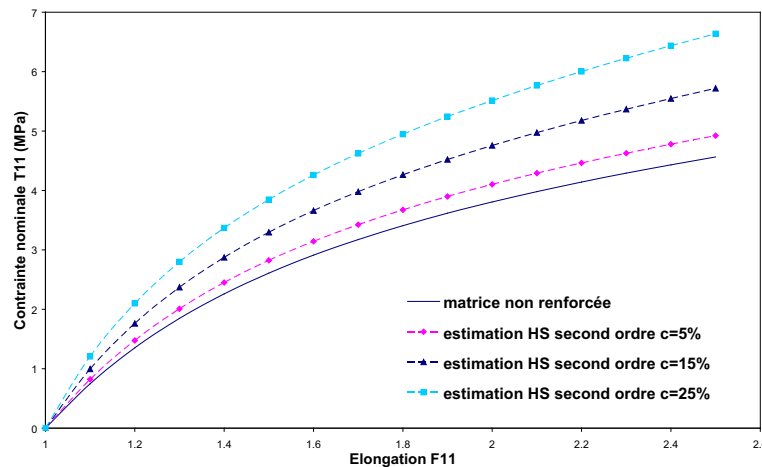


FIG. C.2 - Prédications par le modèle basé sur le schéma d'Hashin-Shtrikman de la contrainte nominale T_{11} en traction uniaxiale pour différents taux de renforts rigides sphériques

ii- Essais de extension et compression simples

Nous avons pu observer l'effet des particules renforçantes sur le comportement global du matériau soumis à une traction uniaxiale, on propose maintenant de regarder cet effet sur le comportement du matériau soumis cette fois à des chargements de extension simple et de compression simple. Les résultats obtenus par le modèle utilisant le schéma d'homogénéisation d'Hashin-Shtrikman pour différents taux de renforts sont indiqués sur la figure C.3 pour l'extension simple, et sur la figure C.4 pour la compression simple.

On note pour le chargement d'extension simple un effet du renforcement similaire à celui observé pour la traction uniaxiale.

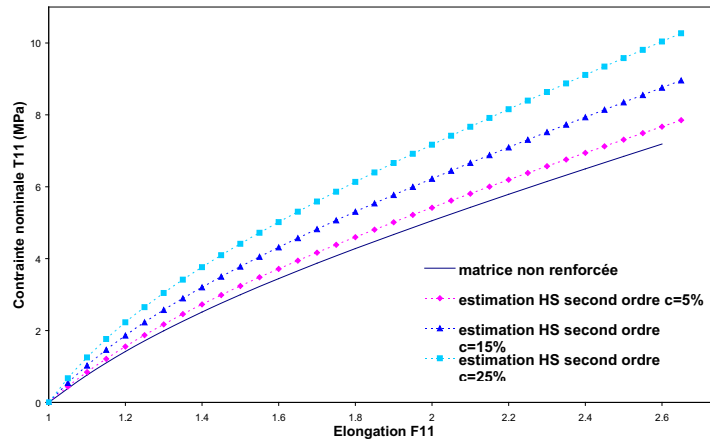


FIG. C.3 - Prédications par le modèle basé sur le schéma d'Hashin-Shtrikman de la contrainte nominale T_{11} en **extension simple** pour différents taux de renforts rigides sphériques

En ce qui concerne le chargement de compression simple, on observe également cet effet de renforcement du matériau notamment aux fortes déformations F_{11} . En effet, il est observé que la contrainte de compression appliquée T_{11} augmente rapidement pour $F_{11} = 0.4$ et de façon plus marquée pour une fraction volumique de renforts rigide de 15%.

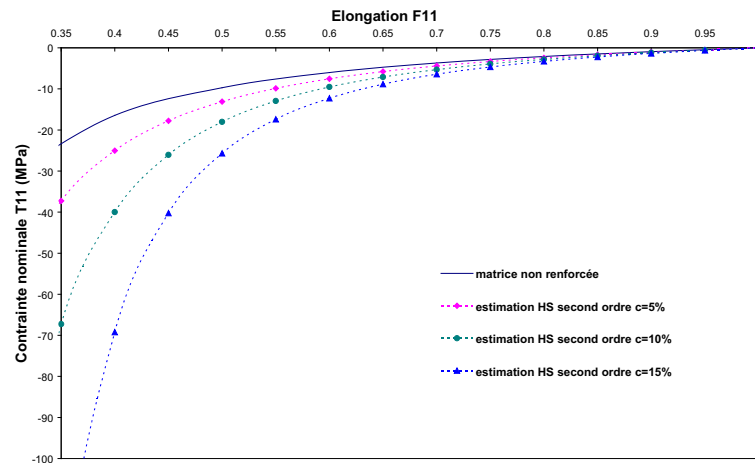


FIG. C.4 - Prédications par le modèle basé sur le schéma d'Hashin-Shtrikman de la contrainte nominale T_{11} en **compression simple** pour différents taux de renforts rigides sphériques

