HAL
open science

Modélisation du comportement viscoélastique d'un élastomère fortement chargé sous sollicitations multiaxiales

Dimitri Jalocha

To cite this version:

Dimitri Jalocha. Modélisation du comportement viscoélastique d'un élastomère fortement chargé sous sollicitations multiaxiales. Mécanique [physics.med-ph]. Ecole Doctorale de l'Ecole Polytechnique, 2015. Français. NNT : . tel-01219041

HAL Id: tel-01219041

https://pastel.hal.science/tel-01219041v1

Submitted on 21 Oct 2015

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

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

Thèse présentée pour l'obtention du titre de

DOCTEUR DE L'ÉCOLE POLYTECHNIQUE

Spécialité : Mécanique

par

DIMITRI JALOCHA

Sujet de thèse

Modélisation du comportement viscoélastique d'un élastomère fortement chargé sous sollicitations multiaxiales

Soutenue le 8 Septembre 2015 devant le jury composé de :

Alexander LION	Institut de Mécanique, Munich	*Président du jury*
Julie DIANI	ENSAM, Paris	*Examinatrice*
Nicolas TRIANTAFYLLIDIS	Ecole Polytechnique, Palaiseau	*Examinateur*
Yann MARCO	ENSTA, Bretagne	*Rapporteur*
Erwan VERRON	Ecole Centrale, Nantes	*Rapporteur*
Andrei CONSTANTINESCU	Ecole Polytechnique, Palaiseau	*Directeur de thèse*
Robert NEVIERE	HERAKLES, Vert le Petit	*Invité*
Eric LAFONTAINE	DGA, Bagneux	*Invité*

"Des chercheurs qui cherchent, on en trouve.
Des chercheurs qui trouvent, on en cherche"
Charles De Gaulle

A Mathilde, ma famille et mes amis

Ce travail, financé conjointement par Safran Herakles et la Direction Générale de l'Armement, a été réalisé au Laboratoire de Mécanique des Solides de l'Ecole Polytechnique et au Centre de Recherche du Bouchet (Herakles), sous la direction d'Andrei Constantinescu et le regard attentif de Robert Nevière.

Je veux tout d'abord remercier Andrei, sans qui tout cela n'aurait jamais eu lieu. J'étais loin de me douter, la première fois que j'ai suivi son cours, que l'aventure ne faisait que commencer. Je le remercie pour la proposition de thèse, pour avoir cru en moi, pour avoir pris le temps de me former, et surtout pour son incontestable patience et calme. Merci pour les discussions fructueuses que nous avons eu quasi tous mes jours de présence au LMS.

Ensuite, je veux remercier Robert pour son aide très précieuse, ses conseils toujours utiles et nos conversations très enrichissantes. Je n'oublierai pas les heures (pas assez nombreuses peut être) passées ensemble dans l'atelier à bricoler chacun son montage. Merci d'avoir pris le temps de m'expliquer et de me montrer les enjeux de la propulsion solide dans les moindres détails pendant nos pauses café, et ce toujours dans la bonne humeur. Je garderai un très bon souvenir des moments passés au 1556, la citation de De Gaulle affichée, avec l'envie de lui donner tort.

Merci à Antoine, pour m'avoir suivi tout au long de ce projet, pour nos discussions techniques, merci d'avoir pris le temps de corriger à la fois le manuscrit et les planches de présentation, ainsi que de m'avoir soutenu.

Je remercie tous les membres du jury. Je remercie le président, qui m'a honoré de sa présence, d'avoir accepté cette tâche, les rapporteurs pour leurs remarques précises, les examinateurs pour leurs questions pertinentes et les invités pour l'intérêt qu'ils ont portés à mes travaux. Je n'oublie pas de remercier ceux que j'ai croisé en tant que collègue au fur et à mesure de ces trois ans. Je veux parler, entre autre, de mes compagnons d'Herakles, avec qui j'ai partagé repas, fou rire et bons moments. J'espère vous recroiser tous lors des manifestations sportives. Mais je sous entends aussi mes amis thésards du LMS, avec qui ces trois ans furent bien rythmées entre café, traditionnel foot du mercredi midi, raclette, sorties, etc... Il est certain que leurs réflexions sur la couleur de mes vêtements ou bien la tête de mon plateau repas vont me manquer.

Je remercie également Patrick Le Tallec pour son accueil au sein du LMS, toute l'équipe du secrétariat pour leur gentillesse et leur réponses efficaces à chaque fois que j'en ai eu besoin. Je remercie Hervé Graindorge de m'avoir ouvert les portes du CRB et d'avoir permis le financement de mes montages.

Je veux dire un grand merci naturellement à ma famille et mes amis pour leur soutien et les sorties en leur compagnie qui me permettaient de me changer les idées. Merci à tous ceux qui sont venus à ma soutenance. Ce fut un jour important pour moi et j'étais heureux de partager ce moment avec tout le monde. Et je veux évidemment remercier Mathilde, qui m'a accompagné tout au long de cette histoire, qui m'a soutenu sans parfois sans rendre compte, qui a rendu ma vie joviale et épanouie, et qui continu de le faire.

Notations

Scalaires

t, τ	temps
ω	fréquence angulaire
f	fréquence
λ	déformation
γ	glissement
ε	déformation linéarisée
$\varepsilon_D, \varepsilon_S$	partie dynamique et statique de la déformation linéarisée
ε_d	amplitude dynamique de déformation
ε_s	amplitude statique de déformation
ε_s^m	invariant de la déformation statique
ε_0	marche de déformation
P	contrainte de Piola-Kirchhoff
σ	contrainte de Cauchy
σ_d	amplitude dynamique de contrainte
σ_s	amplitude statique de contrainte
$E(t)$	module de relaxation
$E^*(\omega)$	module dynamique
H	spectre des temps de relaxation
$\mathcal{L}$	transformée de Laplace
$\mathcal{F}$	transformée de Fourier
η	viscosité
δ	déphasage temporel
T	température
a_T	facteur de translation
τ_i	temps de relaxation discret
E_i	module discret
η_i	viscosité discrète
K	module de compressibilité
c	fraction volumique de charge
E	module élastique initial de traction
μ	module élastique initial de cisaillement
d_{ij}	distance entre deux charges
ψ, W	énergie de déformation
ϕ^i	potentiel de dissipation

Vecteurs

$\underline{e}$	vecteur des déformations macroscopiques
$\underline{\Sigma}$	vecteur des contraintes macroscopiques

Tenseurs du second ordre

$\boldsymbol{F}$	gradient des déformations
$\boldsymbol{\varepsilon}$	tenseur des déformations linéarisées
$\boldsymbol{\varepsilon_v}$	partie volumique du tenseur des déformations linéarisées
$\boldsymbol{\varepsilon_{dev}}$	partie déviatorique du tenseur des déformations linéarisées
$\boldsymbol{P}$	tenseur des contrainte de Piola-Kirchhoff
$\boldsymbol{\sigma}$	tenseur des contrainte de Cauchy
L_σ	fonction de transfert des contraintes
L_ε	fonction de transfert des déformations
$\boldsymbol{\alpha^i}$	variable interne (déformation)
$\boldsymbol{q^i}$	variable interne (contrainte)
$\boldsymbol{\varepsilon_D}$	tenseur de la déformation dynamique
$\boldsymbol{\varepsilon_S}$	tenseur de la déformation statique

Table des Matières

Introduction **1**

1 Élastomère fortement chargé **7**
1.1 Contexte 9
1.2 Propriétés viscoélastiques des élastomères 17
1.3 Étude préliminaire du comportement du propergol 30

2 Microstructure **39**
2.1 Microstructures et comportements mécaniques 41
2.2 Simulations et analyses 47

3 Caractérisation viscoélastique **65**
3.1 Caractérisation viscoélastique uni-axiale 67
3.2 Caractérisation viscoélastique bi-axiale 87

4 Modélisation du comportement viscoélastique **105**
4.1 Modélisation continue 106
4.2 Modèle de comportement 118

5 Réponse dynamique d'un moteur à propulsion solide **131**
5.1 Démarche 133
5.2 Simulations et analyse 137

Conclusion **145**

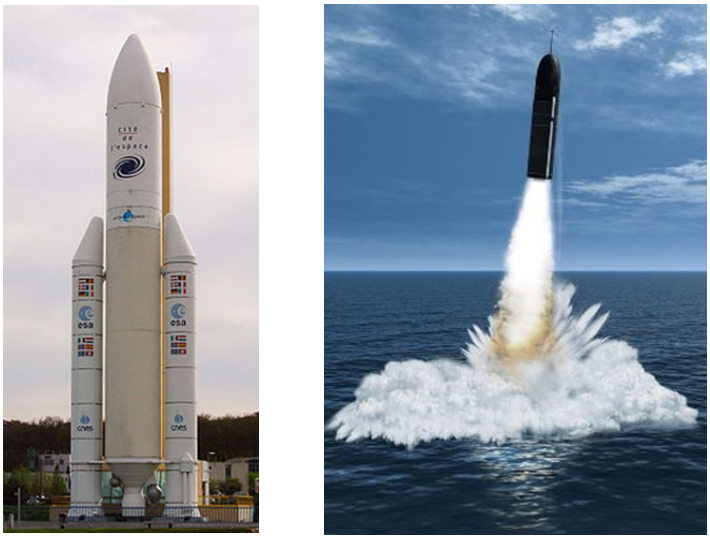
Annexes **163**

Introduction

Cette étude a été réalisée en collaboration avec le Laboratoire de Mécanique des Solides de l'école Polytechnique, SAFRAN HERAKLES et la Direction Générale de l'Armement (DGA). L'objectif était de caractériser et modéliser le comportement viscoélastique du propergol.

L'ajout de charges dans les élastomères est une solution technologique largement retenue, quel que soit le domaine d'application [Fukahori, 2007]. On retiendra principalement l'industrie du pneu qui utilise cette méthode pour améliorer les propriétés mécaniques et les performances de ces derniers, avec une fraction volumique de renforts qui avoisine les 30%. Classé parmi la famille des élastomères très fortement chargés, le propergol solide présente un taux de charge nettement supérieur, de l'ordre de 70% et est utilisé dans les moteurs à propulsion solide. Les charges n'ont pas pour but ici de renforcer les propriétés mécaniques, leur fonction première est énergétique: elles doivent libérer une forte énergie, sous forme de dégagement gazeux, qui sera transformée en moyen de propulsion. L'élastomère joue ici un rôle de liant pour les charges. Les exemples d'applications de ces moteurs sont, dans le domaine civil, les boosters latéraux de la fusée Ariane (voir Figure 1(a)), et dans le domaine militaire, le moteur de missiles balistiques (voir Figure 1(b)).

Le principe des moteurs à propergols solides repose sur le concept des fusées chinoises du 13e siècle. Une enveloppe cylindrique était remplie de poudre explosive, principalement de poudre à canon, comme rappelé dans [Rival, 2005]. Lorsque le feu était mis à cette dernière par l'intermédiaire d'une mèche, l'explosion engendrée permettait de propulser la fusée. Puis, au fur et à mesure, pour des raisons de rendement et de manipulation, un liant fut utilisé pour maintenir ensemble les grains de poudre



(a) (b)

Figure 1: Exemple d'utilisation d'un moteur à propulsion solide: (a) les boosters latéraux de la fusée Ariane et (b) le moteur d'un missile balistique.

et passer ainsi d'un chargement à aspect granulaire à un aspect solide. Le matériau énergétique obtenu est désigné par l'appellation de propergol solide depuis le 19e siècle. A l'heure actuelle, les charges désignent la poudre utilisée, et la matrice désigne le liant élastomère.

Même si les propriétés mécaniques ne sont pas l'objectif principal du propergol, elles restent cependant un enjeu majeur pour la garantie de la tenue d'un moteur à propulsion solide. Le propergol doit être suffisamment robuste pour faire face au cycle de vie du moteur avant d'être tiré et doit résister aux sollicitations lors de la mise en marche de ce dernier.

De nombreuses études passées se sont intéressées au comportement mécanique du propergol. Malgré son fort taux de charges, le comportement global du composite reste viscoélastique [Ozupek, 1989]. De nombreuses non linéarités sont mises en évidence dans les propriétés mécaniques des élastomères fortement chargés. Sous sollicitation quasi-statique, l'effet Mullins [Mullins, 1969] est observé. En régime dynamique, une dépendance du comportement à l'amplitude dynamique de la sollicitation apparait, appelée effet Payne [Payne, 1962]. Des études plus récentes mettent également à jour l'incidence de la partie statique d'une déformation sur les propriétés visqueuses des élastomères chargés [Wollscheid, 2014]. Dans ce sens, les résultats obtenus dans la thèse d'Azoug [Azoug, 2010] semblent en effet indiquer que cette déformation statique

joue un rôle important sur les propriétés mécaniques du propergol. Cependant, aucune étude n'a permis de caractériser de manière complète l'impact de ce paramètre pour le propergol.

L'objectif de ces travaux est de modéliser l'influence de la déformation statique sur le comportement viscoélastique du propergol solide. La démarche scientifique retenue est présentée ici en cinq chapitres, décrite de manière schématique en Figure 2. Le premier chapitre permet de situer le contexte de l'étude. Il définit plus précisément le propergol, le procédé de fabrication ainsi que les enjeux liés à ses propriétés mécaniques. Il est rappelé par la suite les notions de base de la viscoélasticité, appliquée aux polymères. Pour clore ce premier chapitre, une étude préliminaire montre succinctement le comportement mécanique du propergol.

Le deuxième chapitre se concentre sur l'aspect microstructural du composite. Il est possible, mais lourd en moyen, d'observer les phénomènes microscopiques qui interviennent à l'échelle de la microstructure lors d'une sollicitation mécanique. L'objectif est de simplifier le problème en une analyse numérique de ces effets. Des composites seront générés numériquement avec un taux de charge variable. Le comportement microscopique de chacun des constituants est analysé lorsque les microstructures sont soumises à de la traction et du glissement.

Le troisième chapitre s'intéresse à la caractérisation du comportement viscoélastique du propergol en fonction de la déformation statique. Des essais classiques uni-axiaux de relaxation et dynamique (DMA) superposés à une déformation statique sont réalisés. Les résultats obtenus dans le domaine temporel et fréquentiel sont comparés. En vue de déterminer l'impact d'un état de déformation multi-axial, une machine de sollicitation dynamique bi-axiale est développée. Des essais de DMA bi-axiaux superposés à un état de déformation statique bi-axial sont menés, et mettent en évidence la dépendance des propriétés visqueuses à l'invariant de l'état de déformation statique.

Dans le quatrième chapitre, le comportement viscoélastique est modélisé en deux temps. Tout d'abord la partie linéaire est identifiée grâce à un spectre continu des temps de relaxation, puis l'effet non linéaire induit par la déformation statique est pris en compte. Ce modèle continu est ensuite discrétisé en une série de Prony, classiquement schématisé par un modèle de Maxwell généralisé, qui porte la particularité ici

d'être à viscosité variable. La loi de comportement obtenue est implémentée dans un code éléments finis.

Le dernier chapitre est une application réelle du modèle viscoélastique non linéaire identifié. Un moteur à propulsion solide subit, lors de son cycle de vie, des chargements mécaniques qui lui confèrent un état de déformation résiduel. Il est calculé ici, de manière numérique, la réponse d'un moteur sous sollicitation dynamique après son cycle de vie, juste avant d'être tiré. Le comportement du propergol est simulé par le modèle viscoélastique qui rend compte des modifications des propriétés visqueuses induites par l'état de déformation statique développé dans les chapitres précédents. Le résultat obtenu est comparé avec la réponse du moteur pour un modèle de comportement du propergol viscoélastique linéaire (i.e. qui ne prend pas en compte l'influence de la déformation statique).

Pour finir, la conclusion expose l'avancée dans la caractérisation et la modélisation que cette étude apporte, dans le domaine des élastomères chargés. L'originalité et l'innovation des résultats sont soulignées. Des perspectives à ces travaux sont apportées. En annexe sont donnés les plans complets de la machine bi-axiale réalisée, la validation de la relation de passage empirique ainsi que l'étude paramétrique justifiant la forme de l'éprouvette bi-axiale retenue.

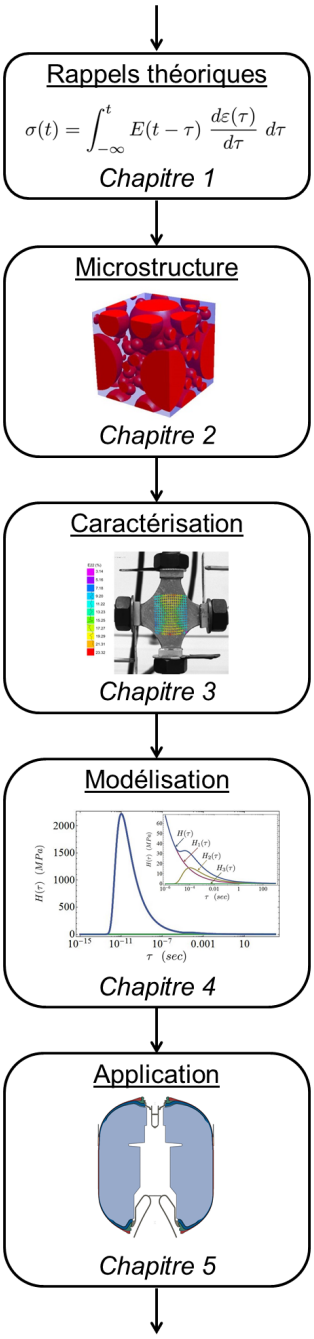


Figure 2: Schématisation de la démarche scientifique adoptée pour modéliser le comportement viscoélastique non linéaire du propergol.

Chapitre 1

Élastomère fortement chargé

Les polymères sont des matériaux qui se sont répandus dans à peu près tous les secteurs de l'industrie en exploitant le large éventail de leurs propriétés. On peut les diviser en quatre familles. Cette étude se concentre sur celle des élastomères, et plus spécifiquement encore, des élastomères chargés qui forment une classe de comportement mécanique particulière. Les élastomères sont utilisés pour leur comportement mécanique qui associe à la fois souplesse et résistance. Ils sont rarement mis en oeuvre sans être additionnés de charges (généralement cristallines) dont l'introduction peut avoir différents objectifs. Suivant le cas d'application, ces charges peuvent apporter un renfort au comportement donnant globalement une meilleure résistance aux sollicitations mécaniques, ou peuvent également améliorer les propriétés thermiques, etc... Dans le secteur d'activité des lanceurs spatiaux, les propergols solides appartiennent à cette classe de matériaux et forment des pièces structurales un peu particulières que l'on appelle CHARGEMENTS. Dans la constitution de ces matériaux, ce sont les charges cristallines qui jouent le rôle principal, à l'origine de la propulsion générée par le lanceur. L'élastomère n'est introduit que pour permettre de produire l'architecture du chargement. C'est cependant ce dernier constituant minoritaire qui contrôle au premier ordre le comportement mécanique. La défaillance du chargement entraînerait la perte de la fonction principale propulsive du lanceur. Dans ce contexte, la maîtrise du comportement mécanique des propergols solides composites est un enjeu crucial. C'est pourquoi l'objectif de ces travaux est de modéliser le comportement viscoélastique de ces élastomères très fortement chargés. Ce premier chapitre a pour but de rappeler au préalable les notions de la mécanique des élastomères chargés qui seront utilisées

par la suite. Les lois de comportement viscoélastiques standards sont développées et le lien avec le comportement physique à l'échelle de la molécule est établi. Après le rappel de ces généralités, une étude préliminaire du comportement mécanique du propergol est réalisée, en vue d'introduire la nécessite de développer une nouvelle loi de comportement tenant compte de la déformation statique.

1.1 Contexte

1.1.1 Généralité sur les polymères

Un polymère est une succession de molécules élémentaires, les monomères, que l'on fait réagir entre elles pour former des chaînes longues et flexibles, les macromolécules [Halary et al., 2011], schématisées en Figure 1.1. Suivant le fait que ces chaînes soient ou non liées entre elles, on obtient deux grandes familles, les polymères linéaires et les réseaux réticulés. Les polymères linéaires ne se trouvent à l'état solide qu'en dessous d'une température critique que l'on appelle "température de transition vitreuse". Au-delà de cette température ce sont des liquides. Cette famille regroupe les polymères amorphes les semi-cristallins. À l'inverse les polymères réticulés sont utilisés au-dessus de cette température critique. Cette famille regroupe les élastomères et les thermodurcissables. Le découpage des familles est décrit en Figure 1.2.

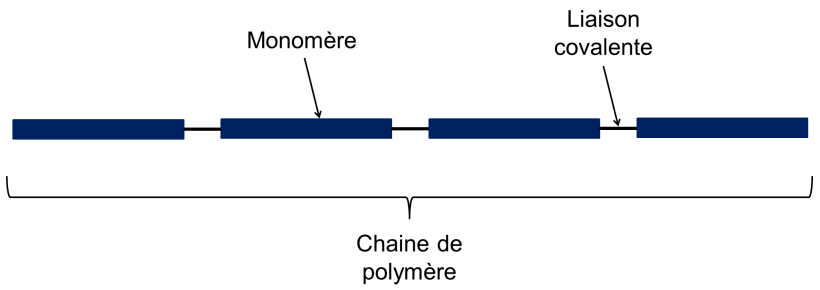


Figure 1.1: Schématisation d'une chaine de polymère: succession d'un motif de base, le monomère, relié par des liaisons covalentes

Un polymère amorphe présente une disposition aléatoire de ses chaines, il n'y a pas d'ordre. Les chaines s'enchevêtrent et permettent d'obtenir une structure solide. Le matériau le plus utilisé de cette famille de polymère recyclable est le poly méthacrylate de méthyle (PMMA). Les semi-cristallins sont des polymères amorphes dans lesquels des centres de nucléations se sont formés donnant naissance à des lamelles cristallines. Le pourcentage de cristallisation d'un polymère va dépendre de la nature et de la régularité de son monomère. L'enchevêtrement des chaines ainsi que les lamelles cristallines participent au caractère solide du polymère. Le plus connu d'entre eux est le polyéthylène.

Pour la famille des réticulés, ce n'est pas l'enchevêtrement des chaines qui donne la forme solide au polymère, mais les noeuds (ou ponts) de réticulations. Il s'agit de

liaisons chimiques obtenues par polymérisation. La structure des chaines forme un réseau tridimensionnel qui transmet les contraintes, même si les glissements entre les macromolécules produisent de grandes déformations. Parmi les polymères réticulés se trouvent les élastomères, avec une relative faible densité de réticulation, et les thermodurcissables qui eux présentent une forte densité de réticulation. Le caoutchouc naturel est un bon exemple d'élastomère et les résines sont qualifiées de thermodurcissables.

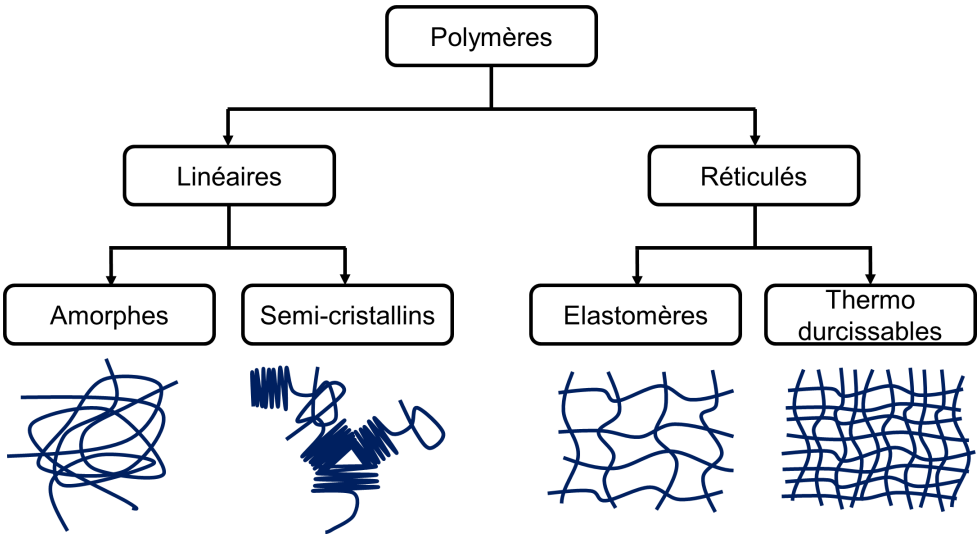


Figure 1.2: Déclinaisons des polymères organiques en deux familles et quatre sous familles, avec schématisation de la topologie des chaines.

Chaque type de polymère va présenter des caractéristiques mécaniques, énergétiques et thermiques différentes. Le choix d'un polymère dépend évidemment de ses propriétés en fonction de son application [Roylance, 2001], suivant principalement:

- sa compatibilité chimique (sécurité)
- son procédé de fabrication
- sa tenue au vieillissement
- sa capacité de collage
- etc...

L'étude menée ici se concentre sur la classe des élastomères. Les élastomères sont rarement utilisés en l'état dans les applications industrielles, mais des charges sont très souvent ajoutées [White and Crowder, 1974, Fukahori, 2007]. L'élastomère chargé passe alors dans une nouvelle classe de matériau: le composite. Une des applications les

plus communes pour ce type de composite est le pneu [Darmstadt et al., 1995, Donnet, 1993], avec un taux volumique de charge de l'ordre de 30%. Dans ce cas les charges, principalement du noir de carbone, ont une fonction de renfort pour l'élastomère en vue d'améliorer ses propriétés mécaniques. L'ajout de silice ou de carbone dans un élastomère va modifier ses propriétés de conduction thermique [Bryning et al., 2005], technique utilisée par exemple dans le domaine des protections thermiques. Le domaine de la propulsion solide utilise également les élastomères chargés, sous le nom de propergols solides [Williams et al., 1969]. L'élastomère joue ici le rôle de liant entre des charges qui présentent une caractéristique explosive.

1.1.2 Les propergols solides composites

Le propergol solide est un matériau énergétique utilisé dans les moteurs à propulsion solide. Il existe plusieurs familles de propergols solides mais les plus performants sont propergols solides composites dans lesquels des charges fortement énergétiques (dont l'enthalpie de formation élevée) sont introduites dans un liant élastomère [Summerfield, 1960]. Ce liant peut parfois lui-même participer au pouvoir énergétique du propergol dans certaines compositions (en utilisant des liants polyesters ou polyéther plastifiés par des dérivés de la nitroglycérine). Lors du fonctionnement du moteur (Figure 1.3), qui généralement se produit de façon anaérobie (en absence de l'oxygène de l'air) une réaction d'oxydoréduction est provoquée dans la chambre interne du moteur. La combustion du propergol génère alors un débit de gaz chauds qui se détendent au passage de la tuyère. La poussée est donc simplement le résultat de la deuxième loi de NEWTON qui exprime la conservation de la quantité de mouvement à chaque instant. Le rôle du chargement est donc de produire un débit massique de gaz important et celui de la tuyère est de transformer ce débit de façon à maximiser le produit de la masse par la vitesse des gaz éjectés. La vitesse du flux de gaz dans la chambre est limitée, mais la pression étant relativement élevée (environ 100bars), la tuyère a pour fonction de les détendre pour en augmenter la vitesse. Au bilan la troisième loi de NEWTON exprime que l'action produite par l'éjection des gaz est équilibrée par la vitesse du projectile qui les émet (selon le principe simple de l'action-réaction [Benenson et al., 2000]). Comme énoncé en introduction, il est rappelé ici que ce type de moteur est largement inspiré des fusées chinoises qui utilisaient l'explosion de la

poudre à canon pour s'envoler. Un moteur à propulsion solide suit le même principe, mais préfère utiliser la poudre sous forme solide que granulaire. Les charges explosives sont liées entre elles par un élastomère. Les charges n'ont donc pas la fonction de renfort pour l'élastomère, mais l'élastomère a une fonction de liant pour les charges.

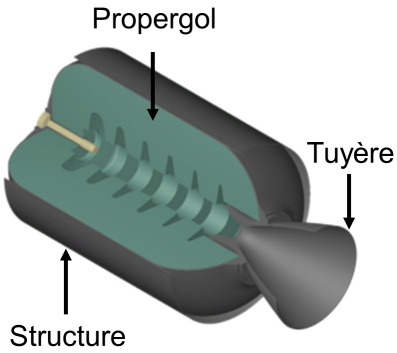


Figure 1.3: Modèle numérique d'un moteur à propulsion solide: une réaction d'oxydo-réduction produit des gazes dans une structure fermée, qui, une fois canalisés par une tuyère, permettent la propulsion du moteur.

La propulsion des lanceurs et missiles actuellement en service est aujourd'hui très largement couverte par les propergols solides composites, et plus particulièrement par des compositions à liant polybutadiène hydroxy-téléchilique (PBHT) dans lequel sont incorporées des charges de perchlorate d'ammonium et d'aluminium [Azoug, 2010]. Ces compositions sont commercialisées par la société HERAKLES sous l'appellation Butalane®, photographie en Figure 1.4. L'aluminium en proportion significative joue le rôle de réducteur et les charges de perchlorate assurent la part oxydante. Le taux de charges dépasse 80% en masse et 70% en volume, ce qui situe les propergols très au-delà des élastomères chargés plus conventionnels. Cette Butalane®, qui sert de support pour cette étude, est dite à matrice inerte, car elle ne participe pas à la réaction.

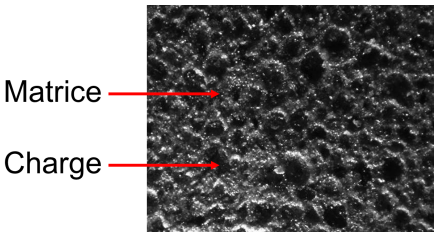


Figure 1.4: Photographie de la Butalane®: des charges d'aluminium et de perchlorate d'ammonium sont inclues dans une matrice élastomère.

Pour bien comprendre les enjeux liés au comportement mécanique des propergols, il est indispensable de rappeler le procédé de fabrication des engins autopropulsés. Tout le savoir faire des poudriers, consiste à introduire 70% de charges cristallines potentiellement explosibles dans une matrice polymère et à obtenir au final un mélange homogène dont la viscosité reste compatible d'une coulée par gravité dans la structure de l'objet à fabriquer. Décrit exhaustivement par Davenas [Davenas, 1989], ce procédé est schématiquement rappelé ici:

- Préparation de la matrice élastomère.
- Ajout des charges
- Mélange mécanique de l'ensemble dans un malaxeur (voir Figure 1.5).
- Coulée de l'ensemble matrice + charges dans la structure du moteur.
- Polymérisation de la matrice dans une étuve à 50^oC.
- Refroidissement de l'ensemble.
- Ajout de la tuyère sur la structure.

Figure 1.5: Phase de malaxage d'un chargement de propergol dans une cuve (d'après le site internet de SAFRAN HERAKLES)

Une attention particulière est apportée sur l'étape de polymérisation. Ce phénomène désigne la formation de noeuds de réticulations entre les chaines de l'élastomère. Pour conserver la plus grande souplesse possible au produit fini, les espèces qui réagissent pour former le réseau lors de la polymérisation sont en dessous de la stoechiométrie. Avec ce réglage, la densité de réticulation du liant reste faible et une quantité importante de polymère n'est pas liée au réseau tridimensionnel principal. Le propergol obtenu présente une matrice polyphasée: un réseau principal réticulé participe à la liaison des charges entres elles au travers duquel se trouvent des chaines de polymère libres, schématisé en Figure 1.6. Ces chaines libres ne participent pas à la fonction de liant. Les travaux précédents d'Azoug [Azoug, 2010] montrent que ces sous ensembles inachevées du réseau joue un rôle important dans le comportement mécanique macroscopique. Cette microstructure granulaire complexe se traduit à l'échelle macroscopique par un comportement visqueux dont la réponse n'est pas linéaire mais s'exprime par une sensibilité importante des propriétés mécaniques à la déformation appliquée.

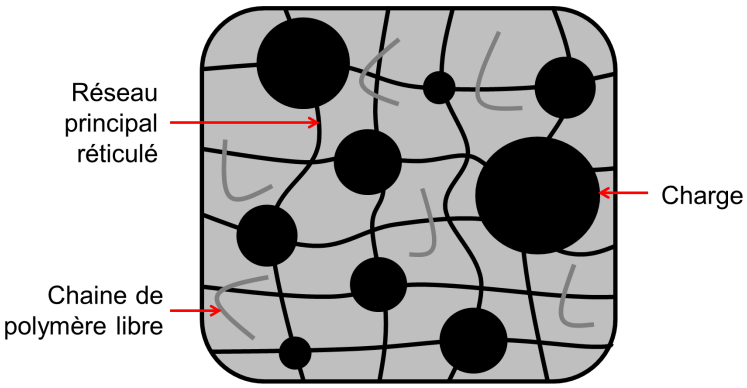


Figure 1.6: Schématisation de la microstructure du propergol: des charges inclues dans une matrice polyphasée sous réticulée. Un réseau principal participe à la liaison des charges entres elles au travers duquel se trouve des chaines de polymère libres.

1.1.3 Enjeux mécaniques

Les performances principales du propergol sont énergétiques [Davies, 1963]. Cependant, afin de garantir l'intégrité de la structure et le bon fonctionnement du moteur, les propriétés mécaniques du propergol restent un enjeu majeur [Azoug et al., 2014a,b,c, Donna et al., 1999]. Avant la phase de marche d'un moteur à propulsion solide, la structure subit de nombreuses sollicitations (fluage, vibrations, variations thermiques). Pendant la phase de marche, le propergol qui n'a pas encore brulé doit résister à de fortes pressions et à de hautes températures. Ainsi, avant d'utiliser les fonctions énergétiques, les propriétés mécaniques du propergol doivent s'exprimer.

Les évolutions actuelles veulent que la vérification et la validation de la tenue du moteur aux différentes phases de sa vie soient réalisées par simulations numériques. Quel que soit son objectif, la simulation nécessite d'être alimentée par des modèles de comportements. Un modèle de comportement est une relation entre la déformation et la contrainte engendrée, pour le matériau considéré. De nombreux calculs numériques ont déjà été réalisés sur les moteurs à propulsion solide. Suivant l'application recherchée, différentes lois de comportement sont intégrées pour modéliser les propriétés mécaniques du propergol. Une première approche consisterait à choisir une loi de comportement linéaire pour décrire le propergol [Merlette and Pagnacco, 2012]. Une validation du vieillissement de la structure préférera une loi de comportement pour le propergol tenant compte de l'endommagement [Deng et al., 2014]. Une analyse du moteur subissant de grandes perturbations utilisera une loi de comportement en grande transformation pour le propergol [Ozupek and Becker, 1992]. Dans toutes ces configurations, le calcul numérique n'est que l'étape finale d'un procédé de simulation qui se décline en plusieurs phases: analyse du matériau à l'échelle microscopique, caractérisation expérimentale du comportement mécanique du matériau (réalisées sur une éprouvette représentative), modélisation du comportement mécanique observé et enfin calcul numérique de la structure réelle.

Les travaux menés dans cette étude s'intègrent dans une problématique industrielle actuelle. En effet, la bonne connaissance de la réponse d'un moteur à propulsion solide en régime dynamique est un enjeu majeur. Cependant des écarts de comportement sont enregistrés entre prédiction numérique et mesure expérimentale, lorsque le moteur est soumis à des sollicitations de type vibration. En terme de fréquence propre, une différence de quelques hertz, mais malgré tout non négligeable, est observée entre mesure réelle et valeur calculée par modèle numérique. Afin de réduire cette

marge, de nombreux efforts sont apportés pour affiner les modèles de comportement des matériaux constituants le moteur. En s'inscrivant dans cette optique, cette thèse se concentre sur le comportement du propergol solide.

Le propergol est un matériau constitué de charges d'aluminium et de perchlorate d'ammonium (comportement élastique) collées entre elles par une matrice élastomère (comportement viscoélastique dans les gammes de températures considérées). Malgré le fort taux de charge, le comportement global du propergol reste viscoélastique, mais présente de nombreuses non linéarités [Ozupek, 1989]. Une vaste campagne expérimentale menée par Azoug [Azoug, 2010] a permis de mettre en évidence une non linéarité importante dans ce matériau: les propriétés viscoélastiques sont pilotées par la déformation appliquée. Les résultats de ces précédents travaux ont démontré que ce comportement est dû à la modification de la mobilité moléculaire de la fraction libre du polymère dont les mouvements se bloquent progressivement lorsque la déformation dans le réseau principal augmente.

Le processus de fabrication d'un moteur à propulsion solide (décrit plus haut) ainsi que ses phases de vie induisent dans le propergol une déformation résiduelle de ce dernier. Or les propriétés mécaniques du propergol dépendent de cette déformation. Ce changement de comportement peut avoir une influence sur les caractéristiques globales du moteur. Ces travaux ont donc pour ambition d'intégrer ce phénomène non linéaire dans les modèles numériques. Ils se placent dans la suite de la démarche de caractérisation du comportement engagée par Azoug [Azoug, 2010]. L'objectif est de caractériser expérimentalement et de manière complète l'influence de la déformation sur les propriétés viscoélastiques du matériau, de modéliser cet effet en s'appuyant sur les résultats physiques obtenus lors des études précédentes et enfin d'en évaluer l'impact sur la réponse d'un moteur à propergol solide soumis à un régime de sollicitation dynamique.

1.2 Propriétés viscoélastiques des élastomères

1.2.1 Relation de comportement

Un matériau viscoélastique se caractérise par un comportement mécanique qui dépend du temps, comme expliqué par Salençon [Salenon, 1983] et rappelé par Lakes [Lakes, 2009]. Lors d'un essai de traction par exemple, la réponse du matériau va dépendre de la vitesse de déformation (Figure 1.7). Deux approches de la viscoélasticité sont possibles: une approche dans le domaine temporel, et une approche dans le domaine fréquentiel [Markovitz and Hershel, 1977]. Les deux domaines sont équivalents, et l'on peut passer de l'un à l'autre en utilisant une transformée de Fourier ou une transformée de Fourier inverse [Bracewell, 1975]. Dès lors, l'essai de traction n'est plus l'expérimentation la plus appropriée pour décrire un matériau viscoélastique.

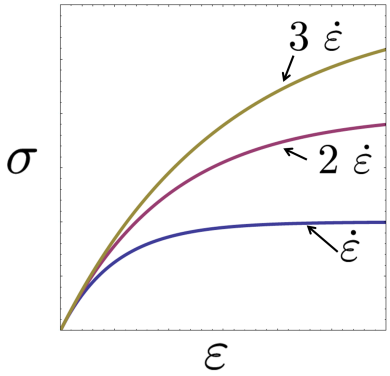


Figure 1.7: Schématisation de la courbe contrainte/déformation pour un matériau viscoélastique linéaire. La réponse dépend de la vitesse de déformation, ici $\dot{\varepsilon}, 2\ \dot{\varepsilon}, 3\ \dot{\varepsilon}$.

Dans le cas de viscoélasticité linéaire, comme décrit par Halphen et Nguyen [Halphen and Nguyen, 1975] et repris dans la dernière version de l'ouvrage de Knauss [Knauss et al., 2006], la relation de comportement entre contrainte et déformation s'écrit dans le domaine temporelle:

$$\sigma(t) = \int_{-\infty}^{t} E(t-\tau)\ \frac{d\varepsilon(\tau)}{d\tau}\ d\tau \tag{1.1}$$

avec $\varepsilon(t)$ la déformation, $\sigma(t)$ la contrainte et $E(t)$ le module de relaxation, tous fonction du temps.

Dans le domaine fréquentiel, la transformée de Fourier de l'équation (1.1) donne la relation de comportement suivante:

$$\sigma^*(\omega) = E^*(\omega)\ \varepsilon^*(\omega) \tag{1.2}$$

avec $\varepsilon^*(\omega)$ la déformation, $\sigma^*(\omega)$ la contrainte et $E^*(\omega)$ le module dynamique, tous étant des grandeurs complexes et dépendant de la fréquence de rotation ω.

Les modules de relaxation et dynamique s'expriment à partir d'une seule et même fonction: le spectre continu des temps de relaxation [Findley et al., 1976], noté $H(\tau)$. Il permet de calculer le module de relaxation par la relation suivante:

$$E(t) = E_\infty + \int_{-\infty}^{\infty} H(\tau)\ e^{-\frac{t}{\tau}}\ d\ \ln(\tau) \tag{1.3}$$

et le module dynamique par la relation suivante:

$$E^*(\omega) = E_\infty + \int_{-\infty}^{\infty} H(\tau)\ \frac{i\omega\tau}{1 + i\omega\tau}\ d\ \ln(\tau) \tag{1.4}$$

avec E_∞ la valeur du module de relaxation aux temps infinis, ou par équivalence, la valeur du module dynamique aux très basses fréquences.

1.2.2 Mobilité moléculaire

Le spectre des temps de relaxation a une signification physique. Pour les polymères, il renseigne sur la mobilité moléculaire des chaines constituant le matériau [Doi, 1974, Doi and Edwards, 1986, Edwards, 1985, Alves et al., 2005, Ward and Sweeney, 2000]. D'un point de vue microscopique, un polymère est un arrangement de molécules carbonatées. Exprimé en Pascal, le spectre des temps de relaxation peut être interprété comme la distribution (au sens statistique) de la mobilité moléculaire, exprimée en seconde, des molécules composant le polymère, et est directement relié à la viscosité globale η_g du polymère [Daviesa and Gouldinga, 2012] par:

$$\eta_g = \int_{-\infty}^{\infty} H(\tau)\ d\tau \tag{1.5}$$

La mobilité moléculaire des chaines d'un polymère s'exprime à différentes échelles [Azoug, 2010]. La première concerne la chaine de polymère à l'échelle atomique, où la mobilité se décline en plusieurs mouvements possibles (modèle de de Gennes [de Gennes, 1979]): vibration des molécules, flexion/torsion des chaines de molécules (voir Figure 1.8). La seconde se place à une échelle d'ensemble. Il s'agit de la mobilité liée à l'écoulement des chaines les unes par rapport aux autres lorsqu'une sollicitation mécanique est appliquée. Ce mouvement visqueux est accompagné d'une dissipation d'énergie sous forme thermique. Suivant la nature du polymère, certains types de mouvements sont privilégiés. On comprendra facilement que l'écoulement des chaines est plus facile dans les polymères amorphes que dans les réseaux réticulés. Cependant, quelle que soit l'échelle, la mobilité moléculaire est possible uniquement dans un espace libre qui lui est alloué autour d'elle même.

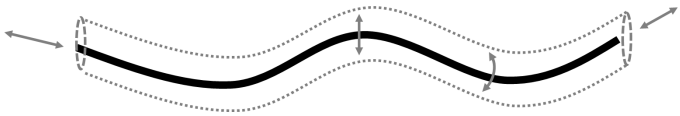


Figure 1.8: Mouvement moléculaire possible d'une chaine de polymère. Mouvement des atomes, rotation, écoulement (modèle de de Gennes [de Gennes, 1979]).

La mobilité moléculaire d'un polymère est fonction de la température. A basse température, la mobilité est quasi-nulle, le matériau se trouve dans un état dit "vitreux". D'un point de vue mécanique sa rigidité est importante. A l'inverse, à haute température, la mobilité moléculaire est élevée, il se trouve dans un état dit "caoutchoutique", et sa rigidité est faible. Le passage d'un état à l'autre se fait progressivement, mais une température critique, appelée température de transition vitreuse et notée T_g, définie le passage strict entre ces deux états. Cette température de transition vitreuse se situe dans des ordres de grandeurs différentes suivant la nature du polymère. Elle se situe aux alentours de -70^oC pour les caoutchoucs et 145^oC pour le polycarbonate.

1.2.3 Essais de relaxation et dynamique

Il est impossible d'avoir directement accès au spectre $H(\tau)$ par une quelconque mesure. Par contre les modules de relaxation et dynamique sont eux mesurables

[Nicholas, 1989]. Classiquement ces deux modules sont utilisés afin de caractériser expérimentalement la viscoélasticité d'un matériau, et renseignent indirectement sur le spectre $H(\tau)$.

Dans le domaine temporel, le module de relaxation se mesure par un essai de relaxation [Brinson, 2008]. Une marche de déformation est imposée:

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_0 \; h(t) \tag{1.6}$$

avec $h(t)$ la fonction d'Heaviside. La décroissance de la contrainte $\sigma(t)$ est enregistrée en fonction du temps (voir Figure 1.9). Le module de relaxation est le ratio de cette contrainte par l'amplitude de la marche de déformation:

$$E(t) = \frac{\sigma(t)}{\varepsilon_0} \tag{1.7}$$

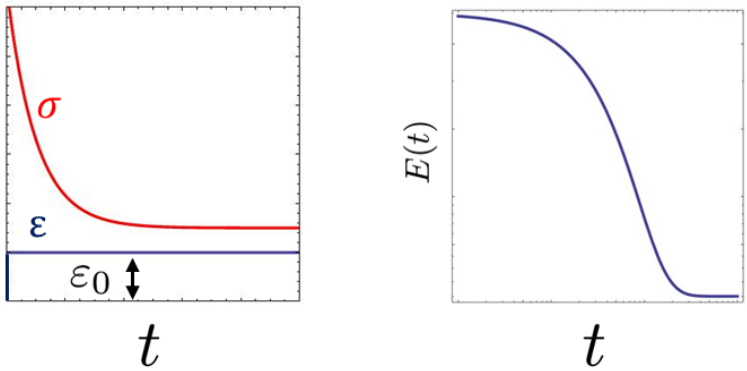


Figure 1.9: Principe d'un essai de relaxation. Une marche de déformation ε_0 est imposée. La contrainte est enregistrée, décroissante au cours du temps. Le module de relaxation est le ratio $E(t) = \frac{\sigma(t)}{\varepsilon_0}$.

Dans le domaine fréquentiel, le module dynamique se mesure par un essai de DMA (Dynamical Mechanical Analysis) [Brinson, 2008]. Une déformation sinusoïdale est imposée à une fréquence de rotation ω:

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_d \; \sin[\omega t] \tag{1.8}$$

La contrainte est enregistrée en fonction du temps (voir Figure 1.10) et peut s'écrire,

après stabilisation, sous la forme:

$$\sigma(t) = \sigma_d \ \sin[\omega t + \delta] \tag{1.9}$$

Le module dynamique complexe s'exprime à partir des deux amplitudes dynamiques des signaux (ε_d et σ_d) et du retard de phase δ:

$$E^*(\omega) = \frac{\sigma_d}{\varepsilon_d}(\cos[\delta] + i \ \sin[\delta]) \tag{1.10}$$

Avec i le nombre complexe. Ce module se décompose en une partie réelle $E'(\omega)$ et imaginaire $E''(\omega)$, qui donne:

$$E^*(\omega) = E'(\omega) + i \ E''(\omega) \tag{1.11}$$

avec:

$$E'(\omega) = \frac{\sigma_d}{\varepsilon_d}\cos[\delta] \qquad E''(\omega) = \frac{\sigma_d}{\varepsilon_d} \ \sin[\delta] \tag{1.12}$$

En répétant cette mesure pour plusieurs valeurs, l'évolution du module dynamique en fonction de la fréquence de rotation ω est obtenue. Le facteur de perte δ peut être interprété comme une mesure de la dissipation d'énergie.