C.2 Estimation de Hashin-Shtrikman pour les milieux de modules \mathbb{L} renforcés par des particules rigides indéformables

On souhaite montrer dans cette annexe la formule (C.7) donnant la borne inférieure d'Hashin-Shtrikman $\tilde{\mathbb{L}}$ pour un composite linéaire constitué d'une matrice de tenseur de modules \mathbb{L} et de particules rigides dont la concentration est c :

$$\tilde{\mathbb{L}} = \mathbb{L} + \frac{c}{1-c} \mathbb{P}^{-1} \quad (\text{C.9})$$

On part de la formule générale donnant les bornes d'Hashin-Shtrikman de l'inverse du tenseur d'élasticité homogénéisé pour un matériau biphasé (matrice de tenseur de modules \mathbb{L} , seconde phase de module \mathbb{L}_2 :

$$\tilde{\mathbb{L}}^{-1} = \mathbb{L}^{-1} + c(\mathbb{L}_2^{-1} - \mathbb{L}^{-1}) : [\mathbb{I} + \mathbb{Q} : (\mathbb{L}_2^{-1} - \mathbb{L}^{-1})]^{-1} : [(1-c)\mathbb{I} + c(\mathbb{I} + \mathbb{Q} : (\mathbb{L}_2^{-1} - \mathbb{L}^{-1}))^{-1}]^{-1}$$

avec

$$\mathbb{Q} = \mathbb{L} - \mathbb{L} : \mathbb{P} : \mathbb{L} \quad (\text{C.10})$$

\mathbb{P} étant le tenseur défini en (II.28).

Compte tenu de l'hypothèse de phase rigide, $(\mathbb{L}_2^{-1})^{-1}$ tend vers 0, et l'expression de $\tilde{\mathbb{L}}^{-1}$ se réduit à :

$$\tilde{\mathbb{L}}^{-1} = \mathbb{L}^{-1} - c\mathbb{L}^{-1} : [\mathbb{I} - (1-c)\mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1}]^{-1} \quad (\text{C.11})$$

pour laquelle on montre auparavant que

$$(\mathbb{L}_2^{-1} - \mathbb{L}^{-1}) : [\mathbb{I} - \mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1}]^{-1} : [(1-c)\mathbb{I} + c(\mathbb{I} - \mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1})^{-1}]^{-1} = [\mathbb{I} - (1-c)\mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1}]^{-1}$$

(C.11) se réécrit sous la forme :

$$\tilde{\mathbb{L}}^{-1} = \mathbb{L}^{-1} : [\mathbb{I} - (1-c)\mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1} - c\mathbb{I}] : [\mathbb{I} - (1-c)\mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1}]^{-1} \quad (\text{C.12})$$

ou encore

$$\tilde{\mathbb{L}}^{-1} = (1-c)\mathbb{L}^{-1} : [\mathbb{I} - \mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1}] : [\mathbb{I} - (1-c)\mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1}]^{-1} \quad (\text{C.13})$$

Prenant l'inverse de cette dernière expression du tenseur $\tilde{\mathbb{L}}^{-1}$, on obtient :

$$\tilde{\mathbb{L}} = \frac{1}{1-c} [\mathbb{I} - (1-c)\mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1}] : [\mathbb{I} - \mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1}]^{-1} : \mathbb{L} \quad (\text{C.14})$$

ce qui donne :

$$\tilde{\mathbb{L}} = \frac{1}{1-c} : [(\mathbb{I} - \mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1}) + c\mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1}] : [\mathbb{I} - \mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1}]^{-1} : \mathbb{L} \quad (\text{C.15})$$

Un développement immédiat de ce résultat conduit à :

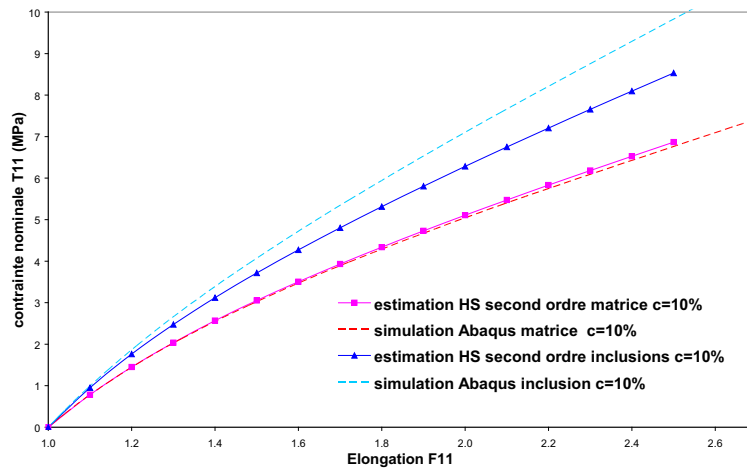
$$\tilde{\mathbb{L}} = \mathbb{L} + \frac{c}{1-c} : [\mathbb{I} + \mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1} : (\mathbb{I} - \mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1})^{-1}] : \mathbb{L} \quad (\text{C.16})$$

Compte tenu de la définition (C.10) de \mathbb{Q} , on a $\mathbb{Q} : \mathbb{L}^{-1} = \mathbb{I} - \mathbb{L} : \mathbb{P}$. Il s'en suit que $\tilde{\mathbb{L}}$ est donné par (C.9) qui est le résultat à démontrer.

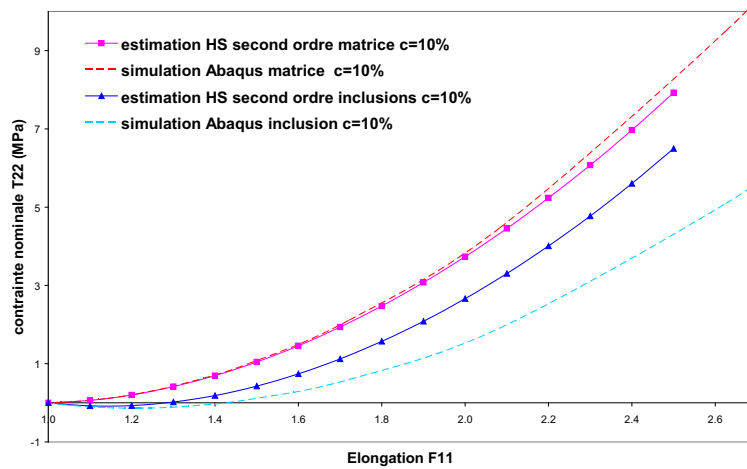
Annexe D

Compléments du chapitre 3 : Prédictions des contraintes moyennes par phases en extension et compression simples pour des inclusions déformables

On présente, dans cette annexe, les comparaisons entre les prédictions des contraintes moyennes par phase du modèle d'homogénéisation et celles des simulations éléments finis, pour les chargements d'extension simple et de compression simple du matériau de Mooney-Rivlin considéré au chapitre 3 contenant des particules déformables.

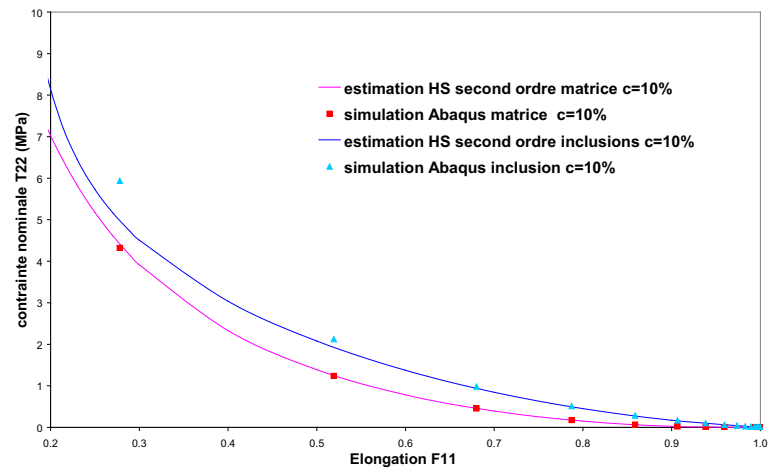


(a) Contrainte nominale T11

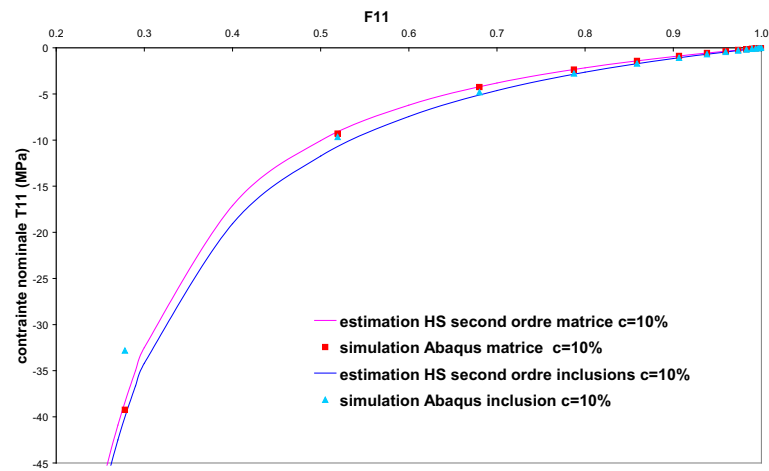


(b) Contrainte nominale T22

FIG. D.1 - Prédications en **extension simple** des contraintes moyennes par phase du modèle d'Hashin-Shtrikman comparées aux réponses numériques pour le composite contenant 10% de particules sphériques **déformables**