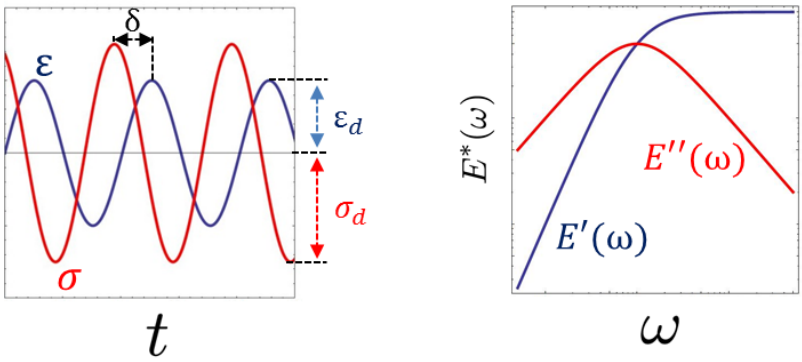


Figure 1.10: Principe d'un essai de DMA. Une déformation sinusoïdale est imposée. La contrainte est enregistrée au cours du temps et décrit un signal sinusoïdal également, une fois stabilisée. Le module dynamique complexe est calculé en fonction des amplitudes dynamiques des deux signaux et du retard de phase par $E^*(\omega) = \frac{\sigma_d}{\varepsilon_d}(\cos[\delta] + i \ \sin[\delta])$.

1.2.4 Effet Payne

Dans le cas d'un élastomère chargé, les mesures du module dynamique présentent une dépendance à certains paramètres d'essais. Lors d'un essai de DMA, une déformation sinusoïdale est imposée avec une amplitude dynamique ε_d, voir équation (1.8). Le module dynamique peut devenir une fonction non linéaire de ce paramètre. Il existe un seuil en dessous duquel le module est constant par rapport à l'amplitude dynamique et au-delà duquel le module dynamique mesuré chute (Figure 1.11). Ce seuil limite est d'autant plus petit que l'élastomère est chargé. Ce phénomène est appelé effet Payne [Payne, 1962]. Bien que mis en évidence dans les années 1960, l'origine physique de cet effet reste encore controversé malgré une place importante dans la recherche aujourd'hui [Hofer and Lion, 2009].

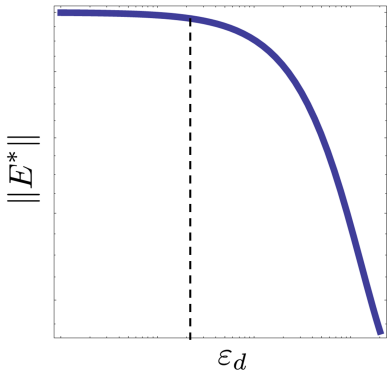


Figure 1.11: Schématisation du principe de l'effet Payne. Le module dynamique mesuré décroit en fonction de l'amplitude dynamique de la déformation à partir d'un certain seuil.

1.2.5 Influence de la pré-déformation statique

Certains élastomères (chargés ou non), présentent des propriétés mécaniques dynamiques qui dépendent de la déformation dite "statique". Une pré-déformation statique est imposée, sur laquelle est superposé un essai de DMA à une fréquence de sollicitation et amplitude dynamique de déformation données. La forme du signal temporel de déformation imposée devient:

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_s + \varepsilon_d \ \sin[\omega \ t] \tag{1.13}$$

En effectuant un balayage de la pré-déformation tout en gardant les autres paramètres d'essai constant, l'évolution du module complexe en fonction de la déformation statique est ainsi obtenue. Contrairement à l'effet Payne, la nature des résultats va dépendre de la nature du matériau. Certains élastomères vont présenter un ramollissement du module dynamique en fonction de la déformation statique [S. Lejeunes and et al., 2012, Lion, 1998, Wollscheid and Lion, 2013, Wollscheid, 2014, Ulmer, 1995], tandis que d'autres rigidifieront en fonction de ce paramètre [Azoug, 2010].

1.2.6 Effet Mullins

L'effet Mullins est un phénomène qui se manifeste lors d'un essai quasi-statique cyclique sur un élastomère chargé [Mullins, 1969]. Si le matériau présente une certaine rigidité lors de la première montée en charge, il tend à s'adoucir lors de la phase de décharge et lors les cycles suivant. Si le matériau est sollicité au-delà de son seuil maximal initial, alors il retrouve sa rigidité initial, et ainsi de suite, comme schématisé en Figure 1.12. Cet effet a fait l'objet de nombreuses études et nombreux modèles [Ogden and Roxburgh, 1999, Diani et al., 2013, Chai et al., 2013]. Même si l'effet Mullins n'est pas un phénomène visqueux, il nécessite tout de même d'être souligné ici dans la mesure où il est la manifestation d'un pseudo phénomène d'endommagement (il peut être recouvré après un recuit thermique), avec une origine physique encore mal définie.

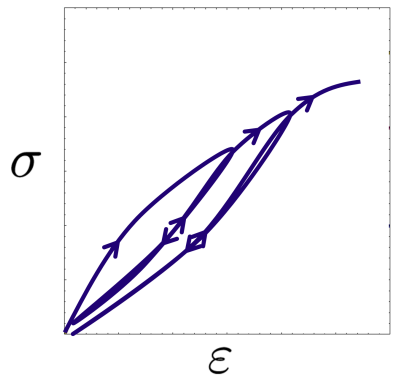


Figure 1.12: Schématisation du principe de l'effet Mullins. Adoucissement du matériau après une première phase de charge.

1.2.7 Équivalence Temps/Température

Des essais de relaxation ou de DMA vont être limités dans les gammes de temps et de fréquences, principalement dus à la technologie de mesure utilisée. Afin d'avoir une complète description du comportement viscoélastique (dans le domaine temporel ou fréquentiel), le principe d'équivalence Temps/Température peut être utilisé pour certains polymères en vue d'obtenir les courbes maitresses des modules.

Les travaux de Williams Landel et Ferry [Williams et al., 1955] ont montrés, pour les polymères amorphes, qu'il y avait une égalité entre les effets du temps et les effets de la température sur les propriétés mécaniques. Mathématiquement, il existe un paramètre noté a_T, appelé facteur de translation et dépendant de la température de référence choisie, tel que:

$$P(t, T_{ref}) = P(t.a_T, T) \tag{1.14}$$

avec P les propriétés mécaniques, telles que module de relaxation et dynamique, viscosité, etc. La réalisation d'essais de DMA ou de relaxation à différentes isothermes permet de construire les courbes maitresses des modules de relaxation et dynamique grâce à ce principe d'équivalence Temps/Température. Les valeurs des modules pour les différentes températures peuvent être translatées le long des axes des temps ou des fréquences en échelle logarithmique, d'un facteur a_T, afin d'obtenir les courbes maitresses des modules de relaxation et dynamique (voir Figure 1.13 pour un exemple sur le module de relaxation). On appelle alors temps (ou fréquence) réduit(e) le rapport $t.a_T$ (ou $\frac{\omega}{a_T}$).

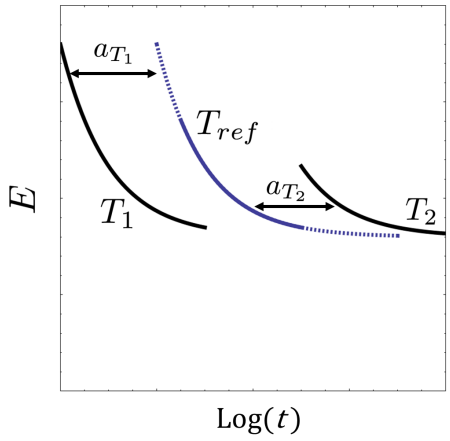


Figure 1.13: Schématisation du principe d'équivalence Temps/Température appliqué à la construction d'une courbe maitresse de relaxation

Une formule empirique, appelée loi WLF, a été donnée permettant de modéliser l'évolution du facteur de translation a_T en fonction de la température de référence T_{ref}:

$$log(a_T) = \frac{-C_1(T - T_{ref})}{C_2 + T - T_{ref}} \tag{1.15}$$

avec C_1 et C_2 des constantes à identifier. Ce principe et cette loi, mise en évidence pour les polymères amorphes, ont été depuis étendus à certaines autres classes de polymères [Benedetto et al., 2010, Zhao et al., 2007].

En utilisant cette équivalence, la température de transition vitreuse T_g définie plus haut, peut également être interprétée comme vitesse de sollicitation critique pour laquelle le matériau se comporte de manière vitreuse ou caoutchoutique.

1.2.8 Identification du spectre des temps de relaxation

Il existe plusieurs méthodes permettant de retrouver le spectre des temps de relaxation $H(\tau)$ à partir du module dynamique [Bhattacharjee et al., 2012, Daviesa and Gouldinga, 2012, Shtrauss, 2012, Carrot and Verney, 1996]. La plupart de ces méthodes sont mal posées au sens mathématique (la solution n'est pas unique [Lavrent, 1967]) et elles nécessitent d'être régularisées. Beaucoup de ces méthodes sont longues et coûteuses en temps de calcul. L'identification du spectre des temps de relaxation se fera ici à partir du module de relaxation, en suivant une démarche simple décrite dans les travaux de Baumgaertel [Baumgaertel and Winter, 1992].

D'une part, le changement de variable $f(z) = \frac{H(\frac{1}{z})}{z}$ est proposé dans l'équation (1.3), qui donne:

$$E(t) - E_\infty = \int_0^\infty f(z)\ e^{-tz}\ dz \tag{1.16}$$

Par définition [Widder, 1946], l'équation (1.16) exprime le module de relaxation comme étant la transformée de Laplace de la fonction $f(z)$:

$$E(t) - E_\infty = \mathcal{L}(f(z)) \tag{1.17}$$

D'autre part, le module de relaxation étant une fonction décroissante du temps,

Smith assure [Smith, 1971] que la courbe de ce module peut être mise sous la forme:

$$E(t) = E_\infty + \frac{E_g - E_\infty}{1 + (\frac{t}{t_0})^\beta} \tag{1.18}$$

avec E_∞ la valeur du module aux temps infinis, E_g la valeur du plateau vitreux, t_0 et β des paramètres ajustables.

Par égalité entre les équations (1.17) et 1.18, on obtient:

$$\mathcal{L}(f(z)) = \frac{E_g - E_\infty}{1 + (\frac{t}{t_0})^\beta} \tag{1.19}$$

Le membre de droite de cette équation est une transformée de Laplace usuelle, donc par inversion, elle donne:

$$f(z) = \frac{E_g - E_\infty}{\Gamma(\beta)}\ t_0^\beta\ z^{\beta-1}\ e^{-zt_0} \tag{1.20}$$

avec Γ la fonction Gamma d'Euler [Artin, 1964]. Enfin, en effectuant le changement de variable inverse, une expression analytique du spectre des temps de relaxation à partir de l'équation (1.18) est déduite:

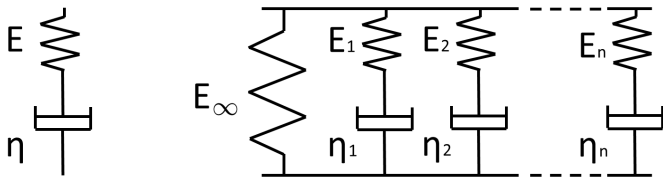
$$H(\tau) = \frac{(E_g - E_\infty)}{\Gamma(\beta)} \left(\frac{\tau}{t_0}\right)^{-\beta}\ e^{-\frac{t_0}{\tau}} \tag{1.21}$$

1.2.9 Modèle de Maxwell généralisé

Les grandeurs définies ici (modules, spectre) sont des fonctions continues. Il est cependant préférable de travailler en mécanique avec des modèles discrets [Malkin, 2006, Tschoegl and Emri, 1992]. Ainsi, une intégrale (par exemple dans les équations (1.3) et (1.4)) devient une somme finie de termes. La nature discrete d'un modèle le rend plus facilement représentable et il est surtout plus aisé de l'implémenter numériquement. Le modèle discret mécanique viscoélastique le plus basique, qui décrit simplement la mécanique des phénomènes visqueux, est le modèle de Maxwell: un ressort de raideur E en série avec un amortisseur de viscosité η (voir Figure 1.14(a)). Ce modèle étant très limité, il donne place au modèle viscoélastique linéaire le plus couramment utilisé: le modèle de Maxwell généralisé (voir Figure 1.14(b)), une asso-

ciation en parallèle de n modèles de Maxwell simple, ajouté à un ressort unique de raideur E_∞, voir [Hanyga, Simo and Hughes, 1998]. Le temps de relaxation τ_i associé à chaque élément du modèle de Maxwell généralisé est défini par:

$$\tau_i = \frac{\eta_i}{E_i} \tag{1.22}$$



(a) (b)

Figure 1.14: Modèles mécaniques couramment utilisés en viscoélasticité linéaire: (a) le modèle de Maxwell simple, un ressort associé en série à un amortisseur et (b) le modèle de Maxwell généralisé, une association en parallèle de n modèles de Maxwell simple additionnée d'un ressort seul.

Le modèle ainsi représenté s'exprime mathématiquement par une série de Prony (E_i, τ_i) qui n'est autre que la discrétisation du spectre continu des temps de relaxation $H(\tau)$ en un spectre discret noté $\hat{H}(\tau)$. Certains algorithmes d'identification préfèrent retrouver directement le spectre discret à partir de résultats expérimentaux de DMA [Brabec and Schausberger, 1995, Brabec et al., 1997, Stadler and Bailly, 2009] ou de relaxation [Duan, 2007, Ho and Romero, 2012, Luk-Cyr et al., 2013, Stadler, 2010]. Ici, plus riche en information, le spectre continu est identifié puis est ensuite discrétisé.

Afin de passer du spectre continue à cette série, la méthode de Smith [Smith, 1971] et de Baumgaertel [Baumgaertel and Winter, 1992] est utilisée ici. La première étape consiste à discrétiser l'axe des temps de relaxation τ en une série finie $(\tau_i)_{i=1,n}$. Classiquement, une discrétisation avec un pas logarithmique régulier est choisie. Le choix de la discrétisation de l'axe des temps de relaxation est purement arbitraire. Une manière plus objective pour ce choix sera développée plus loin. A partir de cette discrétisation, on définit les valeurs moyennes logarithmiques τ_i^+ et τ_i^- (voir Figure 1.15) par:

$$\tau_i^+ = \sqrt{\tau_i \ \tau_{i+1}} \qquad \tau_i^- = \sqrt{\tau_i \ \tau_{i-1}} \tag{1.23}$$

En notant Δ la fonction Dirac, le spectre discret $\hat{H}$ devient une somme discrète:

$$\hat{H}(\tau) = \sum_{i=1}^{n} E_i \ \Delta(1 - \frac{\tau}{\tau_i}) \tag{1.24}$$

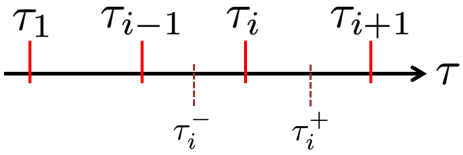


Figure 1.15: Représentation de la discrétisation de l'axe des temps de relaxation τ en une série finie $(\tau_i)_{i=1,n}$, avec les valeur des moyennes logarithmique τ_i^+ et τ_i^- pour chaque valeurs discrète du temps τ_i.

Le calcul des raideurs $(E_i)_{i=1,n}$ se fait par la définition du module de relaxation. Le spectre continu $H(\tau)$ et le spectre discret $\hat{H}(\tau)$ doivent tout deux satisfaire l'équation (1.3). Par égalité cela devient:

$$E(t) = \int_{-\infty}^{\infty} \hat{H}(\tau)\ e^{-\frac{t}{\tau}}\ d\ \ln(\tau)\ = \int_{-\infty}^{\infty} H(\tau)\ e^{-\frac{t}{\tau}}\ d\ \ln(\tau) \tag{1.25}$$

qui donne, en introduisant l'équation (1.24):

$$\sum_{i=1}^{n} E_i\ e^{-\frac{t}{\tau_i}} = \int_{-\infty}^{\infty} H(\tau)\ e^{-\frac{t}{\tau}}\ d\ \ln(\tau) \tag{1.26}$$

En écrivant l'égalité sur un intervalle $\tau_i^- \leq \tau \leq \tau_i^+$, on a pour chaque temps τ_i:

$$E_i\ e^{-\frac{t}{\tau_i}} = \int_{\tau_i^-}^{\tau_i^+} H(\tau)\ e^{-\frac{t}{\tau}}\ d\ \ln(\tau) \tag{1.27}$$

En faisant l'hypothèse que l'intervalle $\tau_i^- \leq \tau \leq \tau_i^+$ est suffisamment petit pour considérer que l'intégrande est constante sur ce domaine, l'équation (1.27) conduit à:

$$E_i\ e^{-\frac{t}{\tau_i}} = H(\tau_i)\ e^{-\frac{t}{\tau_i}}\ \ln(\frac{\tau_i^+}{\tau_i^-}) \tag{1.28}$$

Enfin, après simplification, la valeur de chaque raideur de la série de Prony est égale à (voir Figure 1.16):

$$E_i = H(\tau_i)\ \ln(\frac{\tau_i^+}{\tau_i^-}) \tag{1.29}$$

En considérant une discrétisation régulière, l'expression se simplifie en

$$E_i = H(\tau_i)\ \ln(\sqrt{\frac{\tau_{i+1}}{\tau_{i-1}}}) \tag{1.30}$$

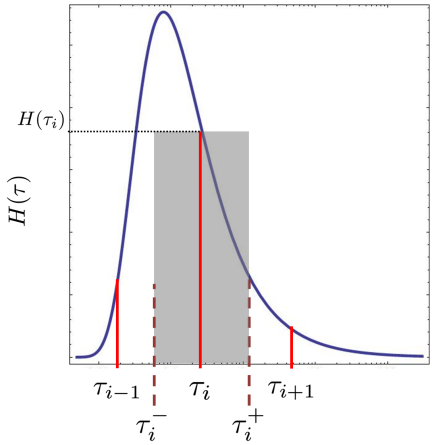


Figure 1.16: Schématisation graphique d'obtention de la série de Prony à partir du spectre continu. D'abord un choix de discrétisation $(\tau_i)_{i=1,n}$ est fait, puis les raideurs correspondantes sont calculées grâce aux moyenne logarithmiques (τ_i^-, τ_i^+).

Le spectre discret, décrit par un modèle de Maxwell généralisé, conduit aux expressions simplifiées des modules, couramment utilisées en viscoélasticité. Le module de relaxation s'écrit:

$$E(t) = E_\infty + \sum_{i=1}^{n} E_i \; e^{-\frac{t}{\tau_i}} \tag{1.31}$$

et le module dynamique $E^*(\omega) = E'(\omega) + iE''(\omega)$:

$$E'(\omega) = E_\infty + \sum_{i=1}^{n} \frac{E_i \; \omega^2 \tau_i^2}{1 + \omega^2 \tau_i^2} \qquad E''(\omega) = \sum_{i=1}^{n} \frac{E_i \; \omega \tau_i}{1 + \omega^2 \tau_i^2} \tag{1.32}$$

En résumant la démarche, le modèle viscoélastique linéaire décrit par une série de Prony, s'obtient à partir du module de relaxation obtenu expérimentalement, en plusieurs étapes:

- Modéliser le module de relaxation par une fonction de la forme $E(t) = E_\infty + \frac{E_g - E_\infty}{1+(\frac{t}{t_0})^\beta}$
- Déduire le spectre des temps de relaxation continu $H(\tau) = \frac{(E_g - E_\infty)}{\Gamma(\beta)} \left(\frac{\tau}{t_0}\right)^{-\beta} e^{-\frac{t_0}{\tau}}$
- Choisir de manière arbitraire une discrétisation de l'axe des temps de relaxation en une série finie $(\tau_i)_{i=1,n}$
- Calculer les raideurs correspondantes aux temps discrets par $E_i = H(\tau_i) \ln(\sqrt{\frac{\tau_i^+}{\tau_i^-}})$

1.3 Étude préliminaire du comportement du propergol

1.3.1 Comportement quasi-statique

Le comportement mécanique du propergol est premièrement observé grâce à des essais de traction quasi-statique. Les courbes contraintes/déformations sont tracées en Figure 1.17 pour différentes vitesses de déformation à 20°C. La déformation sans dimension est la déformation linéarisée. La dépendance de la contrainte à la vitesse de sollicitation confirme le caractère viscoélastique du propergol [Ozupek, 1989]. Quelle que soit la vitesse de déformation, la réponse peut se découper en deux parties: une première notée **I** pendant laquelle le matériau est dit "sain", et une seconde notée **II** où le matériau est endommagé. Le seuil est approximativement égal à une déformation de $\varepsilon = 0.1$.

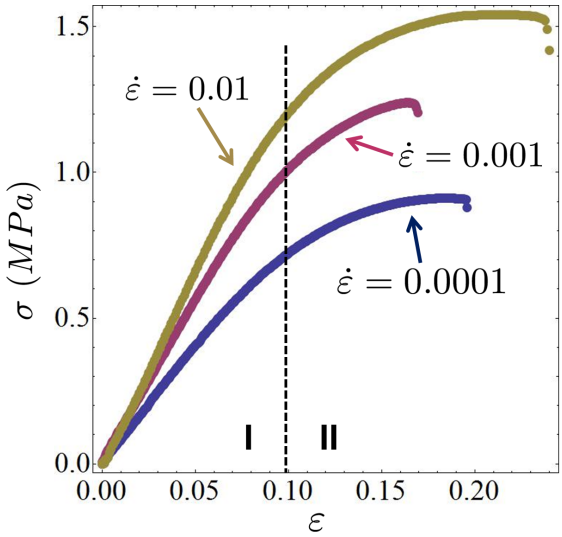


Figure 1.17: Réponse des essais de traction sur propergol pour des vitesses de déformation de $\dot{\varepsilon} = 10^{-2}; 10^{-3}; 10^{-4}$

L'endommagement dans les élastomères chargés est principalement dus à deux phénomènes. Le premier à intervenir est la décohésion entre le liant (la matrice) et les charges [Azoug, 2010]. Le second est la cavitation dans la matrice. Des pores se créent puis coalescent et finissent par se "marier" pour former de plus grosses cavités [Michel et al., 2010, Lopez-Pamies et al., 2011a, Nakamura and Lopez-Pamies, 2012]. Ces phénomènes d'endommagement peuvent être à l'origine de l'effet Mullins observé

dans les propergols (voir Figure 1.18), mis en évidence par [Ozupek, 1989]. Une mesure de l'endommagement est possible lors d'un essai Farris [Farris, 1964]. Un essai de traction est réalisé dans une chambre fermée et la variation de volume est enregistrée. Un tel essai sur le propergol, dont les résultats sont présentés en Figure 1.19, mettent bien en évidence deux parties. La première partie est à variation de volume nulle. Elle caractérise la nature incompressible du propergol pour une déformation inférieure à $\varepsilon = 0.1$. La seconde partie présente une variation de volume qui traduit un endommagement. Nucléation de pores et décohésion liant/charge conduisent à la création de volume. D'autres mesures de l'endommagement d'un élastomère sont envisageables, tel que le suivi de l'évolution du coefficient de poisson en fonction de la déformation imposée [Crevoisier et al., 2012].