(a) Contrainte nominale T11



(b) Contrainte nominale T22

FIG. D.2 - Prédiction en **compression simple** des contraintes moyennes par phase du modèle d'Hashin-Shtrikman comparées aux réponses numériques pour le composite contenant 10% de particules sphériques **déformables**

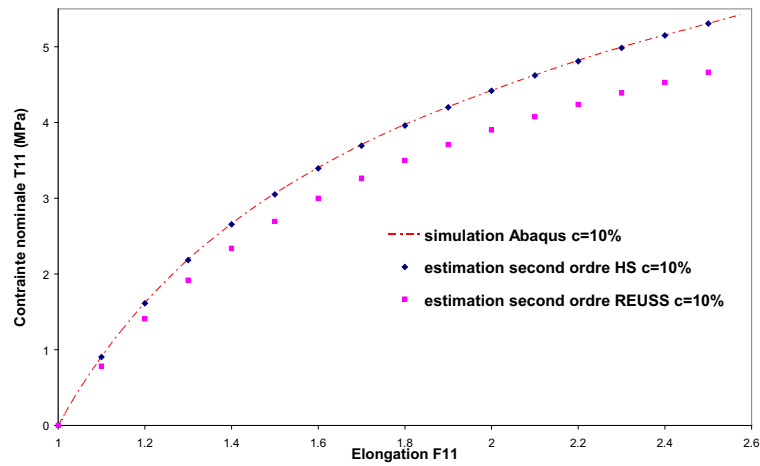
Annexe E

Compléments du chapitre 3 : Comparaison EF/modèle pour le cas des inclusions rigides

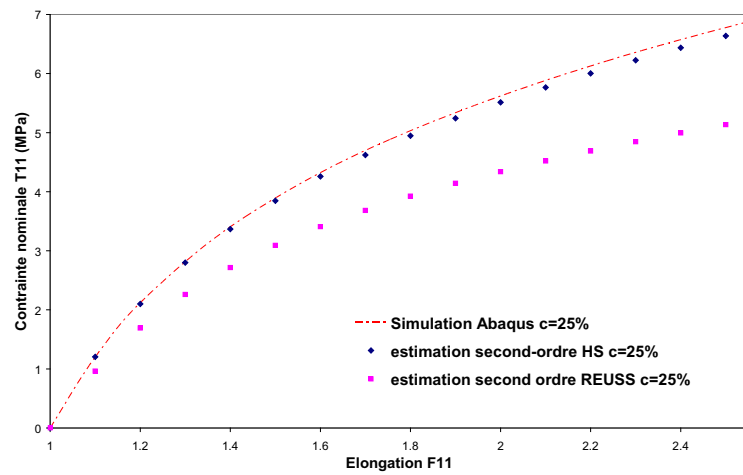
E.1 Chargements de traction uniaxiale

Dans ce paragraphe, les prédictions des contraintes macroscopiques sont comparées aux solutions de référence EF correspondantes sur les figures E.1(a) et E.1(b) dans le cas où les renforts sont sphériques mais, cette fois, rigides indéformables. On observe encore que un très bon accord entre les prédictions du modèle d'Hashin-Shtrikman couplé à la méthode du second ordre et les solutions EF, et ceci même si le contraste entre les 2 phases est infini.

En effet, la plus grande erreur en contraintes est de moins de 2% (erreur = $(\bar{\mathbf{T}}^{ESO} - \bar{\mathbf{T}}^{MEF})/\bar{\mathbf{T}}^{MEF}$). Cette erreur augmente avec la fraction volumique de particules et l'élongation maximale, ceci est lié, comme précédemment pour le cas des particules déformables, au fait que le modèle d'homogénéisation sous-estime les contraintes moyennes dans les inclusions (voir figures E.2(a), E.2(b)). Ainsi, les mêmes observations que pour les particules sphériques déformables peuvent être faites avec un écart un peu plus prononcé entre les réponses par phases du modèle et éléments finis des inclusions mais ceci n'affecte toujours pas fortement le comportement global du matériau.