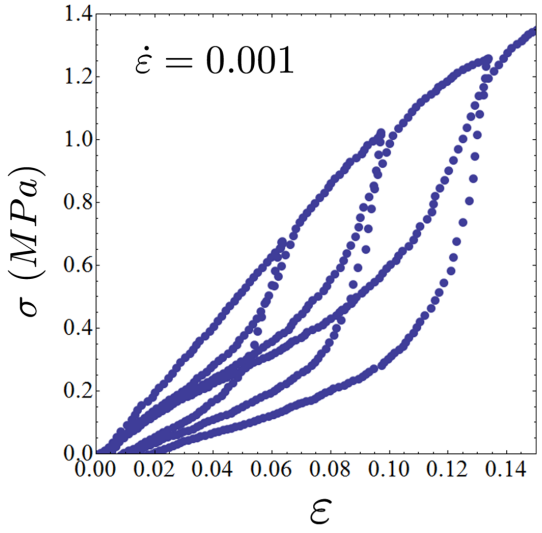


Figure 1.18: Essai quasi-statique cyclique sur propergol pour mettre en évidence l'effet Mullins dans ces matériaux.

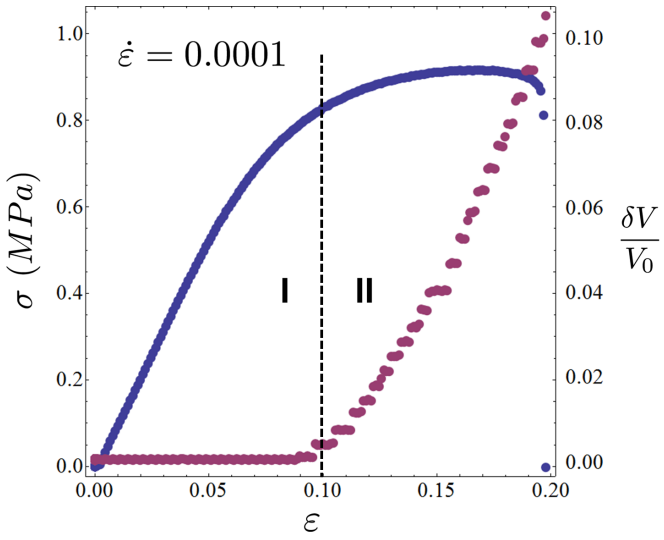


Figure 1.19: Réponse d'un essai de Farris sur propergol pour une vitesse de déformation de $\dot{\varepsilon} = 10^{-4}$. Le propergol est incompressible en dessous de $\varepsilon = 0.1$ (variation de volume nulle), et est endommagé au-delà (variation de volume non-nulle).

1.3.2 Comportement dynamique

La viscoélasticité du propergol sera caractérisée de manière complète plus loin dans cette étude. Cependant, afin d'avoir un premier aperçu de son comportement en régime dynamique, des essais de DMA sont réalisés pour quelques fréquences à une température de 20°C. Des études menées sur les élastomères fortement chargés ([Azoug, 2010, Merlette and Pagnacco, 2012]) ont montré que leurs propriétés dynamiques, mesurées en DMA, présentaient une dépendance à l'amplitude dynamique de déformation (effet Payne) mais aussi à l'amplitude statique. En supposant qu'un signal de déformation $\varepsilon(t)$ puisse se décomposer (tel [Lion, 1999, 1998]) en une partie statique $\varepsilon_S(t)$ et une partie dynamique $\varepsilon_D(t)$:

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_S(t) + \varepsilon_D(t) \tag{1.33}$$

L'influence de la partie dynamique est démontrée par une mesure du module complexe lors d'un balayage de l'amplitude dynamique de déformation. Le signal de déformation pour l'essai de DMA est de la forme (voir équation (1.8)):

$$\varepsilon(t) = 0 + \varepsilon_D(t) = \varepsilon_d \ \sin[\omega t] \tag{1.34}$$

Les résultats en Figure 1.20 mettent en évidence la chute de l'amplitude du module $\|E^*\|$ (voir équation (1.11)) en fonction de l'amplitude dynamique de la déformation ε_d pour des fréquences de $1; 5; 7; 10$ Hz. Ici l'élastomère est tellement chargé que le plateau initial (voir Figure 1.11) n'est pas mesurable avec les appareils utilisés. La non linéarité relative à l'amplitude dynamique de la déformation est quasi instantanée. La mesure du facteur de perte δ n'est pas impactée par l'amplitude dynamique de la déformation.

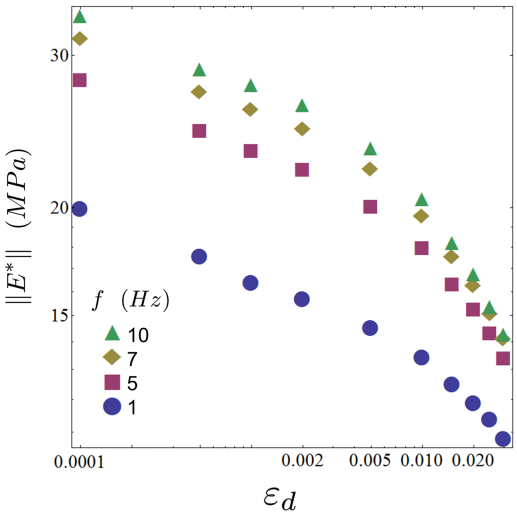


Figure 1.20: Évolution de l'amplitude du module complexe en fonction de l'amplitude dynamique de la déformation pour des fréquences de $1; 5; 7; 10$ Hz, mise en évidence de l'effet Payne pour le propergol.

Dans les travaux de Azoug [Azoug et al., 2013a], l'influence de la déformation statique est mesurée par un essai de DMA superposé à une pré-déformation. Le signal de déformation imposé pour l'essai de DMA est de la forme:

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_S(t) + \varepsilon_D(t) = \varepsilon_s + \varepsilon_d \ \sin[\omega t] \tag{1.35}$$

Pour une mesure du module complexe, ε_d et ε_s sont constants. D'une mesure à l'autre, ε_d est identique (ici $\varepsilon_d = 0.001$), mais un balayage de ε_s est réalisé. Les résultats présentés en Figure 1.21 montrent l'évolution de l'amplitude et du facteur de perte du module complexe, pour une température de 20^oC. En dessous d'une certaine valeur de déformation statique (environ 1%), le module complexe n'évolue pas. Au dessus de ce seuil, l'amplitude du module augmente alors que le facteur de perte chute.

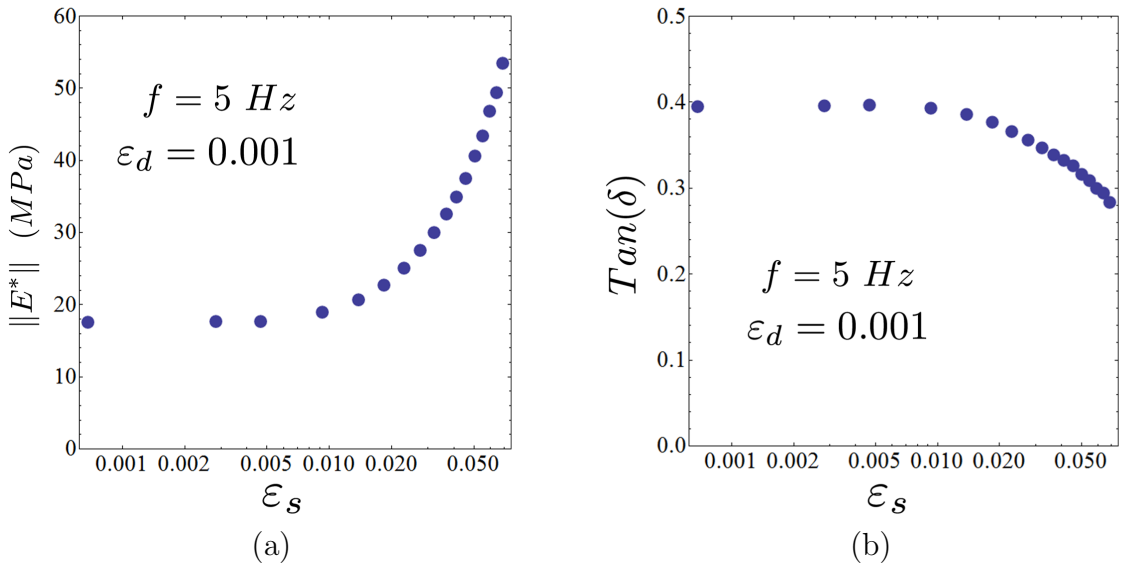


Figure 1.21: Évolution de l'amplitude (a) et du facteur de perte (b) du module complexe en fonction de la déformation statique ε_s pour une fréquence de 5 Hz. A partir d'environ 1% de déformation statique, l'amplitude du module augmente et le facteur de perte chute.

En résumé et de manière quantitative, les propriétés mécaniques des propergols solides composites présentent une dépendance à (au moins) deux paramètres. Après analyse des résultats des différents essais pour lesquels le matériau n'est pas endommagé (déformation inférieure à 10%). L'effet Payne tend à adoucir la rigidité du matériau en fonction de la déformation dynamique $\varepsilon_D(t)$ (voir Figure 1.20). En revanche la partie statique de la déformation $\varepsilon_S(t)$ a un effet durcissant sur la rigidité du propergol (voir Figure 1.21). Dans le domaine quasi statique (voir Figure 1.17), ces deux phénomènes ne semblent pas se manifester lors d'un essai de traction. En effet la rigidité apparente du matériau lors de la traction, prise comme étant égale à la tangente de la courbe dans le repère (ε, σ), ne semble pas évoluer dans le domaine $0 \leq \varepsilon \leq 10\%$ pour une vitesse de sollicitation donnée.

1.3.3 Comportement cinétique

Afin d'avoir une première approche du comportement physique du propergol (rôle des constituants, mouvements moléculaires, etc), une étude cinétique est réalisée.

Il s'agit d'un essai de DMA à fréquence constante (ici $f = 5\ Hz$) pour lequel la température varie. Le module dynamique $E^*(\omega)$ est enregistré. La Figure 1.22 montre l'évolution du facteur de perte $Tan(\delta)$ en fonction de la température, pour un essai sans déformation statique, d'amplitude dynamique de $\varepsilon_d = 0.002$ (voir (1.13)), et une rampe de température de 5°C/min. La présence de plusieurs maximums locaux pour le facteur de perte confirme le fait que la matrice soit polyphasée (voir Figure 1.6). Chaque phase possède sa transition vitreuse. Ces résultats sont confirmés lors d'essais de Résonance par Relaxation Magnétique mesurant la mobilité des chaines de polymère à une autre échelle [Azoug et al., 2015].

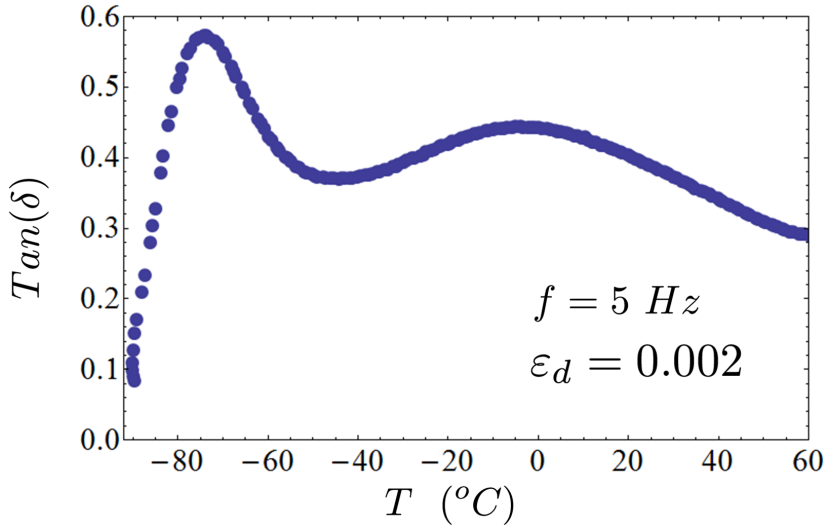


Figure 1.22: Cinétique réalisée sur le propergol pour une rampe de température de 5°C/min et une fréquence de 5 Hz.

1.3.4 Objectif de l'étude

L'étude préliminaire montre que le propergol présente un comportement mécanique viscoélastique. Il présente les non linéarités classiques que l'on peut observer chez les élastomères chargés, à savoir l'effet Payne, l'effet Mullins et l'influence de la déformation statique. Ces deux premiers effets sont des phénomènes connus et intégrés dans de nombreux modèles [Lion and Kardelky, 2004, Rendek and Lion, 2010, Hofer and Lion, 2009]. L'étude menée ici, déclinée en plusieurs parties, se focalisera sur un phénomène

moins connu et moins caractérisé: l'impact de la partie statique de la déformation. Premièrement, en se basant sur une étude numérique, la recherche de l'origine de l'influence de la partie statique est assurée par une caractérisation des phénomènes microscopiques intervenant dans le propergol. Puis, une caractérisation viscoélastique complète du propergol sera faite. Des essais viscoélastiques standards seront menés, mais le comportement dynamique sous sollicitations bi-axiales sera aussi exploré. Ensuite un modèle de comportement viscoélastique non linéaire décrivant le propergol sera établi. Intégrée dans un code de calcul, cette loi de comportement permettra de déterminer par simulation numérique l'influence du comportement non linéaire du propergol sur la réponse globale d'un moteur à propulsion solide sous sollicitations dynamiques.

Conclusion

Dans de nombreuses applications industrielles, des charges sont ajoutées dans les élastomères. Le propergol se classe parmi les élastomères très fortement chargés, avec un ajout de plus de 70% en volume de perchlorate d'ammonium et d'aluminium. Utilisé dans la propulsion solide, la fonction principale de ce matériau est énergétique, mais ses propriétés mécaniques restent un enjeu majeur. Ce chapitre permet de situer le contexte industriel de l'étude et les enjeux liés au comportement mécanique du propergol. Il rappelle les propriétés mécaniques des élastomères, les méthodes de caractérisations et de modélisations. Plus les élastomères sont chargés, plus leur comportement viscoélastique devient complexe. Il est démontré ici que les propriétés du propergol retranscrivent toutes ces non linéarités: effet Mullins, effet Payne, partie statique de la déformation. Les travaux qui suivent ont pour objectif de caractériser et modéliser l'influence de cette pré-déformation dans le propergol, qui reste un effet peu développé dans la littérature. Les non linéarités observées à l'échelle macroscopique trouvent une origine à l'échelle microscopique. Lorsqu'une sollicitation mécanique macroscopique est appliquée, la nature rigide des charges vis à vis de la matrice tend à complexifier et à rendre hétérogène les champs de contraintes et de déformations à l'intérieur du composite. Le fait d'avoir une matrice polyphasée amplifie ces effets et rend le comportement macroscopique davantage non linéaire. Une étude du composite à l'échelle des charges est donc nécessaire.

Chapitre 2

Microstructure

En partie dû à son fort taux de charge, le propergol présente une microstructure complexe. Comprendre les phénomènes physiques intervenant à l'échelle des charges permet d'expliquer les effets observables à l'échelle macroscopique, et plus précisément les non-linéarités. Pour ce faire, une étude microstructurale doit être réalisée. Certaines études sur les élastomères chargés analysent les interactions des constituants du matériau, en vue de trouver des relations entre structure et propriétés [Fu et al., 2008, Roland, 2013, Davies, 1963, Azoug et al., 2014a]. D'autres s'intéressent au composite dans son ensemble, comme un matériau continu, et observent uniquement l'influence des constituants sur les propriétés mécaniques [Darmstadt et al., 1995, Diani et al., 2013, Lee and Hsu, 2002, Kraus, 1984]. L'objectif de cette partie est de quantifier les phénomènes mécaniques microscopiques qui se manifestent au sein d'un élastomère chargé, et plus précisément de l'amplification des déformations, qui participent au caractère non linéaire de comportement viscoélastique macroscopique du propergol.

Les charges présentes dans le propergol sont nettement plus rigides par rapport à la matrice qui est, elle, de nature polymère. L'application d'une déformation au niveau macroscopique sur le composite va engendrer une dispersion et une amplification des déformations au niveau microscopique. L'observation et la mesure de ces champs de déformations pourraient être réalisées expérimentalement grâce aux techniques de corrélations d'images numériques [Chevalier et al., 2001] mais ne donnerait accès qu'à des renseignements surfaciques de ces grandeurs. De plus, les images optiques du propergol, en exemple en Figure 2.1, ne permettent pas une corrélation qui distingue correctement les champs de déformations relatifs aux charges et à la matrice.

L'utilisation de la tomographie [Hsia et al., 1976] peut donner une information volumique des champs de déformation intervenant dans le composite. Cependant, cette technique demande un lourd investissement tant sur le plan expérimental que sur le post-traitement. De plus, la faible différence de densité des constituants du propergol limite l'utilisation de ce type d'imagerie volumique.

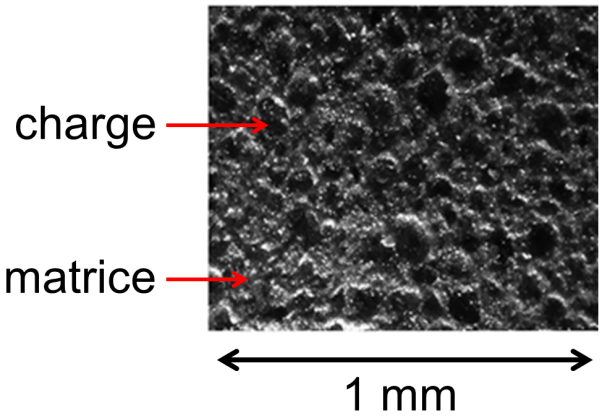


Figure 2.1: Image optique du propergol

La solution retenue ici est une méthode numérique. Des microstructures vont être générées numériquement, après application de déformations macroscopiques au composite, les déformations microscopiques et phénomènes plus locaux (à l'échelle des charges) seront étudiés. Certaines simplifications seront prises en compte: le composite est biphasé, constitué de charges et de matrice uniquement. De plus, il est supposé que les phénomènes visqueux n'influencent pas l'amplification des déformations, le problème sera donc conduit dans le domaine élastique. Sous ces hypothèses, le comportement microscopique du composite sera mis en évidence, ce qui permettra par la suite d'expliquer en partie l'origine des non-linéarités observées. De plus, des aspects d'homogénéisations analytiques en élasticité seront également abordés, afin de déduire le comportement mécanique élastique du composite en fonction de celui de la matrice et des charges.

Les élastomères chargés trouvent une application industrielle pour des taux de charges allant jusqu'à 30% en volume, c'est pourquoi de nombreux travaux étudient ces composites pour ces taux [Lopez-Pamies et al., 2013]. Les travaux réalisés ici permettre d'étendre les résultats pour des taux de 70%, caractéristiques du propergol.

2.1 Microstructures et comportements mécaniques

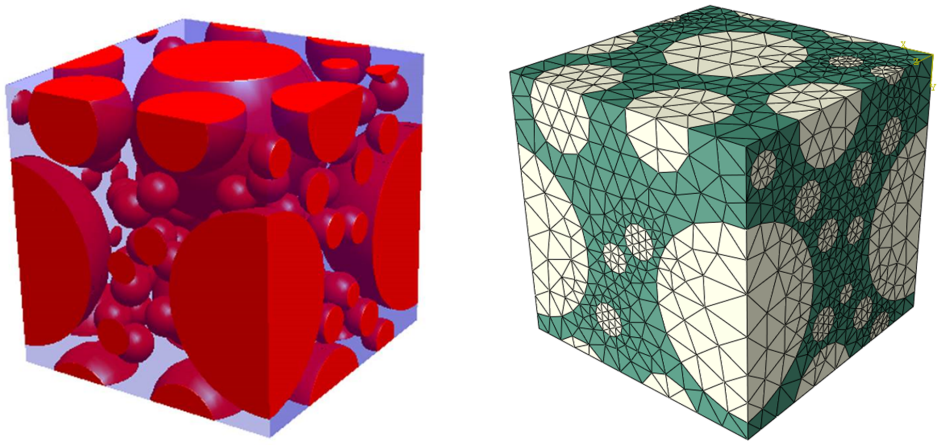
Afin de quantifier et analyser numériquement les champs de déformations au sein d'un élastomère chargé, qui sont à l'origine des non-linéarités observées macroscopiquement, des microstructures simplifiées seront générées. Des microstructures uniquement biphasées sont considérées, constituées des charges et de liant. Un comportement mécanique est ensuite défini pour chacun des constituants du composite.

2.1.1 Microstructures

Dans un souci de validité des résultats, des Volumes Élémentaires Représentatif (VER, voir [Gitman et al., 2007]) périodiques sont générés pour simuler les élastomères chargés. Ils sont obtenus à l'aide d'un algorithme de remplissage séquentiel aléatoire (RSA), voir [Lopez-Pamies et al., 2013]. Après avoir choisi un cube unitaire (longueur notée L), il se décline comme suit:

- Tirer de manière aléatoire trois coordonnées, centre d'une sphère.
- Vérifier que la sphère n'interfère pas avec une autre.
- Si la sphère coupe un coté du cube, placer une autre sphère sur la face du cube opposée, de manière à obtenir une structure géométriquement périodique.

Ces opérations sont répétées, avec des diamètres de sphères différents (paramètres contrôlés) jusqu'à obtenir un remplissage du cube unitaire qui correspond à la fraction volumique de charge souhaitée. L'algorithme est développé sous Mathematica® [Wolfram]. La Figure 2.2(a) présente un exemple de microstucture obtenue. Afin de conserver la périodicité géométrique, les composites numériques sont maillés de manière périodique également (grâce au mailleur Netgen® [Netgen]), comme l'exemple en Figure 2.2(b). Des éléments tétraèdriques quadratiques hybrides sont utilisés [Cook, 1995].



(a) (b)

Figure 2.2: (a) Exemple de microstructure géométriquement périodique générée par l'algorithme RSA, ici avec un taux de charge de $c = 50\%$ en volume. (b) Maillage périodique de la microstructure.

Enfin, en notant δ le symbole de Kronecker, la périodicité des déformations est traduite numériquement par des égalités entre les déplacements u_k de deux noeuds de maillage en vis à vis dans la direction $k \in (1, 2, 3)$ et le gradient de déformation macroscopique imposé $\overline{F}$ par:

$$
\begin{aligned}
u_k(L, X_2, X_3) - u_k(0, X_2, X_3) &= (\overline{F}_{k1} - \delta_{k1})L \\
u_k(X_1, L, X_3) - u_k(X_1, 0, X_3) &= (\overline{F}_{k2} - \delta_{k2})L \\
u_k(X_1, X_2, L) - u_k(X_1, X_2, 0) &= (\overline{F}_{k3} - \delta_{k3})L
\end{aligned}
$$

De cette manière, les grandeurs mécaniques macroscopiques (effort et déplacement) du composite sont données aux quatre coins du cube O, A, B, C, D, voir Figure 2.3, comme expliqué dans les travaux de Lopez-Pamies et al. [Lopez-Pamies et al., 2013]. Les relations entre les noeuds de deux faces opposées de la microstructure simplifient la simulation d'essais mécaniques. Par exemple, afin de simuler une traction macroscopique dans la direction 3 sur le composite numérique, il suffit de bloquer le noeud "O", laisser libre uniquement le déplacement suivant la direction 1 au noeud "A", suivant la direction 2 au noeud "B" et imposer un déplacement suivant la direction 3 au noeud "C".

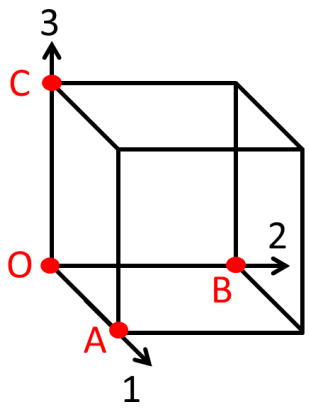


Figure 2.3: Schématisation des noeuds maitres pour les grandeurs mécaniques macroscopiques des composites numériques.

Le propergol présente un taux de charge d'environ $c = 70\%$ en volume. Cependant, afin d'évaluer l'évolution des propriétés mécaniques des composites en fonction du volume des charges, plusieurs types de microstructures sont simulées avec des fractions volumiques d'inclusion de $c = 0;\ 10\ 20\ 30;\ 40\ 50;\ 70\%$. La Table 2.1 regroupe les rayons des sphères utilisées (indiquant en même temps le nombre de famille de sphères) pour obtenir chaque microstructure ainsi que le nombre d'éléments retenus pour le maillage de chacune d'entre elles. Il est noté ici que, dans un souci de pertinence des résultats vis à vis de la réalité, l'ordre de grandeur du ratio entre le plus grand et le plus faible rayon des sphères utilisées pour la microstructure chargée à 70% respecte l'ordre de grandeur du ratio réel. Pour les composites chargés à 50% et 70%, le nombre d'éléments est limité par la taille des fichiers générés.

c (%)	Rayon des sphères	Nombre d'éléments du maillage
0	-	50
10	0.1	13647
20	0.1	14569
30	0.3 - 0.15	17474
40	0.3 - 0.15 - 0.06	20998
50	0.3 - 0.15 - 0.05	37325
70	0.3 - 0.15 - 0.05 - 0.03 - 0.01	454128

Table 2.1: Rayons des sphères utilisées pour obtenir les microstructures

2.1.2 Comportements mécaniques

Le comportement mécanique du propergol est viscoélastique. Cependant dans cette partie, afin de simplifier l'analyse des microstructures et de pouvoir utiliser des résultats des travaux d'homogénéisations, l'étude se place dans un cadre hyperélastique. La partie visqueuse du comportement n'est pas prise en compte ici. Un comportement élastique en grande transformation peut être défini par son énergie de déformation notée W, qui dépend du gradient de la déformation $\boldsymbol{F}$. On rappelle que le premier tenseur des contraintes de Piola-Kirchhoff $\boldsymbol{P}$ est obtenu par la relation de comportement suivante (voir [LeTallec, 2012]):

$$\boldsymbol{P} = \frac{\partial\, W(\boldsymbol{F})}{\partial \boldsymbol{F}} \tag{2.1}$$

Le tenseur des contraintes de Cauchy $\boldsymbol{\sigma}$ est donné par:

$$\boldsymbol{\sigma} = \frac{\boldsymbol{F}}{J}\boldsymbol{P} \tag{2.2}$$

avec $J = det(\boldsymbol{F})$, correspondant à la mesure du changement de volume engendré par la déformation. Dans le cas incompressible, ce déterminant vaut $J = 1$.

Matrice

Un comportement hyperélastique polynomial incompressible particulier est choisi pour la matrice: le modèle Néo-Hookéen [Ogden, 1997]. L'énergie de déformation de la matrice W_m dépend uniquement du premier invariant du tenseur droit des déformations de Cauchy-Green I_{m1}:

$$W_m(I_{m1}) = C_1(I_{m1} - 3) \tag{2.3}$$

avec $I_{m1} = \boldsymbol{F_m^T} : \boldsymbol{F_m}$ où $\boldsymbol{F_m}$ représente le tenseur des déformations appliquées à la matrice. La matrice est considérée ici comme incompressible. Cela représente d'une part le comportement du propergol dans les plages de déformations considérées et permet d'autre part de pouvoir comparer les résultats obtenus avec les résultats analytiques de la littérature. Lors de sollicitations qui permettent de se placer dans le cadre des petites perturbations, le module tangent initial de traction de la matrice est noté E. De même, le module tangent initial de cisaillement de la matrice est noté μ.

Charges

Une étude menée par Lee et al. [Lee and Hsu, 2002] a permis d'identifier un comportement mécanique élastique linéaire [Barber, 2002] des charges présentes dans le propergol. Cependant, dans un souci de bonne convergence du calcul numérique, il est préférable de donner aux charges un comportement W_c similaire à celui de la matrice. Un modèle hyperélastique Néo-Hookéen 1000 fois plus rigide est donc retenu pour les charges, donné par:

$$W_c(I_{c1}) = 1000\ C_1(I_{c1} - 3) \tag{2.4}$$

Composite

Les travaux d'homogénéisation de Lopez-Pamies et al. [Lopez-Pamies, 2010, Lopez-Pamies et al., 2013, Goudarzi and Lopez-Pamies, 2013, Avazmohammadi and Castaneda, 2012] permettent de déduire une expression analytique du comportement élastique apparent du composite en fonction du comportement élastique de la matrice donné par sa fonction d'énergie W_m et de la fraction volumique d'inclusion c. Sous les hypothèses que la microstructure soit constituée uniquement de charges distribuées dans une matrice de manière isotrope, que ces charges soient rigides vis à vis de la matrice, et que l'énergie de déformation de la matrice dépende uniquement du premier invariant de la déformation, alors l'énergie de déformation homogène du composite $\overline{W}$ est donnée par:

$$\overline{W}(\overline{I}_1) = (1-c)\ W_m \left(\frac{\overline{I}_1 - 3}{(1-c)^{7/2}} + 3 \right) \tag{2.5}$$

avec $\overline{I}_1$ le premier invariant du tenseur droit des déformations de Cauchy-Green appliquées au composite. De plus, en considérant des petites transformations, la linéarisation de l'équation 2.5 conduit à la relation suivante, entre module élastique tangent initial de la matrice E et module élastique tangent initial apparent du composite $\overline{E}$:

$$\frac{\overline{E}}{E} = \frac{1}{(1-c)^{5/2}} \tag{2.6}$$

Une relation similaire peut être déduite vis à vis du module de cisaillement initial de la matrice μ et module de cisaillement initial apparent du composite $\overline{\mu}$:

$$\frac{\overline{\mu}}{\mu} = \frac{1}{(1-c)^{5/2}} \tag{2.7}$$

Ces résultats analytiques ont été validés jusqu'ici pour des fractions volumiques de charge n'excédant pas $c = 30\%$. Ce chapitre s'intéresse à la validité du modèle homogène pour des fractions volumiques supérieures. Par comparaison avec le propergol réel, le problème simplifié ici prend en compte un composite constitué uniquement d'une matrice et de charges, chacun modélisé par un comportement mécanique élastique (et non visqueux). L'analyse numérique permettra d'identifier les phénomènes microscopiques au sein des composites lors d'une simulation de chargement mécanique responsable des non-linéarités observées.

2.2 Simulations et analyses

Des essais de traction (voir Figure 2.4) sont simulés sur chaque microstructure. Le tenseur des déformations macroscopiques est égal à:

$$\overline{\mathbf{F}} = \begin{pmatrix} \frac{1}{\sqrt{\overline{\lambda}}} & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{\sqrt{\overline{\lambda}}} & 0 \\ 0 & 0 & \overline{\lambda} \end{pmatrix} \tag{2.8}$$

De la même manière, des essais de glissement (voir Figure 2.5) sont simulés, avec un tenseur des déformations égal à:

$$\overline{\mathbf{F}} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & \overline{\gamma} & 1 \end{pmatrix} \tag{2.9}$$

Les simulations sont réalisées grâce au code Abaqus® [Abaqus]. Le paramètre matériau est égal à:

$$C_1 = 1 \text{ MPa}$$

Dans un premier temps, une analyse du comportement apparent (homogène) du composite est faite, pour ensuite se concentrer sur les amplifications des déformations microscopiques, à l'échelle des charges et de la matrice.

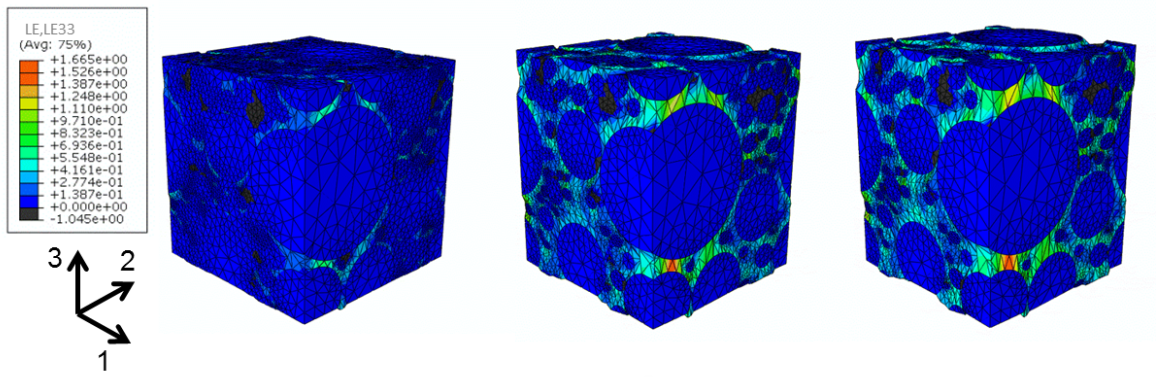


Figure 2.4: Simulation d'un essai de traction dans la direction 3 sur une microstructure chargée à $c = 50\%$ pour un allongement macroscopique imposée de $\overline{\lambda} = 1.02; 1.07; 1.10$.

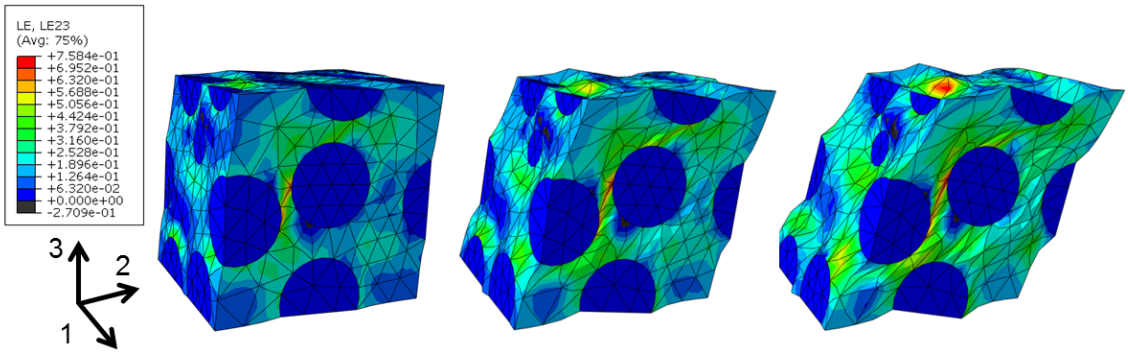


Figure 2.5: Simulation d'un essai de glissement dans la direction 2 sur une microstructure chargée à $c = 30\%$ pour un glissement macroscopique imposée de $\overline{\mu} = 0.1; 0.3; 0.5$.

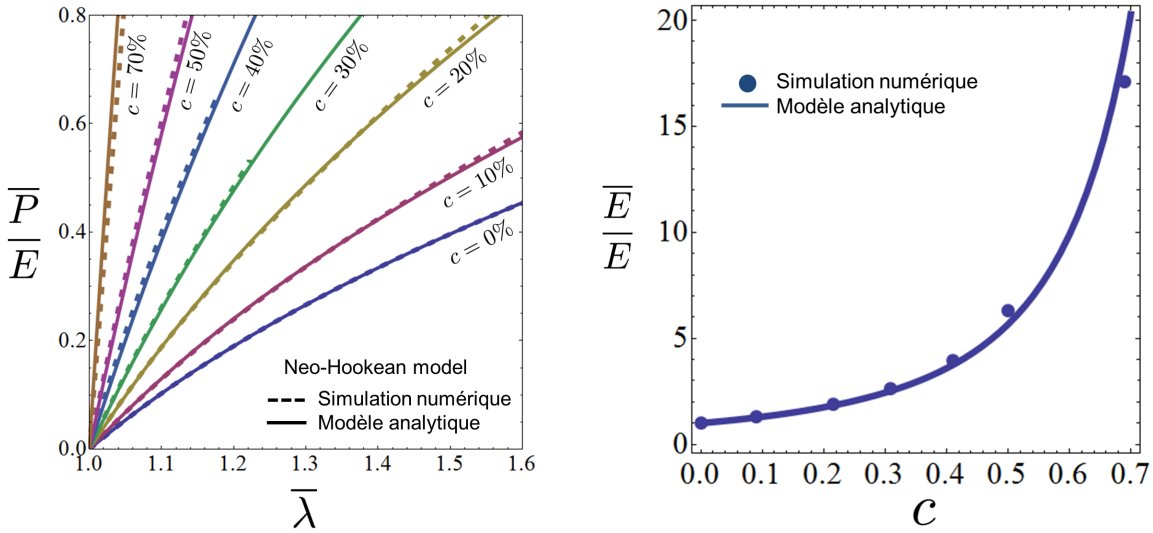
2.2.1 Comportement mécanique homogénéisé

Les résultats des simulations numériques des essais de traction réalisés sur les différentes microstructures, pour des grandes déformations, sont présentés en Figure 2.6(a), et les résultats des simulations des essais de glissement en Figure 2.7(a). Ces résultats sont respectivement adimensionnés par le module de traction et de cisaillement tangent initial de la matrice.

Premièrement, l'ajout de charges dans la matrice rigidifie considérablement le comportement du composite. Plus la fraction volumique des charges est importante, plus le composite est rigide. Le comportement homogène obtenu à l'aide des microstructures numériques pour les simulations est comparé avec la prédiction analytique (2.5). La bonne concordance entre les deux types de résultats, que cela soit en traction ou en glissement, démontre la capabilité du modèle homogène à décrire le comportement du composite pour des fractions volumiques de charge allant jusqu'à 70% (alors que le modèle homogène a été validé jusqu'ici ([Lopez-Pamies, 2010, Lopez-Pamies et al., 2013]) pour des fractions volumiques de charges inférieures à $c \leq 30\%$). L'isotropie du composite est légèrement moins marquée en fonction de l'augmentation de la fraction volumique de charge, ce qui explique les petites différences entre les résultats obtenus par les microstructures numériques et le modèle analytique pour les très forts taux de charge.

En restriction aux petites transformations, le module de traction tangent initial $\overline{E}$ est calculé pour chaque microstructure soumise à la simulation de traction. La Figure 2.6(b) trace l'évolution de ce module élastique du composite, adimensionné par le module élastique de la matrice E, en fonction de la fraction volumique de charge.

Il est noté ici que l'évolution (2.6) est identique au modèle proposé par Smallwood [Smallwood, 1944] jusqu'à des taux de charges de $c = 7\%$ et au modèle proposé par Guth [Guth, 1945] jusqu'à des taux de charges de $c = 5\%$.

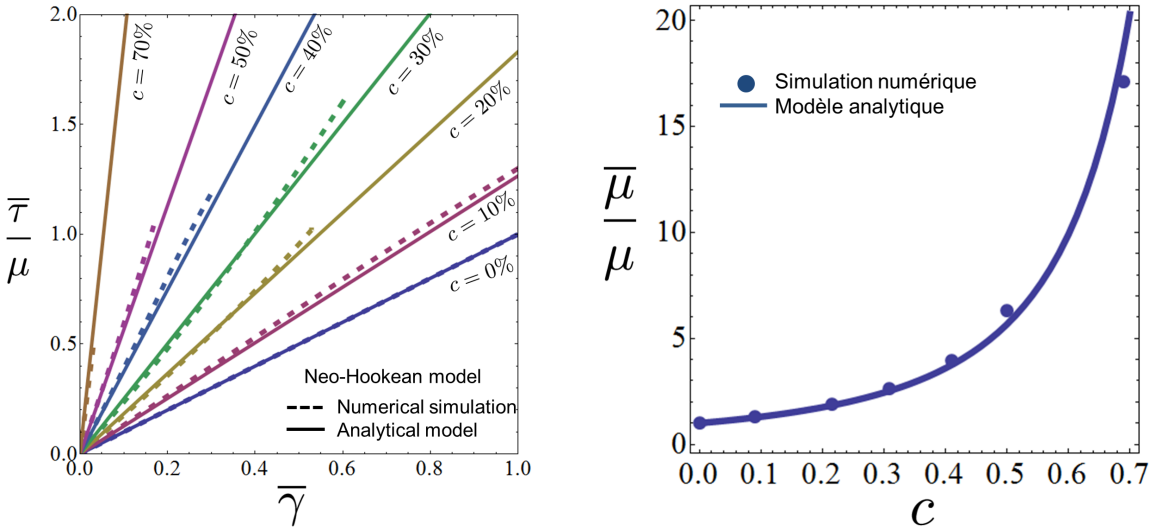


(a) (b)

Figure 2.6: (a) Réponse du composite numérique et modèle analytique homogène pour un essai de traction dans la direction 3. La fraction volumique des charges est de $c = 0; 10; 20; 30; 40; 50; 70\%$. (b) Évolution du module de traction tangent initial des composites en fonction de la fraction volumique de charge de c, comparaison entre simulation numérique et modèle analytique homogène.

De même, la Figure 2.7(b) trace l'évolution du module de cisaillement du composite $\overline{\mu}$ en fonction de la fraction volumique de charge. Par comparaison, le modèle analytique (2.6) arrive à retracer l'évolution du module de traction ou de cisaillement, même pour de forts taux volumiques de charges.

La comparaison entre les deux types de résultats, la simulation d'essais mécaniques des microstructures permet d'étendre la validité de la théorie d'homogénéisation jusqu'à des taux de charges de $c = 70\%$.



(a) (b)

Figure 2.7: (a) Réponse du composite numérique et modèle analytique homogène pour un essai de glissement dans la direction 2. La fraction volumique des charges est de $c = 0; 10; 20; 30; 40; 50; 70\%$. (b) Évolution du module de cisaillement tangent initial des composites en fonction de la fraction volumique de charge de c, comparaison entre simulation numérique et modèle analytique homogène.

2.2.2 Amplification des déformations

A l'échelle de la microstructure, la nature hétérogène du composite induit des champs de contraintes et de déformations hétérogènes également. Lors d'un essai de traction, des bandes de localisation de déformations entre les charges avaient été observées, à l'aide de microstructures numériques bidimensionnelles, lors de précédents travaux [Azoug, 2010]. Ces bandes sont remises en évidence ici en Figure 2.8 avec des microstructures tridimensionnelles. Les charges étant rigides vis à vis de la matrice, elles ne se déforment pas sous l'application d'une sollicitation macroscopique. A l'inverse, les déformations dans la matrice sont amplifiées par rapport à la sollicitation appliquée au composite. Des bandes de concentrations de déformations se localisent et forment un réseau entre les charges.

L'objectif ici est de quantifier les déformations microscopiques induites dans le composite en fonction de l'allongement macroscopique appliqué. L'étude se concentre ici sur les déformations en traction uniquement, mais de résultats similaires sont obtenus par glissement. Puisque les charges ne se déforment pas, seule la matrice sera l'objet de l'étude. Une simulation de traction simple est réalisée dans la direction 3, pour les microstructures chargées à $c = 30; 50; 70\%$. Pour chaque élément de maillage

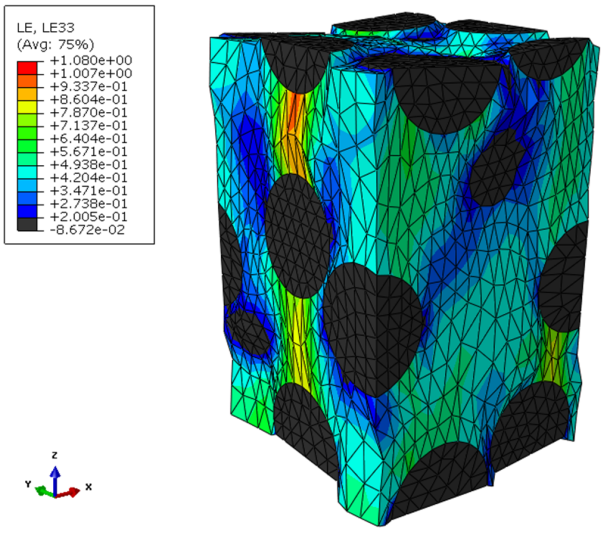


Figure 2.8: Microstructure chargée à $c = 30\%$ soumise à un allongement macroscopique de $\overline{\lambda} = 1.04$. Observation des bandes de déformations d'une charge à l'autre.

de la matrice, le tenseur des déformations ainsi que le volume de l'élément sont enregistrés au cours de cet essai. Des cartes de distributions statistiques des déformations, pondérées par le volume, peuvent être réalisées.

Par exemple, pour un allongement macroscopique appliqué aux composites de $\overline{\lambda} = 1.13$, les distributions des déformations dans la direction de traction induites dans la matrice sont données en Figure 2.9. Ces distributions sont modélisées par des lois normales de type:

$$p(\lambda) = \frac{1}{s\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{1}{2}(\frac{\lambda - m}{s})^2} \tag{2.10}$$

avec m la valeur de déformation médiane, s l'écart type. On définit de plus $< \lambda >$ qui est la déformation moyenne, différente de la déformation médiane, en partie due à la présence de valeurs extrêmes de déformation microscopique. L'identification de ces paramètres est donné en Table 2.2. Plus la fraction volumique de charge augmente, plus la valeur moyenne $< \lambda >$ des déformations enregistrées dans la matrice augmente et plus l'écart type de cette distribution augmente également.

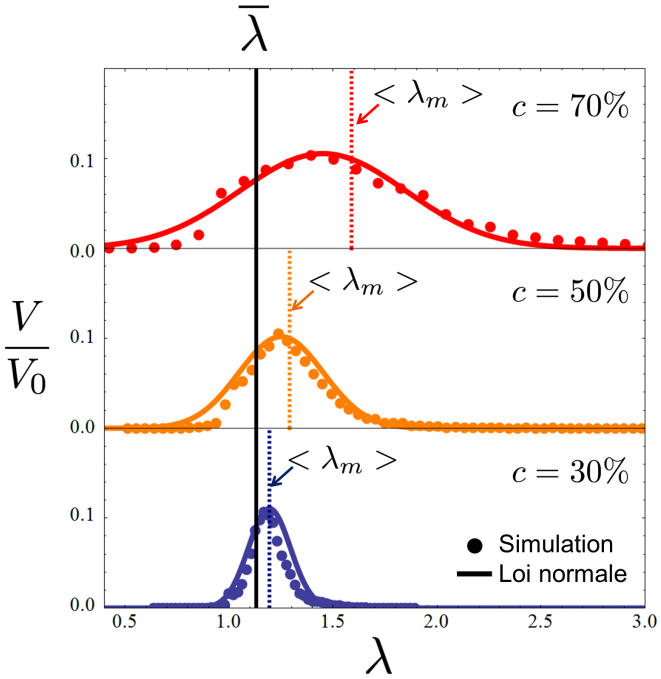


Figure 2.9: Distribution des déformations dans la direction 3 dans la matrice des composites chargés à $c = 30; 50; 70\%$, pour un allongement macroscopique de $\overline{\lambda} = 1.13$.

c	v	m	$< \lambda_m >$
0.3	0.100	1.17	1.18
0.5	0.203	1.24	1.26
0.7	0.480	1.43	1.54

Table 2.2: Identification des paramètres de la loi normale des déformations (2.10) (écart type, déformation médiane et moyenne) en fonction de la fraction volumique de charge, pour un allongement macroscopique de $\overline{\lambda} = 1.13$

En répétant cette dernière opération, l'évolution de la déformation moyenne dans la direction de traction $< \lambda >$ en fonction de d'allongement macroscopique $\overline{\lambda}$ peut être calculée. La Figure 2.10 trace cette évolution pour des microstructures ayant une fraction volumique de charge de $c = 30; 50; 70\%$.