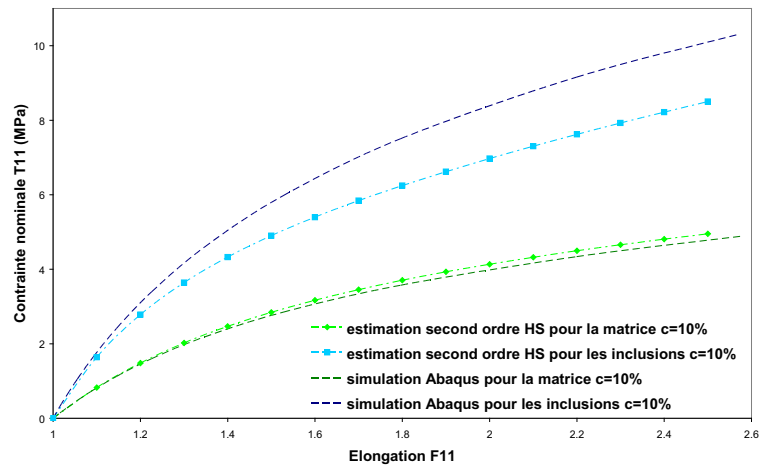


(a) fraction volumique de particules de 10%

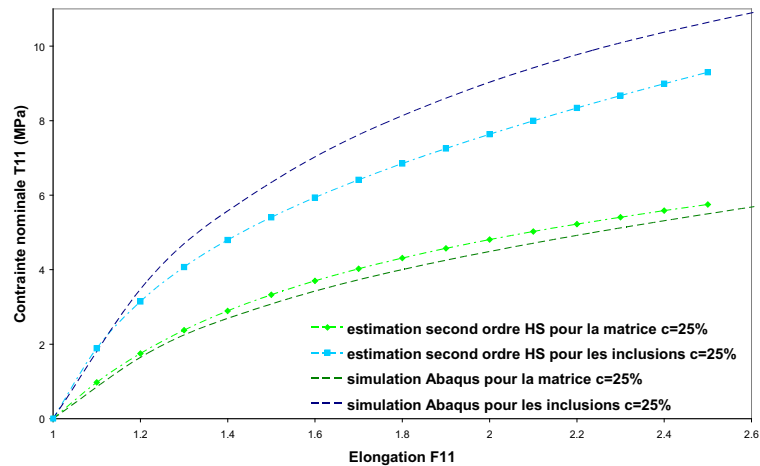


(b) fraction volumique de particules de 25%

FIG. E.1 - Prédications de la contrainte nominale T_{11} par les modèles d'Hashin-Shtrikman et Reuss en **traction uniaxiale** comparées aux réponses numériques pour le composite contenant des particules sphériques **rigides**



(a) fraction volumique de particules de 10%

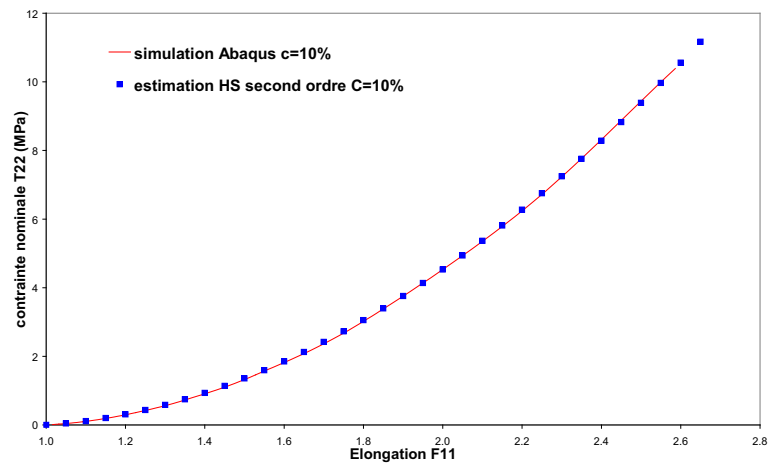


(b) fraction volumique de particules de 25%

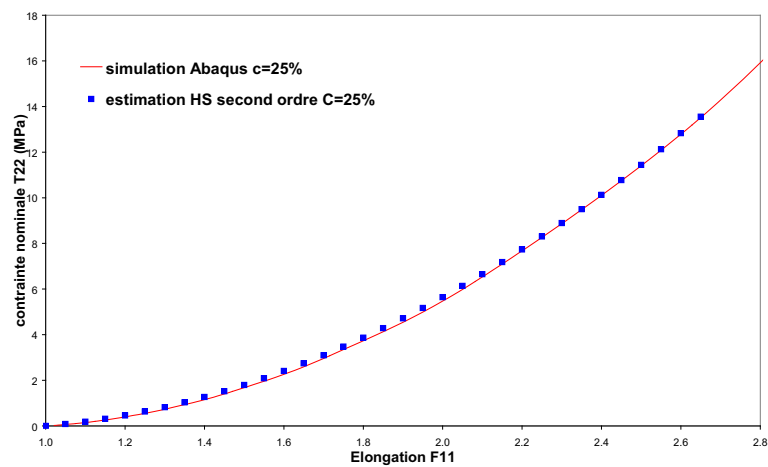
FIG. E.2 - Prédiction en **traction uniaxiale** des contraintes moyennes par phase du modèle d'Hashin-Shtrikman comparées aux réponses numériques pour le composite contenant des particules sphériques **rigides**

E.2 Chargements d'extension

Les prédictions des contraintes macroscopiques sont comparées aux solutions de référence éléments finis correspondantes sur les figures E.3 et E.4 pour le chargement d'extension simple. On observe donc toujours un très bon pouvoir prédictif du modèle d'homogénéisation pour le chargement d'extension simple. Une autre vérification consiste toujours à comparer les réponses par phase du modèle d'homogénéisation et des calculs éléments finis. Ces comparaisons sont fournies sur la figure E.5 et les mêmes conclusions peuvent être tirées c'est-à-dire toujours un bon accord pour la matrice et un écart entre les prédictions pour les inclusions.

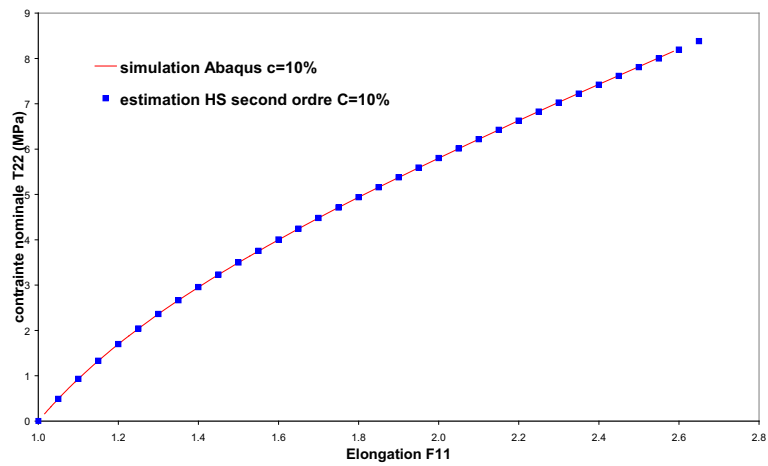


(a) fraction volumique de particules de 10%

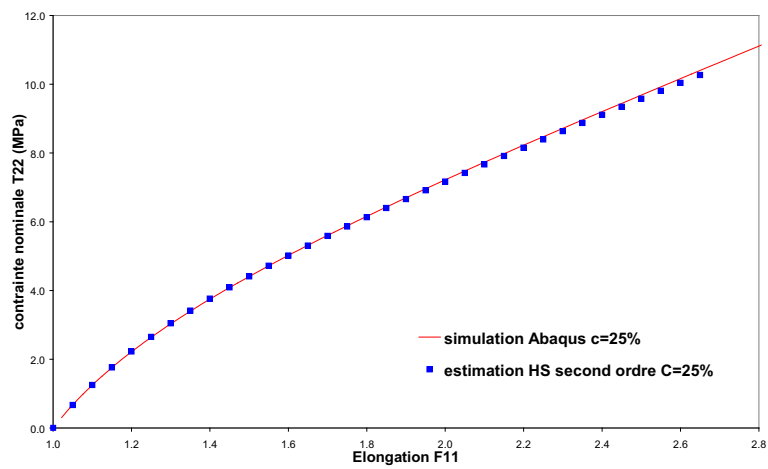


(b) fraction volumique de particules de 25%

FIG. E.3 - Prédiction de la contrainte nominale T_{11} par le modèle d'Hashin-Shtrikman comparées en **extension simple** aux réponses numériques pour le composite contenant des particules sphériques **rigides**