Pour une fraction volumique de charge c fixe, l'évolution de la déformation moyenne dans la matrice $< \lambda >$ est une fonction linéaire de l'allongement macroscopique $\overline{\lambda}$. Afin de modéliser le phénomène, le problème est simplifié en utilisant l'hypothèse des petites transformations (impliquant l'approximation au premier ordre $\lambda = 1+\varepsilon$). Par analogie avec la dimension dite "1D", le composite est assimilé à une association en série de deux ressorts linéaires (voir Figure 2.11). Pour une déformation macroscopique totale du composite de $\overline{\varepsilon}$ ayant pour module $\overline{E}$, le premier ressort de module E_m, associé

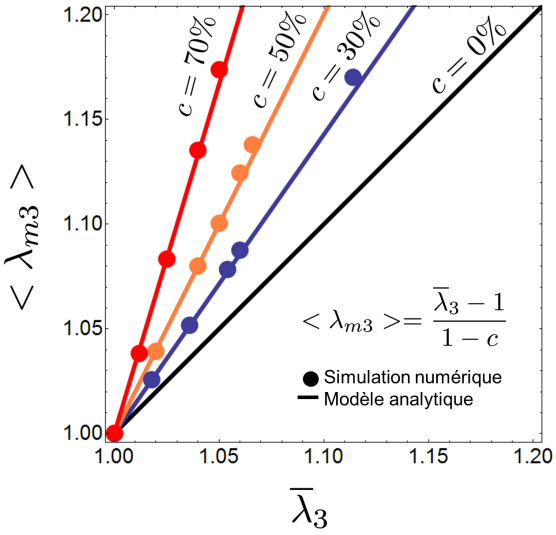


Figure 2.10: Déformation moyenne dans la matrice $< \lambda >$ en fonction de l'allongement macroscopique imposé $\overline{\lambda}$, pour des composites chargés à $c = 0; 30; 50; 70\%$.

à la matrice de concentration $1 - c$, subit une déformation $< \varepsilon_m >$. De la même manière le second ressort de module E_c, associé aux charges de concentration c, subit une déformation $< \varepsilon_c >$.

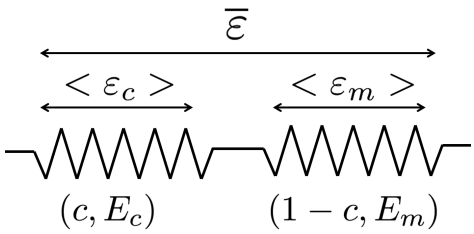


Figure 2.11: Modélisation d'un matériau composite, composés de deux constituants associés en série de concentration c et $1 - c$ et de raideur E_c et E_m.

L'évolution analytique des déformations moyennes peut être déduit par la définition même de la déformation homogène, ou bien comme rappelé ici, par les résultats de Voigts [Voigt, 1928]. D'une part, en utilisant la loi de l'élasticité linéaire en petite perturbation et l'égalité des contraintes dans chaque constituant, on obtient l'égalité suivante:

$$\overline{E}\ \overline{\varepsilon} = E_m\ \ < \varepsilon_m >= E_c\ \ < \varepsilon_c > \tag{2.11}$$

D'autre part, la loi des mélanges appliquée à cette association en série de deux ressorts donne:

$$\frac{1}{\overline{E}} = \frac{1-c}{E_m} + \frac{c}{E_c} = \frac{c\ E_m + (1-c)\ E_c}{E_c\ E_m} \tag{2.12}$$

La combinaison des équations (2.11) et (2.12) implique:

$$< \varepsilon_m >= \frac{\overline{\varepsilon}}{c\frac{E_m}{E_c} + (1-c)} \tag{2.13}$$

En considérant des charges rigides par rapport à la matrice, cette dernière équation se simplifie en:

$$< \varepsilon_m >= \frac{\overline{\varepsilon}}{1-c} \tag{2.14}$$

En étendant cette égalité aux grandes transformations, la relation analytique devient:

$$< \lambda_m >= 1 + \frac{\overline{\lambda} - 1}{1-c} \tag{2.15}$$

L'évolution analytique des déformations moyennes est tracée en Figure 2.10 pour des fractions volumiques de $c = 0; 30; 50; 70\%$. Ce modèle, basé sur des hypothèses simples, arrive à reproduire les amplifications de déformations observées dans les microstructures numériques, pour des allongements macroscopiques allant jusqu'à $\overline{\lambda} = 1.10$.

Des calculs similaires sont réalisés en vue d'enregistrer les déformations moyennes dans les deux autres directions de l'espace, pour les mêmes simulations d'essai de traction sur les différentes microstructures. Il est ainsi possible de remonter à l'état de déformation moyen de la matrice en fonction de l'allongement macroscopique appliqué au composite, pour chaque fraction volumique de charge. Par comparaison, la Figure 2.12 schématise cet état de déformation de la matrice dans deux composites chargés à $c = 0\%$ et $c = 70\%$ pour un allongement macroscopique appliqué de $\overline{\lambda} = 1.13$. Pour un même allongement macroscopique appliqué, l'état de déformation moyen dans la matrice va être différent suivant la fraction volumique de charge. Les charges étant rigides et ne se déformant pas, la matrice va subir une amplification de déformation d'autant plus que le composite est chargé. La réorganisation du réseau que forment les charges en fonction de la sollicitation macroscopique appliquée au composite favorise cette amplification de déformation de la matrice.

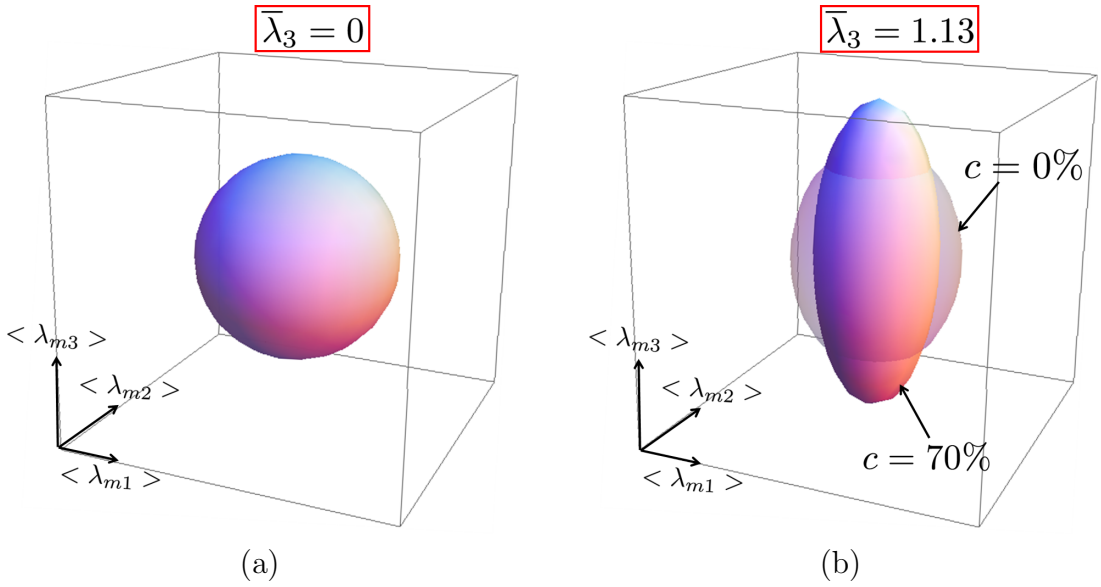


Figure 2.12: Schématisation de l'état de déformation dans la matrice d'un composite chargé à $c = 0\%$ et $c = 70\%$, sous un allongement macroscopique de (a) $\overline{\lambda} = 1$ et (b) $\overline{\lambda} = 1.13$

Lors d'une simulation d'essai de traction, il est possible d'observer au sein de la microstructure des rotations des charges sur elles-mêmes ainsi que des mouvements des charges les unes par rapport aux autres. Plus la microstructure est chargée, plus ces phénomènes sont marqués. Afin de quantifier les mouvements des charges, il est proposé d'enregistrer ici au cours de la simulation de traction, les évolutions des distances d_{ij} entre le centre des charges repérées i et j, prises initialement les plus proches deux à deux (voir Figure 2.13).

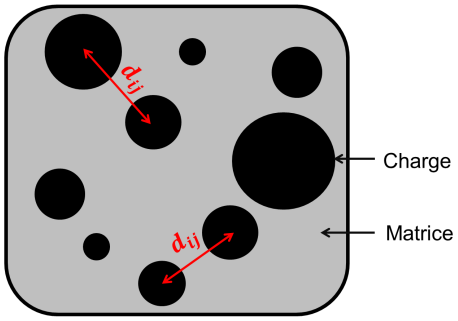


Figure 2.13: Schématisation en deux dimensions de la distance d_{ij} entre deux centres de charges repérées i et j, prises initialement les plus proches deux à deux.

En vue d'une comparaison avec des déformations, il est préférable d'utiliser le ratio $r_{ij}(\overline{\lambda})$, défini par:

$$r_{ij}(\overline{\lambda}) = \frac{d_{ij}(\overline{\lambda})}{d_{ij}(1)} \tag{2.16}$$

où $d_{ij}(\overline{\lambda})$ représente la distance entre deux charges repérées i et j fonction de l'allongement macroscopique et $d_{ij}(1)$ la distance initiale entre ces deux charges.

Si l'on considère un matériau homogène incompressible, ce ratio analogue à des déformations r_{ij} devrait être compris entre:

$$\frac{1}{\sqrt{\overline{\lambda}}} \leq r_{ij}(\overline{\lambda}) \leq \overline{\lambda} \tag{2.17}$$

Or, plus la microstructure est chargée, plus la dispersion est importante. Par exemple, en considérant un composite avec une concentration $c = 70\%$ de charge, la Figure 2.14 montre que le ratio peut être bien en delà de ces deux valeurs. Le fort taux de charges dans le composite se traduit également par un fort mouvement des charges les unes par rapport aux autres. Ce mouvement des charges va venir interagir avec la matrice, et participer à l'amplification des déformations de la matrice.

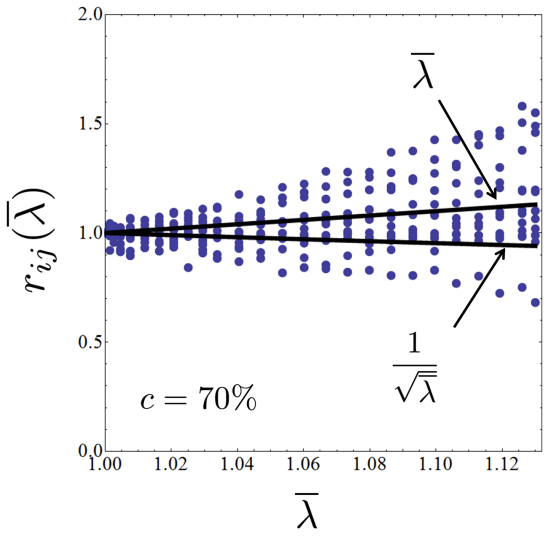


Figure 2.14: Évolution des distances entre deux sphères voisines en fonction de l'allongement macroscopique imposé $\overline{\lambda}$, pour un composite chargés à $c = 70\%$.

Grâce à ce modèle numérique simplifié, l'analyse de la matrice lors de sollicitations mécaniques du composite permet de quantifier les déformations qu'elle subit. Pour une même déformation macroscopique appliquée au composite, plus la fraction volumique de charge est importante alors plus les déformations engendrées dans la

matrice sont importantes et plus la déformation moyenne de cette matrice est élevée. Ces amplifications sont d'autant plus importantes dans le propergol qui présente un taux de charge proche de 70%. Même sous une faible déformation macroscopique (qui peut s'apparenter à la déformation statique), les chaines de polymère de la matrice sont localement très déformées et leur mobilité moléculaire est affectée. L'ensemble engendre des modifications des propriétés visqueuses à l'échelle macroscopique.

2.2.3 Cavitation

L'endommagement dans les polymères se traduit la plupart du temps par un phénomène de cavitation [Cho and Gent, 1988]. Lors d'une sollicitation mécanique des vides se forment, puis grossissent au fur et à mesure du chargement et finissent par coalescer. La cavitation résulte d'une forte concentration locale de contrainte et de déformation. Différentes explications physiques sont attribuées à la cavitation. Certaines études considèrent que ce phénomène est l'issue d'une instabilité élastique locale [Gent and Lindley, 1959], d'autres attribuent l'origine de la cavitation à la présence initiale de micro défauts [Ball, 1982]. Les critères permettant de prédire l'activation de la cavitation dans les élastomères portent généralement sur l'état de contrainte. Ainsi, les travaux de Gent et Lindley [Gent and Lindley, 1959] concluent que, pour un état de contrainte dans un élastomère $\boldsymbol{\sigma_m}$, la cavitation apparait en un point où la pression hydrostatique $\sigma_{mH} = \frac{1}{3}Tr(\boldsymbol{\sigma_m})$ est égale à:

$$\sigma_{mH} = \frac{5}{2}\mu \tag{2.18}$$

où μ est le module tangent initial de cisaillement de l'élastomère. D'autre part, les résultats de Lopez-Pamiez et Lefevre [Lopez-Pamies et al., 2011a,b, Lefevre et al., 2014] prédisent l'apparition de la cavitation en un point en fonction des valeurs propres du tenseur des contraintes de Cauchy σ_{mi} $i \in (1, 2, 3)$ sous condition que l'élastomère soit modélisé par un comportement Néo-Hookéen. En définissant l'invariant des contraintes de cavitation σ_{mc} par:

$$\sigma_{mc} = 8\sigma_{m1}\sigma_{m2}\sigma_{m3} - 12\mu(\sigma_{m1}\sigma_{m2} + \sigma_{m2}\sigma_{m3} + \sigma_{m3}\sigma_{m1}) + 18\mu^2(\sigma_{m1} + \sigma_{m2} + \sigma_{m3}) - 35\mu^3 \tag{2.19}$$

alors, la cavitation apparait si:

$$\sigma_{mc} = 0 \tag{2.20}$$

avec $\frac{3}{2}\mu \leq \sigma_{mi} \quad i \in (1, 2, 3)$. Les deux critères sont tracés en Figure 2.15 en fonction des contraintes principales, pour un matériau Néo-Hookéen de paramètre $C_1 = 1$ MPa.

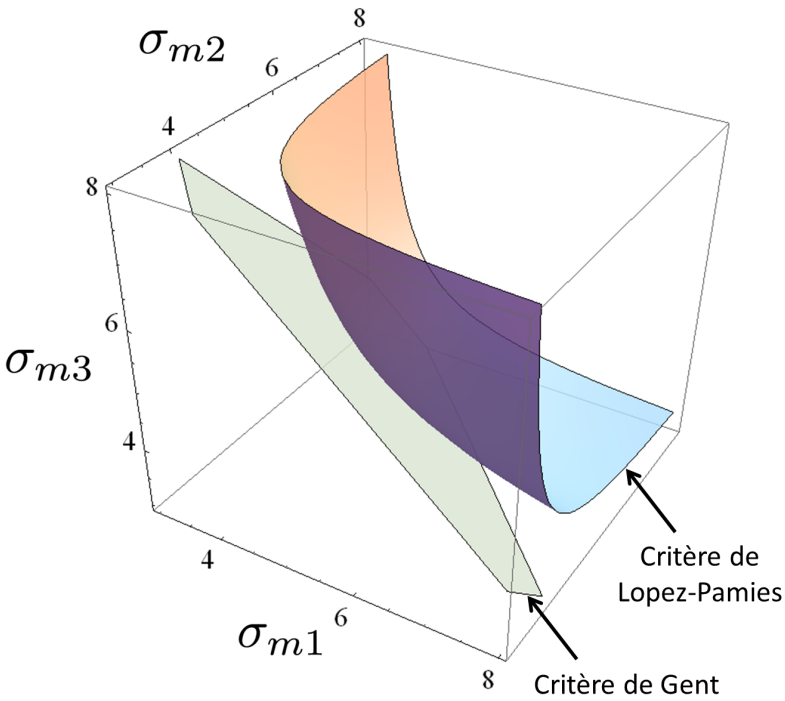


Figure 2.15: Surface représentant les critères de cavitation de Gent (2.18) et de Lopez-Pamies (2.20) en fonction des invariants du tenseur des contraintes de Cauchy.

Pour chaque microstructure et chaque type de sollicitation, le critère de Lopez-Pamies (2.20) est utilisé pour prédire l'initiation de la cavitation dans la matrice. Pour les simulations des essais de traction, la cavitation apparait entre deux charges, où se localisent les bandes de déformations. Par exemple, en Figure 2.16 sont données les régions d'initialisation de cavitation à comparer avec les états de contrainte et de déformation pour la microstructure chargée à 30% pour une déformation macroscopique de $\overline{\lambda} = 1.22$.

La déformation macroscopique critique $\overline{\lambda}_c$ pour laquelle la cavitation apparait est tracée en Figure 2.17 en fonction de la fraction volumique de charge c. Plus le composite est chargé, plus cette déformation critique est faible.

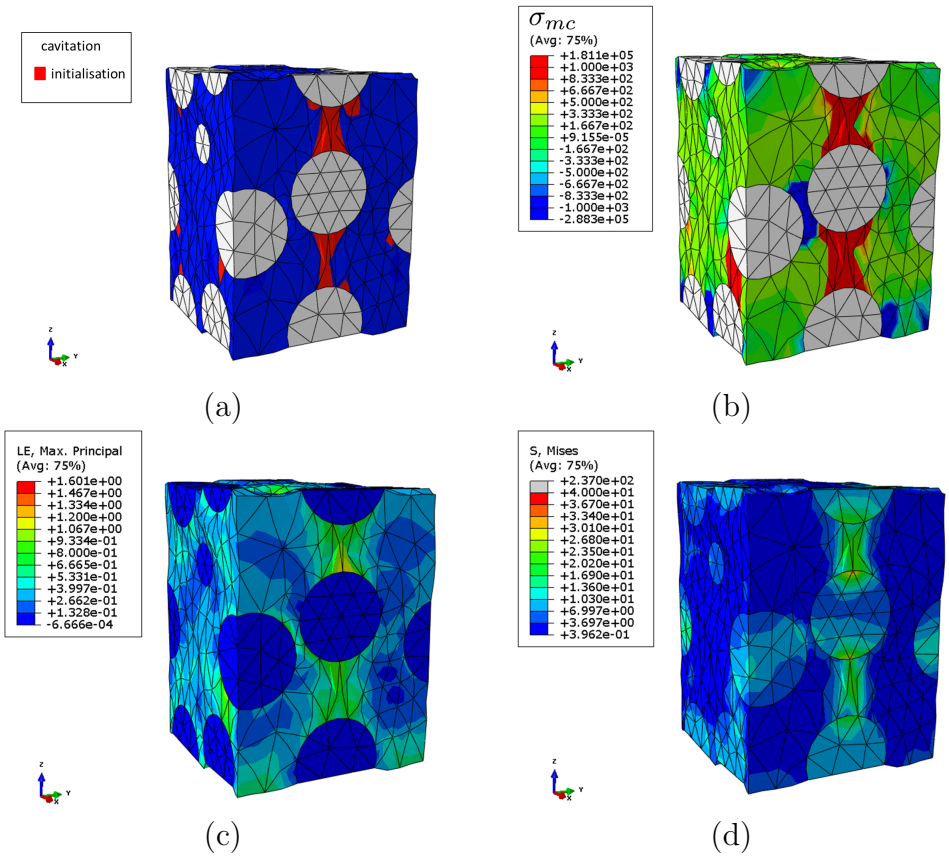


Figure 2.16: Représentation (a) des régions d'initialisation de cavitation avec (b) l'invariant de cavitation correspondant ainsi que (c) l'état de déformation et (d) de contrainte d'une microstructure chargée à 30% sous une déformation macroscopique de $\overline{\lambda} = 1.22$.

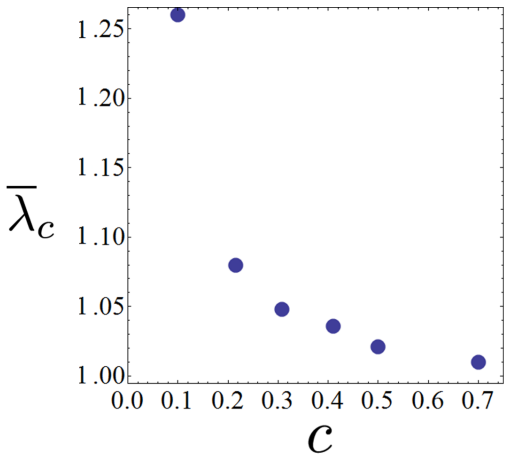


Figure 2.17: Évolution de la déformation macroscopique critique en fonction du taux de charge

Les mêmes observations sont réalisées sur les simulations des essais de glissement. La cavitation dans la matrice apparait une fois de plus entre les charges. La Figure 2.18 représente les régions d'initialisation de cavitation à comparer avec les états de contrainte et de déformation pour la microstructure chargée à 30% pour un glissement macroscopique de $\overline{\gamma} = 0.57$.

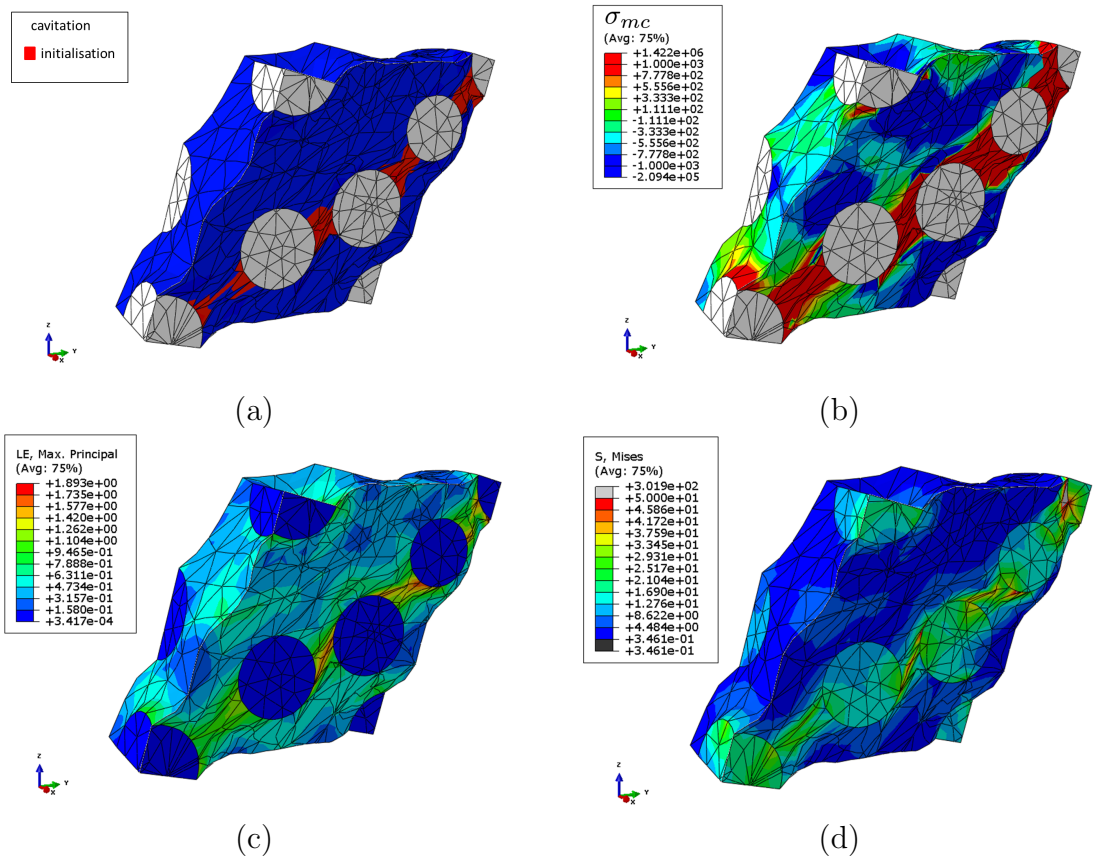


Figure 2.18: Représentation (a) des régions d'initialisation de cavitation avec (b) l'invariant de cavitation correspondant ainsi que (c) l'état de déformation et (d) de contrainte d'une microstructure chargée à 30% sous un glissement macroscopique de $\overline{\gamma} = 0.57$.