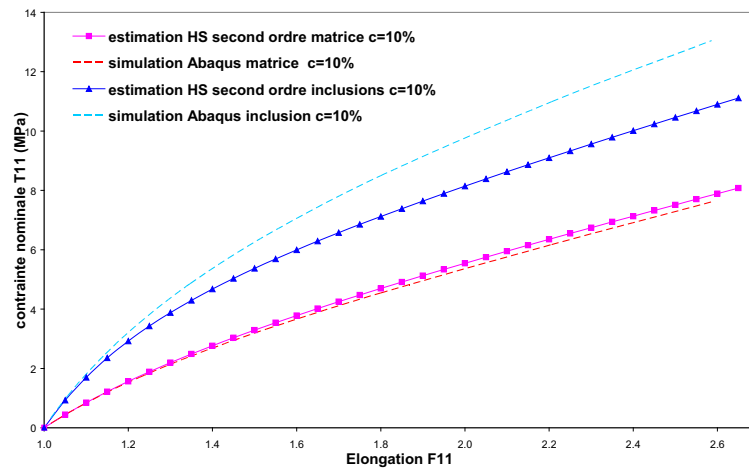


(a) fraction volumique de particules de 10%

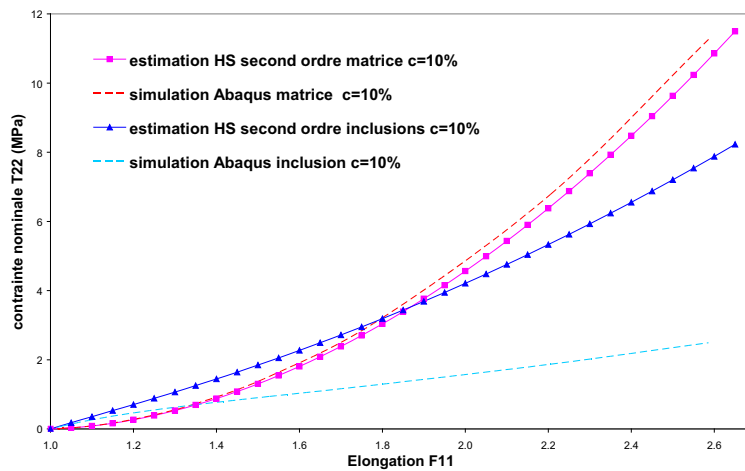


(b) fraction volumique de particules de 25%

FIG. E.4 - Prédications de la contrainte nominale T_{22} par le modèle d'Hashin-Shtrikman comparées en **extension simple** aux réponses numériques pour le composite contenant des particules sphériques **rigides**



(a) Constrained nominal stress T11



(b) Constrained nominal stress T22

FIG. E.5 - Prédiction en *extension simple* des contraintes moyennes par phase du modèle d'Hashin-Shtrikman comparées aux réponses numériques pour le composite contenant 10% de particules sphériques **rigides**

Annexe F

Compléments du chapitre 4 : Matrice jacobienne pour l'implémentation d'une loi de comportement hyperélastique dans Abaqus

La matrice jacobienne, \mathbb{C} , est définie par la variation des contraintes de Kirchhoff :

$$\delta(J\boldsymbol{\sigma}) = J\mathbb{C}.\delta\mathbf{D} \quad (\text{F.1})$$

où $\delta\mathbf{D}$ est le taux virtuel de déformation, défini comme la partie symétrique de $\delta\mathbf{F}.\mathbf{F}^{-1}$.

L'expression des contraintes de Cauchy obtenue en utilisant la densité de Lambert-Diani et Rey (IV.6) est la suivante :

$$\boldsymbol{\sigma} = \frac{2}{J} \left[e^{(\alpha_0 + \alpha_1(I_1 - 3) + \alpha_2(I_1 - 3)^2)} + \beta_1 I_2^{\beta_2} I_1 \right] \mathbf{B} - \frac{2}{J} \beta_1 I_2^{\beta_2} \mathbf{B}.\mathbf{B} \quad (\text{F.2})$$

où $\mathbf{B} = \mathbf{F}\mathbf{F}^t$ est le tenseur de déformation de Cauchy-Green gauche.

ainsi, l'expression de la variation de $J\boldsymbol{\sigma}$ est :

$$\begin{aligned} \delta(J\boldsymbol{\sigma}) = & 2 \left[e^{(\alpha_0 + \alpha_1(I_1 - 3) + \alpha_2(I_1 - 3)^2)} + \beta_1 I_2^{\beta_2} I_1 \right] \delta\mathbf{B} + \\ & \mathbf{B} \left[e^{(\alpha_0 + \alpha_1(I_1 - 3) + \alpha_2(I_1 - 3)^2)} (\alpha_1 + 2\alpha_2(I_1 - 3)) \delta I_1 + \beta_1 I_2^{\beta_2} \delta I_1 + \beta_1 \beta_2 I_2^{\beta_2 - 1} I_1 \delta I_2 \right] \\ & - 2\beta_1 \beta_2 I_2^{\beta_2 - 1} \delta I_2 \mathbf{B}.\mathbf{B} - 4\beta_1 I_2^{\beta_2} \delta\mathbf{B}.\mathbf{B} \end{aligned} \quad (\text{F.3})$$

Il faut donc déterminer les variations de I_1 , I_2 et de \mathbf{B} en fonction de $\delta\mathbf{D}$. Pour cela, nous nous appuyons sur le manuel du logiciel Abaqus [1] qui permet de déterminer les variations de

$\bar{I}_1 = J^{-2/3}I_1$, $\bar{I}_2 = J^{-4/3}I_2$ et $\bar{\mathbf{B}} = J^{-2/3}\mathbf{B}$ suivantes :

$$\begin{aligned}
 \delta\bar{\mathbf{B}} &= \frac{1}{2} \left(\delta_{iq}\bar{\mathbf{B}}_{ip} + \delta_{ip}\bar{\mathbf{B}}_{jq} + \delta_{jq}\bar{\mathbf{B}}_{ip} + \delta_{jp}\bar{\mathbf{B}}_{iq} - \frac{4}{3}\delta_{pq}\bar{\mathbf{B}}_{ij} \right) \delta\mathbf{D}_{pq} \\
 \delta\bar{I}_1 &= 2 \left(\bar{\mathbf{B}}_{pq} - \frac{\bar{I}_1}{3}\delta_{pq} \right) \delta\mathbf{D}_{pq} \\
 \delta\bar{I}_2 &= 2 \left(\bar{I}_1\bar{\mathbf{B}}_{pq} - \frac{\bar{I}_1^2}{3}\delta_{pq} - \bar{\mathbf{B}}_{pm}\bar{\mathbf{B}}_{mq} + \frac{1}{3}tr(\bar{\mathbf{B}}.\bar{\mathbf{B}})\delta_{pq} \right) \delta\mathbf{D}_{pq}
 \end{aligned} \tag{F.4}$$

On peut ainsi calculer les variations de I_1 , I_2 et de \mathbf{B} à partir de celles de \bar{I}_1 , \bar{I}_2 et $\bar{\mathbf{B}}$:

$$\begin{aligned}
 \delta\mathbf{B} &= \frac{2}{3}(J^{-1/3}\delta J)\bar{\mathbf{B}} + J^{2/3}\delta\bar{\mathbf{B}} \\
 \delta I_1 &= \frac{2}{3}(J^{-1/3}\delta J)\bar{I}_1 + J^{2/3}\delta\bar{I}_1 \\
 \delta I_2 &= \frac{2}{3}(J^{1/3}\delta J)\bar{I}_2 + J^{4/3}\delta\bar{I}_2 \\
 \text{avec } \delta J &= J \operatorname{tr}(\delta\mathbf{D}) = J(\mathbf{I} : \delta\mathbf{D})
 \end{aligned} \tag{F.5}$$

en remplaçant les expressions de $\delta\bar{\mathbf{B}}$, $\bar{\mathbf{B}}$, $\delta\bar{I}_1$, \bar{I}_1 et $\delta\bar{I}_2$, \bar{I}_2 et en identifiant par rapport à la définition de \mathbb{C} (F.1), on obtient l'expression de la matrice jacobienne.

**ÉTUDE EXPÉRIMENTALE ET MODÉLISATION MICROMÉCANIQUE DU COMPORTEMENT
ET DE L'ENDOMMAGEMENT DES ÉLASTOMÈRES RENFORCÉS**

Les élastomères renforcés ou plus généralement les composites à matrice élastomérique sont largement utilisés dans divers domaines industriels. La maîtrise du comportement de cette classe de matériaux repose sur une bonne compréhension des mécanismes de déformations en jeu ainsi que des relations microstructure-comportement mécanique macroscopique. De plus, il est nécessaire de développer des modélisations adéquates du comportement qui traduisent le lien avec la microstructure hétérogène. Un moyen efficace de répondre à cette demande est de mettre en oeuvre des méthodes d'homogénéisation non linéaire permettant la détermination des réponses macroscopiques des composites hyperélastiques soumis à de grandes déformations. L'objectif de ce travail de thèse est de prédire le comportement non linéaire et l'endommagement des composites hyperélastiques à microstructure aléatoire. On présente d'abord l'approche d'homogénéisation du second ordre retenue pour cette étude et on décrit les algorithmes développés pour mise en oeuvre de cette approche dans un contexte 3D. Afin de fournir une évaluation rigoureuse de la méthode d'homogénéisation non linéaire et de sa mise en oeuvre, on procède à des comparaisons de ses prédictions, d'abord avec des simulations éléments finis puis avec des données d'expériences réalisées sur un composite EPDM/PP dans le cadre de la thèse. Cette dernière confrontation a motivé la nécessité d'incorporer des mécanismes d'endommagement dans la loi de comportement micro-macro proposée. Une validation du modèle complet permet d'en illustrer les capacités prédictives pour l'EPDM/PP.

**EXPERIMENTAL STUDY AND MICROMECHANICAL MODELING OF THE BEHAVIOR AND
DAMAGE OF REINFORCED ELASTOMERS**

Reinforced elastomers or more generally composites with elastomeric matrix are widely used in various industrial fields. The development of this class of materials requires an understanding of the deformation mechanisms involved in the mechanical behavior and of the relations between microstructure and macroscopic properties. Moreover, appropriate models which incorporate such deformation mechanisms are also required. The objective of the thesis is to provide a tool for predicting the nonlinear behavior and damage of hyperelastic composites. We first present the second order homogenization method retained for the study. Then, we describe the algorithms and the computation techniques used for the 3D implementation of the method. In order to provide a rigorous evaluation of the homogenization technique and its implementation, the model predictions are compared first to Finite Element simulations and then to experimental data from tests performed on an EPDM/PP composite during this thesis. This last comparison reveals the necessity to incorporate damage mechanisms in the proposed model. A validation on the EPDM/PP allows illustrating the predictive capabilities of the complete model.