De même, le glissement macroscopique critique $\overline{\gamma}_c$ pour lequel la cavitation débute est enregistré en fonction du taux de charge en Figure 2.19. Plus le composite est chargé, plus le glissement critique est faible.

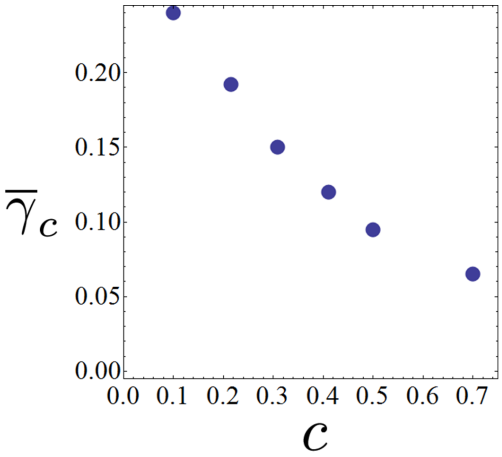


Figure 2.19: Évolution du glissement macroscopique critique en fonction du taux de charge

En conclusion, les charges présentes dans la matrice complexifient les champs de contraintes et déformations microscopiques. Plus la fraction volumique de charge est importante, plus l'amplification des déformations (et donc des contraintes au niveau local dans la matrice) est important, et favorise le phénomène de cavitation. La matrice dans le composite cavite pour des déformations de plus en plus petites (quel que soit le mode de sollicitation) en fonction du taux de charge. Dans un propergol chargé à 70%, la cavitation, donc l'endommagement, apparait dès les premiers pourcentages de déformation. Cette analyse, certes restrictive, car il n'est considéré ici que des composites simplifiés, permet de mettre en évidence un endommagement apparaissant sous de faible sollicitation. L'endommagement dans le propergol mesuré expérimentalement par l'essai Farris (voir le premier chapitre), indique pourtant qu'il apparait seulement vers 10%. Cependant, les méthodes utilisées pour mesurer un changement de volume, donc un endommagement, à de faible déformation macroscopique sont limitées par les solutions technologiques (capacité du capteur à mesurer de petite différences de volume, étanchéité de la chambre de mesure, etc, [Farris, 1964]). Il est donc raisonnable de situer la valeur limite pour laquelle l'endommagement apparait entre la valeur inférieure donnée par le modèle numérique simplifié (1%) et la mesure expérimentale (10%).

Conclusion

Ce chapitre permet de mettre en évidence de manière quantitative les phénomènes physiques microscopiques intervenant dans le propergol lorsque celui-ci est soumis à des sollicitations mécaniques. Une observation optique du propergol est possible, mais est plus lourde en moyen et en analyse. La solution retenue est une étude numérique. Des microstructures sont générées, représentatives des élastomères chargés. La fraction volumique des charges varie entre $30\% \leq c \leq 70\%$, afin de déterminer l'évolution des propriétés en fonction de cette fraction, tout en permettant de caractériser les propergols qui présentent un taux de charge proche de la limite supérieure. Seulement deux phases sont considérées pour la composite: la matrice et les charges. Une zone d'interphase autour des charges n'est pas prise en compte comme le suggère de récentes études Diani and Gilormini [2014] car le comportement mécanique à attribuer reste mal défini pour le propergol à ce jour. Cependant de telles considérations pourraient améliorer les simulations lors de futures études.

La viscoélasticité n'est pas prise en compte ici, et des simulations élastiques seulement sont réalisées. Le comportement homogène résultant du composite est déterminé à la fois de manière numérique et analytique. La comparaison et la bonne concordance entre les deux types de résultats permettent d'étendre la validité du modèle analytique jusqu'à de très forts taux de charge. Au niveau microscopique, un enregistrement local du comportement donne accès à la distribution des déformations dans la matrice lors d'une sollicitation macroscopique. Après calcul, la déformation moyenne dans la matrice suit une loi linéaire, fonction de la fraction volumique de charge.

Ensuite, lors d'une déformation macroscopique appliquée au composite, le réseau des charges le constituant se modifie. Les charges bougent et tournent les unes par rapport aux autres et participent à l'amplification des déformations de la matrice et en venant modifier l'espace géométrique qu'elle occupe. Pour finir, une analyse de la cavitation dans la matrice des composites permet de conclure que l'endommagement se manifeste théoriquement pour de petites déformations dans des élastomères très fortement chargés. Les déformations critiques pour lesquelles l'endommagement apparait mesurées expérimentalement sont supérieures aux valeurs calculées idéalement grâce aux microstructures, sans doute liées aux méthodes de mesure.

L'amplification des déformations contribue largement aux non-linéarités macroscopiques observées. En fonction de la déformation statique, la matrice du propergol subit une déformation locale bien plus importante, ce qui impacte ses propriétés visqueuses (aspect qui sera discuté et précisé par la suite), et donc les propriétés mécaniques macroscopiques du matériau. L'objectif est désormais de mettre en évidence les effets de la déformation statique sur le comportement viscoélastique du propergol. Des travaux précédents [Azoug, 2010] ont montré, pour certaines fréquences, une rigidification du module dynamique en fonction de cette pré-déformation, mais une caractérisation complète des propriétés visqueuses est maintenant nécessaire.

Chapitre 3

Caractérisation viscoélastique

Le chapitre précédent à permis de se rendre compte de manière quantitative de l'état de la matrice dans le propergol sous sollicitations mécaniques. Le fort taux de charges dans ce composite est à l'origine de l'amplification des déformations à l'échelle locale, qui lui même joue un rôle dans les non-linéarités du comportement visqueux observées. Ce chapitre se donne pour finalité de mettre en évidence le comportement viscoélastique non linéaire du propergol solide.

Le spectre des temps de relaxation $H(\tau)$ caractérise le comportement viscoélastique d'un élastomère. Une mesure directe du spectre est impossible, mais il peut être déduit à partir des modules de relaxation et dynamique, qui eux sont mesurables. Des essais de relaxation permettent de mesurer le module de relaxation (comportement dans le domaine temporel) et des essais de DMA permettent de mesurer le module dynamique complexe (comportement dans le domaine fréquentiel). Par ailleurs, les essais de DMA réalisés par Azoug [Azoug, 2010] montrent que les propriétés visqueuses du propergol ont une dépendance à la déformation statique multi-axiale.

L'objectif de cette partie est de donner une caractérisation complète des propriétés viscoélastiques du propergol en fonction de l'état de déformation. Les courbes maitresses des modules de relaxation et dynamique seront construites en fonction de la déformation statique, pour une température de référence de $+20^o$C. L'équivalence entre temps et température, valide pour les élastomères fortement chargés (voir [Neviere, 2006]), est utilisée afin d'obtenir les courbes maitresses des modules à partir d'essais isothermes.

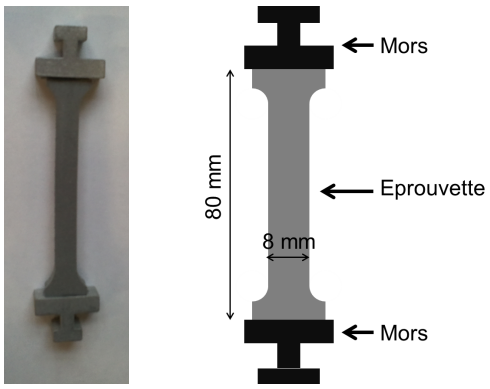
Dans un premier temps, les essais standards de la viscoélasticité seront effectués, à savoir essais de relaxation et DMA uni-axiaux, sur des éprouvettes uni-axiales standards. Puis dans un second temps, une description de la viscosité du propergol sous des sollicitations bi-axiales sera donnée. Pour ce faire, une machine dynamique bi-axiale est entièrement réalisée. Dans chaque domaine de caractérisation, la procédure expérimentale est d'abord décrite puis suivront les résultats correspondants.

3.1 Caractérisation viscoélastique uni-axiale

Lors d'essais de DMA réalisés pour une fréquence unique [Azoug, 2010], un balayage en déformation statique uni-axiale montre que le module dynamique est fonction de ce paramètre. Décrire la viscoélasticité d'un matériau est possible grâce aux modules de relaxation ou dynamique couvrant une large gamme de fréquence ou de temps. Le but de cette partie est d'obtenir l'évolution complète des modules en fonction du temps ou de la fréquence, mais aussi en fonction de la déformation statique uni-axiale. Il est à noter ici que les notations utilisées sont standards et sont couramment utilisées pour ce type d'essai, comme par exemple dans [Knauss et al., 2006].

3.1.1 Procédure expérimentale

Deux types d'essais vont être réalisés: essai de relaxation avec déformation statique uni-axiale et son dual, essai de DMA avec déformation statique uni-axiale. Une éprouvette uni-axiale standard est utilisée pour les deux types d'essais. Des mors sont collés à chaque extrémité de l'éprouvette, voir Figure 3.1, afin de fixer l'éprouvette dans les machines d'essais.



(a) (b)

Figure 3.1: Eprouvette uni-axiale utilisée pour les essais de relaxation et DMA avec déformation statique: éprouvette réelle (a) et schématique (b). Les mors sont collés sur les extrémités de l'éprouvette afin d'être fixés sur les machines d'essais.

Essai de DMA avec déformation statique

Les essais de DMA avec déformation statique sont réalisés de manière complète ici, à savoir pas seulement pour une seule fréquence, mais pour une large gamme de cette dernière. Des essais présentant des sollicitations similaires sont réalisés dans les travaux de Nguyen [Nguyen et al., 2013]. Une première déformation statique est imposée, puis, après stabilisation, une petite perturbation sinusoïdale est superposée (pour la mesure du module complexe). Pour ce faire, l'ensemble éprouvette/mors est monté dans un viscoanalyseur (Figure 3.3) muni d'une étuve. L'essai se décline comme suit (détail en Figure 3.2):

- Une première déformation statique ε_s est imposée à l'échantillon.
- Maintien de la déformation statique ε_s en vue de la stabilisation des contraintes.
- Un essai de DMA est réalisé en imposant une amplitude dynamique de déformation ε_d.

Afin de construire les courbes maitresses en utilisant l'équivalence entre temps et température, la démarche ci-dessus est donc répétée pour des températures comprises entre -90^oC et $+90^o$C avec un incrément de 5^oC. La vitesse de la rampe lors de la première phase n'influence pas les résultats. La période de maintien pour la stabilisation des contraintes est de 10 min. Les essais sont réalisés pour une amplitude de déformation dynamique de $\varepsilon_d = 0.02\%$. Pour chaque température, un balayage en fréquence entre 5 Hz et 100 Hz est réalisé.

Lors de la phase de mesure, pour une déformation imposée de la forme:

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_s + \varepsilon_d \ \sin[\omega \ (t - t_m)] \tag{3.1}$$

les contraintes, une fois stabilisées, peuvent se mettre sous la forme:

$$\sigma(t) = \sigma_s + \sigma_d \ \sin[\omega \ (t - t_m) + \delta] \tag{3.2}$$

et le module dynamique s'écrit:

$$E^*(\omega) = \frac{\sigma_d}{\varepsilon_d} \ (\cos[\delta] + i \ \sin[\delta]) \tag{3.3}$$

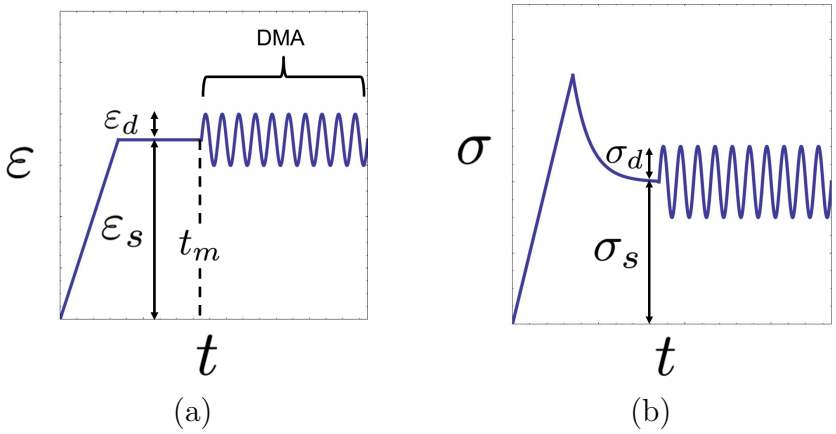


Figure 3.2: (a) Déformation de l'éprouvette en fonction du temps: une première déformation statique ε_s est imposée, suivie d'une phase de maintien pour stabiliser les contraintes, et enfin un essai de DMA est effectué avec une amplitude de déformation dynamique ε_d. (b) Schématisation de la réponse en contrainte du matériau en fonction du temps.

Figure 3.3: Viscoanalyseur Metravib utilisé pour réaliser les essais de DMA avec déformation statique

Essai de relaxation avec déformation statique

L'essai de DMA dans le domaine fréquentiel a pour équivalent l'essai de relaxation dans le domaine temporel. Ici une première déformation statique est imposée et, de même après stabilisation, une petite perturbation est superposée. Des essais similaires sont réalisés dans les travaux de Launay [Launay et al., 2011, 2013] et Castagnet [Castagnet,

2009, Teixeira-Pinto et al., 2013]. La forme du signal de la perturbation n'est plus une sinusoïde comme l'essai précédent, mais une marche de déformation, utile pour le calcul du module de relaxation. Pour ce faire, l'ensemble éprouvette/mors est monté sur une machine de traction pilotée en déplacement (Figure 3.5) munie d'une étuve. Les déformations sont mesurées à la fois par le capteur de déplacement machine, mais aussi par capteur optique. L'essai se décline comme suit (détail en Figure 3.4):

- Une première déformation statique ε_s est imposée à l'échantillon.
- Maintien de la déformation statique ε_s en vue de la stabilisation des contraintes.
- Un essai de relaxation est réalisé en imposant une marche de déformation ε_0.

Afin de construire les courbes maitresses en utilisant le principe de l'équivalence Temps/Température, la démarche ci-dessus est donc répétée pour des températures de $-60; -40; -20; +20^o$C. La vitesse de la rampe lors de la première phase n'influence pas les résultats. La période de maintien pour la stabilisation des contraintes est de 10 min. Les essais sont réalisés pour une valeur de marche de déformation de $\varepsilon_0 = 1.2\%$.

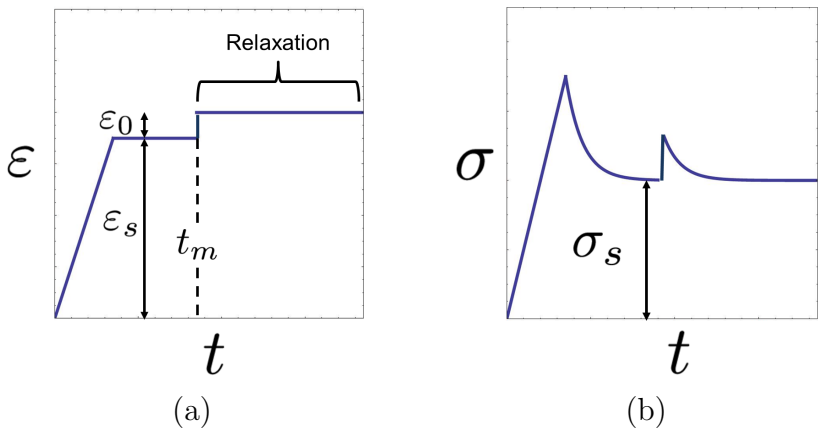


Figure 3.4: (a) Déformation de l'éprouvette en fonction du temps: une première déformation statique ε_s est imposée, suivie d'une phase de maintien pour stabiliser les contraintes, et enfin un essai de relaxation est effectué avec une marche de déformation ε_0. (b) Schématisation de la réponse en contrainte du matériau en fonction du temps.

Lors de la phase de mesure, la déformation imposée est de la forme:

$$\varepsilon(t) = \varepsilon_s + \varepsilon_0 \; h(t - t_m) \tag{3.4}$$

Par analogie avec les essais de DMA et la méthode de calcul du module dynamique avec déformation statique, le module de relaxation sera considéré égal à:

$$E(t) = \frac{\sigma(t - t_m) - \sigma_s}{\varepsilon_0} \tag{3.5}$$

Figure 3.5: Machine de traction Zwick 1474 utilisée pour réaliser les essais de relaxation avec déformation statique.

Comparaison des deux types d'essais

Dans les domaines temporel et fréquentiel, les essais mécaniques sont réalisés pour plusieurs températures. Les courbes maitresses des modules de relaxation et dynamique sont ensuite construites pour une température de référence de +20°C. Le passage du domaine temporel au fréquentiel (ou inversement) est possible en utilisant la transformée de Fourier (ou inverse). On se propose de comparer les deux types de résultats dans le domaine temporel. La transformée de Fourier inverse du module dynamique est calculée afin de reporter son équivalent dans le domaine temporel. En vue d'accélérer le temps de calcul de cette transformée inverse, la relation de passage

empirique suivante, développée en Annexe A, est utilisée:

$$E(t) = \|E^*(\frac{2*\pi}{t})\| \tag{3.6}$$

avec ω la fréquence angulaire, en rad/sec. L'utilisation de cette relation de passage permet de s'affranchir d'un calcul de transformée de Fourier inverse à chaque étape. La procédure expérimentale suivie est entièrement décrite dans la Figure 3.6. Une fois dans le domaine temporel, le spectre des temps de relaxation du propergol $H(\tau)$ est identifié sur la courbe maitresse complète du module de relaxation.

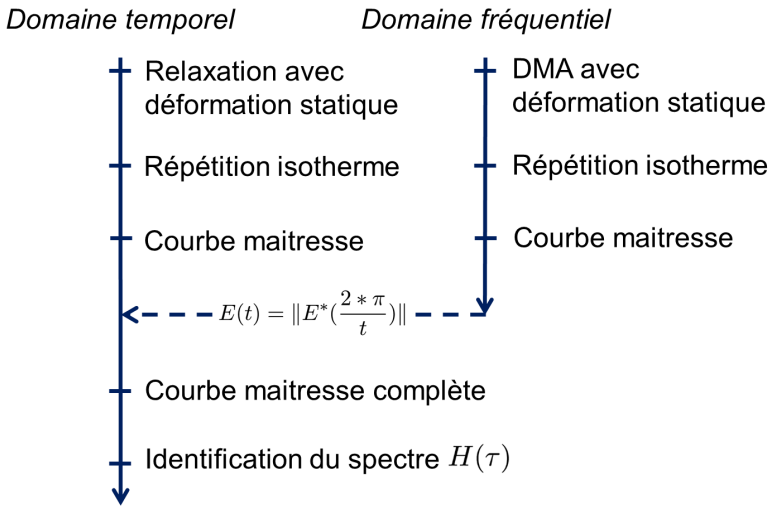


Figure 3.6: Démarche expérimentale mise en place pour les essais de relaxation et DMA avec déformation statique, suivie d'une comparaison des résultats dans le domaine temporel

Commentaires expérimentaux

Il est précisé ici qu'un même échantillon sert pour plusieurs mesures à différentes valeurs de déformations statiques. De plus, les résultats le démontrent, le phénomène caractérisé peut être qualifié de "réversible". L'ordre d'application de la déformation statique n'a pas d'importance. Par exemple, les résultats sont similaires que l'on fasse une mesure de DMA sur une même éprouvette à déformation statique de $\varepsilon_s = 3\%$ puis $\varepsilon_s = 5\%$, ou bien de $\varepsilon_s = 5\%$ puis $\varepsilon_s = 3\%$. Pour finir, les isothermes utilisées pour la construction des courbes maitresses sont obtenues à partir d'éprouvettes pour lesquelles la déformation statique est d'abord appliquée, puis le balayage de plusieurs température est effectué.

3.1.2 Résultats

Module dynamique avec déformation statique

Les essais sont réalisés pour des valeurs de déformation statique de $\varepsilon_s = 0$; 3; 4; 6 %. Le module dynamique est exprimé à partir de son amplitude $\|E^*\|$ et de son facteur de perte δ. Les mesures de ces deux grandeurs obtenues pour différentes isothermes sont présentées en Figure 3.7 (uniquement les résultats à déformation statique nulle sont présentés pour ne pas alourdir la présentation).

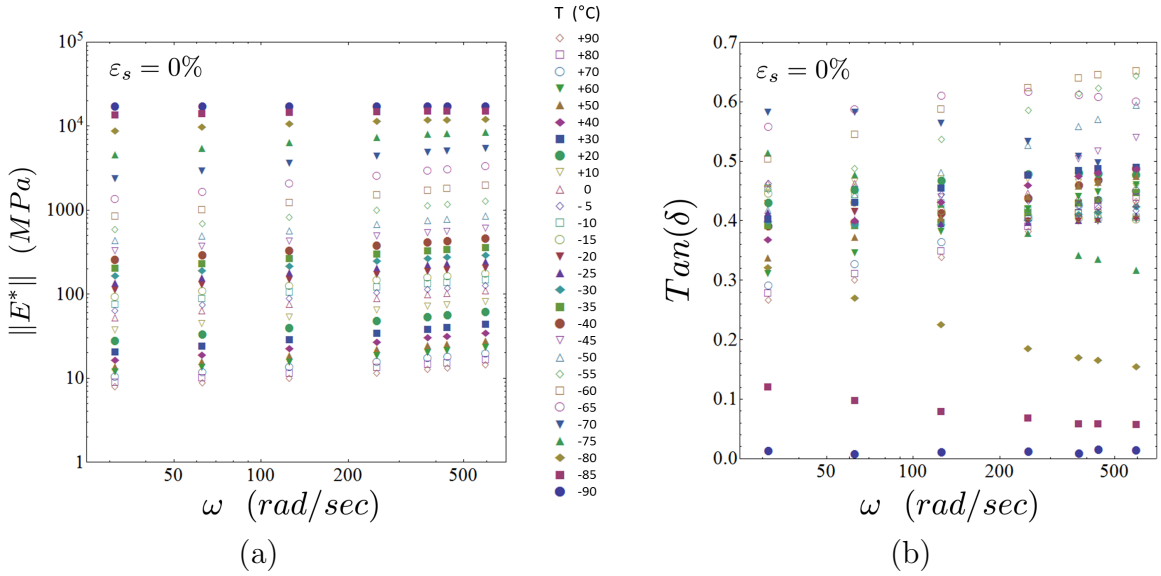


Figure 3.7: Mesure de (a) l'amplitude du module dynamique et (b) du facteur de perte pour différentes isothermes à déformation statique nulle.

A partir de ces mesures, les courbes maitresses de l'amplitude du module dynamique ainsi que du facteur de perte sont tracées en fonction de la fréquence de rotation ainsi que de la déformation statique respectivement en Figure 3.8 et Figure 3.9. La température de référence choisie est de 20°C. Ici, afin de simplifier les notations, la fréquence angulaire des abscisses correspond à la fréquence réduite, mais notée tout de même ω (au lieu de $\omega.a_T$ conventionnellement). Le facteur de translation des isothermes, qui permet d'obtenir les courbes maitresses, est calculé à partir des données de l'amplitude du module dynamique $\|E^*\|$, car l'identification du modèle repose sur cette grandeur (voir chapitre suivant). Cependant, la courbe maitresse résultante du facteur de perte δ en Figure 3.9, donne un résultat très satisfaisant.

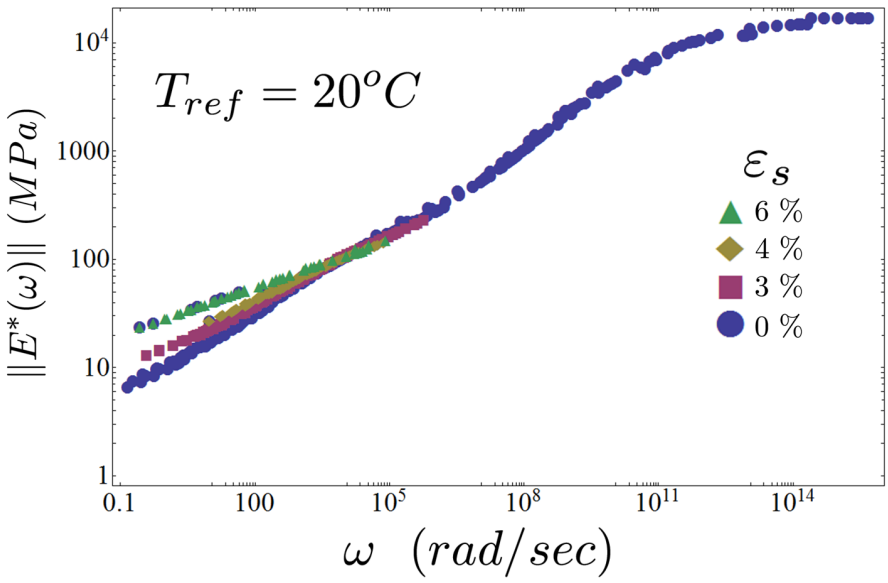


Figure 3.8: Évolution de l'amplitude du module dynamique en fonction de la fréquence de sollicitation et de la déformation statique imposée.

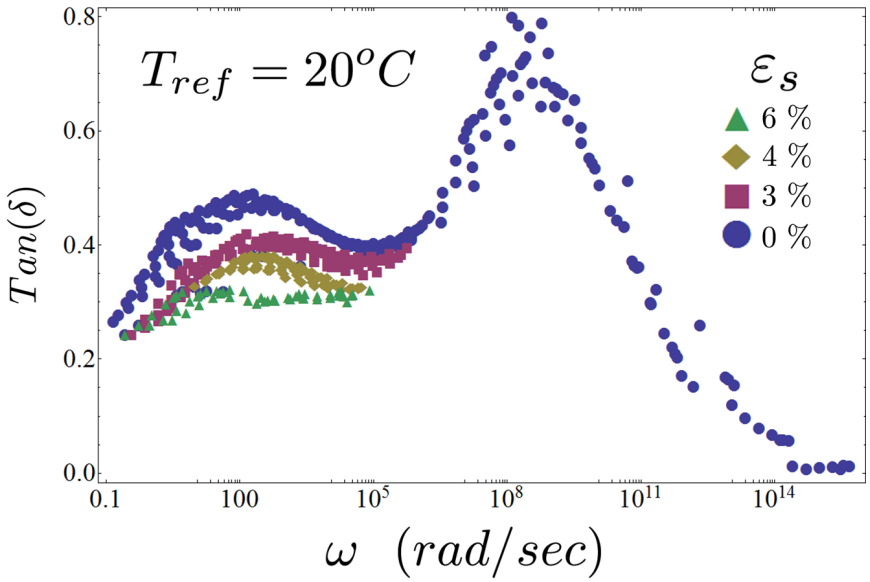


Figure 3.9: Évolution du facteur de perte du module dynamique en fonction de la fréquence de sollicitation et de la déformation statique imposée.

Le module dynamique en fonction de la fréquence peut être divisé en plusieurs parties. En analysant le module des hautes fréquences vers les basses fréquences, il se décompose comme suit:

- Aux très hautes fréquences ($10^{13} \leq \omega$ rad/sec), le module dynamique présente un plateau vitreux.
- Entre $10^5 \leq \omega \leq 10^{13}$ rad/sec, une première pente décrit l'évolution de l'amplitude du module, avec un premier pic du facteur de perte.

Dans ces deux premières gammes de sollicitations en fréquence, le module dynamique ne semble pas être impacté par une quelconque déformation statique.

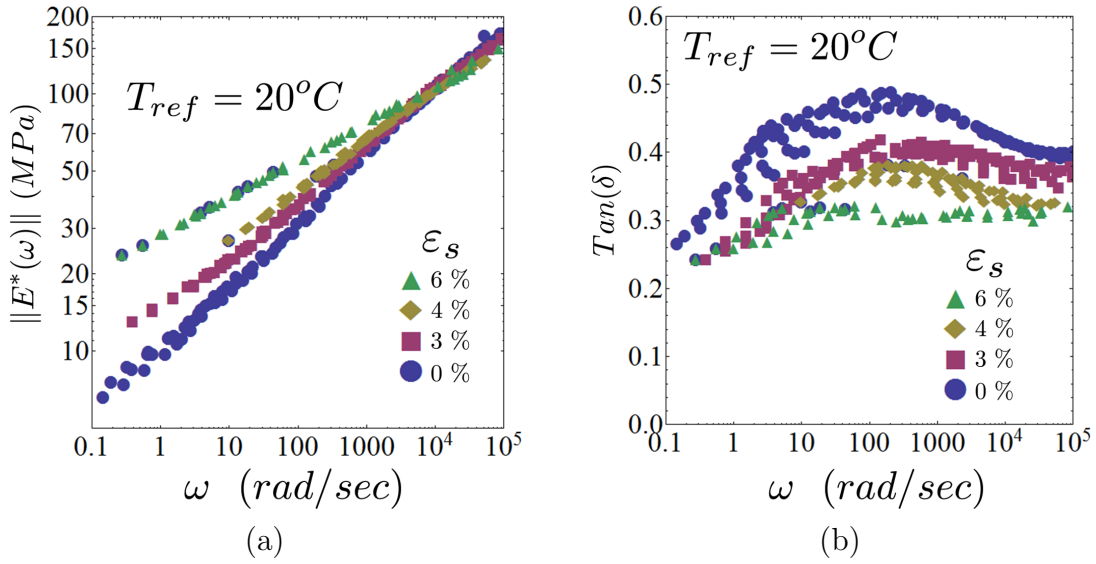
- Pour des fréquences comprises entre ($10^1 \leq \omega \leq 10^5$ rad/sec), l'évolution de l'amplitude du module présente une seconde pente et l'on retrouve un second pic dans les valeurs du facteur de perte, autour de 300 rad/sec.
- Pour des fréquences inférieures à ($\omega \leq 10^1$ rad/sec), l'amplitude du module décline une troisième pente. Un troisième pic dans les valeurs du facteur de perte peut être distingué autour de 10 rad/sec, mais qui a tendance à se confondre avec le second, pour ne donner qu'un seul et même maximum mais "étalé".

En revanche, dans ces deux dernières gammes de sollicitations en fréquence, le module dynamique dépend de la déformation statique.

La distinction de deux maximums locaux dans l'évolution du facteur de perte pour des fréquences inférieures à $\omega \leq 10^5$ rad/sec, ainsi que l'origine physique de ce phénomène sont largement discutés dans les travaux de Azoug [Azoug et al., 2014a,b,c, Azoug, 2010]. Une discussion sera faite plus loin dans cette partie.

Appliquer une déformation statique revient à modifier le module dynamique pour des fréquences inférieures à $\omega \leq 10^5$ rad/sec, voir en détail la Figure 3.10. Plus la déformation statique est grande, moins la seconde pente de l'amplitude du module est importante. Dans le même temps, le second maximum local du facteur de perte diminue. Ceci traduit bien une rigidification du matériau en fonction de la déformation statique. Les résultats obtenus pour des valeurs de déformation statique non nulles sont limités par les moyens expérimentaux. En effet, les essais réalisés avec une pré-déformation superposée à une déformation dynamique (pour la mesure du module), le tout à des températures négatives donne des niveaux de force qui sont aux limites des gammes supportées par la machine utilisée. Par exemple, il est impossible d'avoir accès

au plateau vitreux pour un essai à déformation statique de 6% (les niveaux d'efforts sont trop importants). Cependant, les résultats obtenus pour les trois niveaux de déformation statique permettent un recouvrement de la deuxième pente avec la courbe du module sans déformation statique, mais ne sont pas représentés ici pour plus de clarté.



(a) (b)

Figure 3.10: Détail de l'évolution de (a) l'amplitude et (b) du facteur de perte du module dynamique en fonction de la fréquence de sollicitation et de la déformation statique imposée.

Le module dynamique est donné en Figure 3.11 en fonction de la déformation statique pour une fréquence de sollicitation unique de 5 Hz. On retrouve l'augmentation de l'amplitude du module et la chute du facteur de perte, résultats mis en évidence par Azoug et Thorin [Thorin et al., 2013]. Comme le module de relaxation, on notera ici la présence d'un seuil à 1% de déformation statique. Au dessus de cette valeur, le module évolue de manière non linéaire. En dessous de cette valeur, le module est indépendant de la déformation statique. On parle de viscoélasticité linéaire.

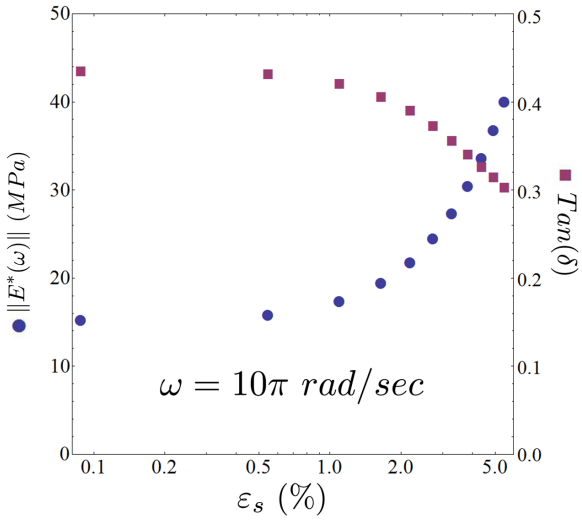


Figure 3.11: Évolution de l'amplitude et du facteur de perte du module dynamique en fonction de la déformation statique pour une fréquence de sollicitation de 5 Hz.

Les facteurs de translations a_T utilisés pour obtenir les courbes maitresses à 20°C à partir des isothermes sont donnés en Figure 3.12. Ces facteurs de translation ajustent la courbe de l'amplitude dynamique du module. Les coefficients de la loi WLF sont identifiés plus loin dans cette partie.

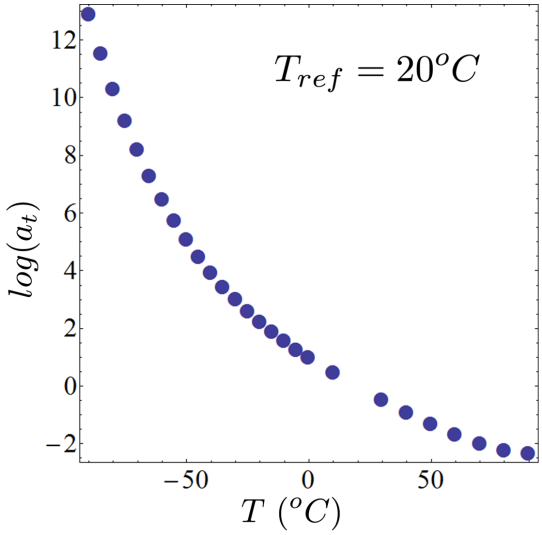


Figure 3.12: Valeurs des facteurs de translation a_T utilisés pour construire les courbes maitresses du module dynamique pour une température de référence de 20°C. Ces facteurs sont calculés pour ajuster la courbe de l'amplitude du module dynamique.

Module de relaxation avec déformation statique

Les essais sont réalisés pour des valeurs de déformation statique de $\varepsilon_s = 0$; 1.2; 2.5; 3.7; 5; 6; 7.2; 8.4 %. Les mesures du module de relaxation obtenues pour différentes isothermes sont présentées en Figure 3.13 (uniquement les résultats à déformation statique nulle sont présentés pour ne pas alourdir la présentation).

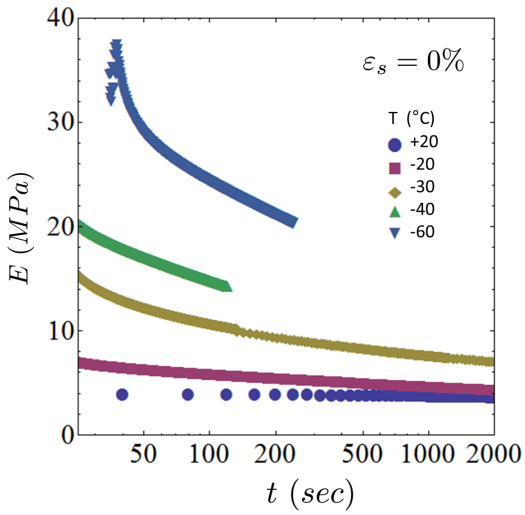


Figure 3.13: Mesure du module de relaxation pour différentes isothermes à déformation statique nulle.

A partir de ces mesures, les courbes maitresses des modules de relaxation en fonction du temps et de la déformation statique pour une température de référence de 20°C sont tracées en Figure 3.14. Afin de simplifier les notations, le temps des abscisses est le temps réduit, mais noté tout de même t (au lieu de $\frac{t}{a_T}$ conventionnellement).

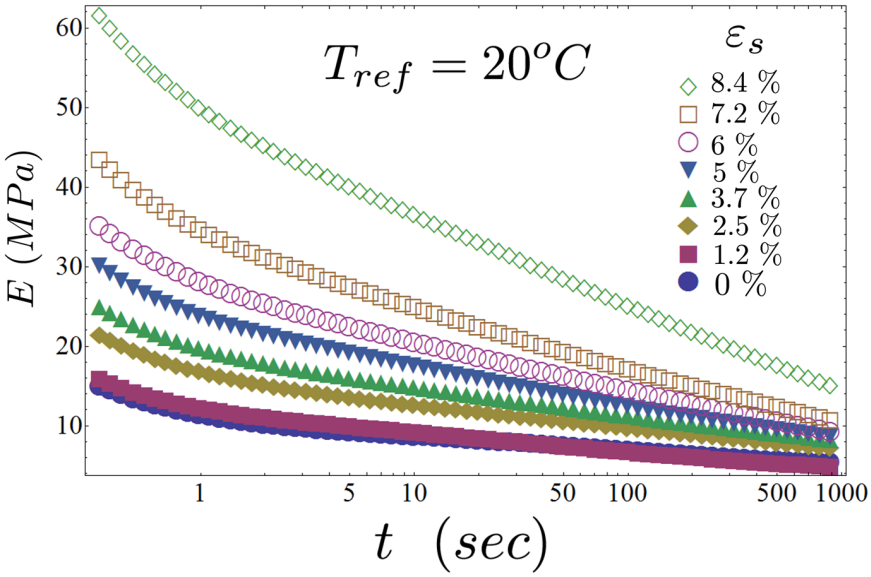


Figure 3.14: Module de relaxation en fonction du temps, pour plusieurs valeurs de déformation statique.

L'examen de cette figure montre que le module de relaxation évolue de manière non linéaire en fonction de la déformation statique. Pour plus de précisions, la Figure 3.15 retrace l'évolution du module en fonction de la déformation statique pour un temps donné de $t = 0.03$ sec. En dessous d'un certain seuil de déformation statique, environ 1%, le module n'évolue pas. Au-delà de ce seuil, le module de relaxation tend à rigidifier. La viscoélasticité du propergol est dite linéaire en dessous de ce seuil.

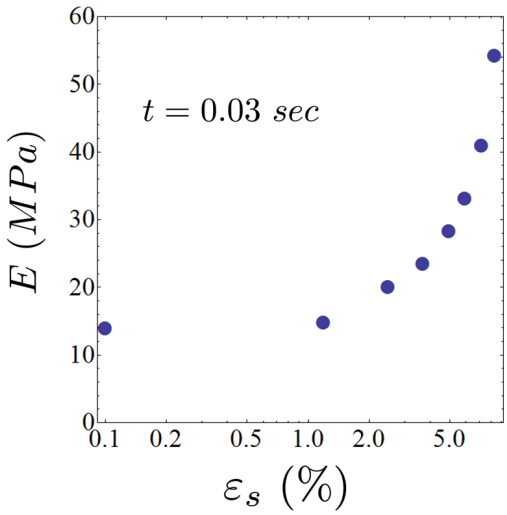


Figure 3.15: Evolution du module de relaxation en fonction de la déformation statique, pour un temps de 0.03 *sec*.

Les facteurs de translations a_T utilisés pour obtenir les courbes maitresses à 20°C à partir des isothermes sont donnés en Figure 3.16. Les coefficients de la loi WLF sont identifiés plus loin dans cette partie.

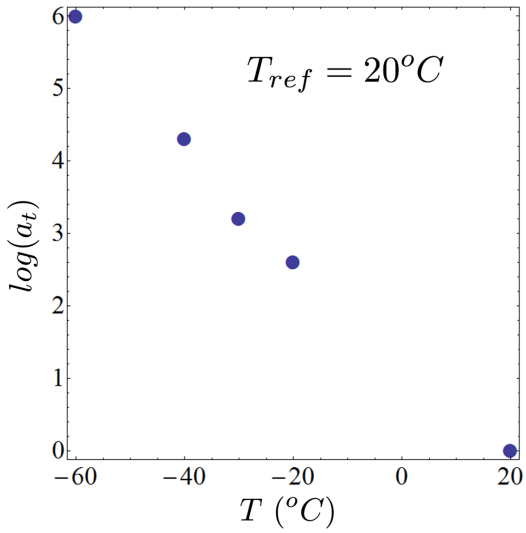


Figure 3.16: Valeurs des facteurs de translation a_T utilisés pour construire les courbes maitresses du module de relaxation pour une température de référence de 20°C.

Comparaison des modules de relaxation et dynamique

Deux types de résultats sont disponibles, dans les domaines temporel (module de relaxation) et fréquentiel (module dynamique). Afin de pouvoir comparer les deux, les résultats du domaine fréquentiel sont ramenés dans le domaine temporel (transformer le module dynamique en module de relaxation équivalent). Pour ce faire, la formule empirique $E(t) = \|E^*(\frac{2*\pi}{t})\|$ est utilisée (voir Figure 3.6). Ainsi deux familles de données modules de relaxation sont obtenues: une famille de données de module de relaxation issue directement d'une mesure de relaxation et une famille de données de module de relaxation issue d'une mesure de DMA. Par "addition" entre ces deux familles de données, la courbe maitresse complète du module de relaxation en fonction du temps mais aussi en fonction de la déformation statique est construite. Les résultats viscoélastiques linéaires, à savoir pour des déformations statiques inférieures à 1%, seront d'abord comparés, puis suivra la comparaison des résultats non linéaires.

Viscoélasticité linéaire

La Figure 3.17 donne la courbe maitresse complète du module de relaxation en fonction du temps, dans le régime linéaire (à savoir en dessous de 1% de déformation statique). L'abscisse est le temps réduit, noté t. Il y a une bonne recouvrance entre les deux types de résultats (3 décades de temps). Le module de relaxation est donné pour une gamme de temps de 23 décades.

Par analogie avec le travail effectué précédemment, la courbe du module de relaxation se décompose en quatre parties. La viscoélasticité macroscopique (donc les propriétés viscoélastiques) d'un élastomère est reliée à des phénomènes physiques microscopiques: la mobilité moléculaire. De plus, on rappelle ici que le propergol est un élastomère chargé, avec une matrice polyphasée: une phase correspond au réseau de polymère réticulé qui participe à la cohésion des charges entres elles et une seconde phase qui est constituée de chaines de polymère libre, non réticulé, qui se trouve au travers du réseau principal.

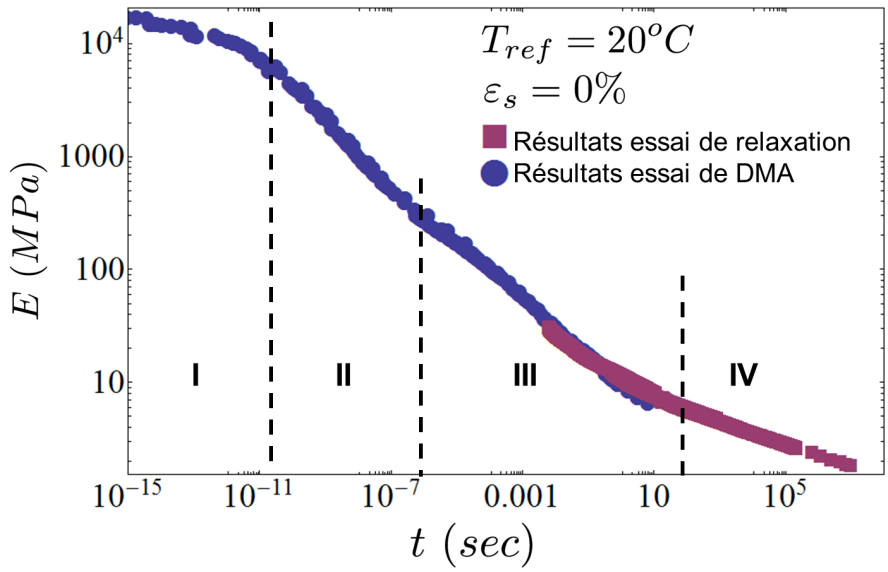


Figure 3.17: Courbe maitresse complète du module de relaxation linéaire ($\varepsilon_s = 0\%$), pour une température de référence de 20°C, obtenue par "addition" entre les résultats issus des essais de relaxation et de DMA.

En s'appuyant sur ces observations et en utilisant les travaux identiques réalisés en utilisant la Relaxation Magnétique Nucléaire par Azoug [Azoug et al., 2014a], Litvinov [Litvinov and Steeman, 1999] et Mowery [Mowery et al., 2005], à chaque partie de la courbe de relaxation peut être attribuée une origine physique:

I Aux temps très courts ($t \leq 10^{-10}$ sec), le module présente un plateau vitreux.

II Une première décroissance du module de relaxation est enregistrée, avec une première pente, pour des temps compris entre $10^{-10} \leq t \leq 10^{-6}$ sec. Cette partie de courbe est attribuée à la mobilité moléculaire du réseau principal réticulé (voir Figure 3.21).

III Une deuxième décroissance du module de relaxation est observée, avec une deuxième pente, pour des temps compris entre $10^{-6} \leq t \leq 10^2$ sec. Cette deuxième partie est la mesure de la mobilité moléculaire qui s'exprime dans les chaines de polymère libre (voir Figure 3.21(a)).

IV Enfin une troisième partie, avec une troisième pente est mise en évidence pour des temps supérieurs à $10^2 \leq t$ sec. Elle correspond à la mobilité moléculaire aux temps dit "longs" de l'ensemble des chaines de la matrice.

La Figure 3.18 permet de comparer les valeurs des facteurs de translation utilisés pour construire les courbes maitresses des modules de relaxation et dynamique. Les valeurs issues des deux essais s'inscrivent dans la même évolution et peuvent être modélisées par une loi WLF:

$$log(a_T) = \frac{-C_1(T - T_{ref})}{C_2 + T - T_{ref}} \tag{3.7}$$

avec ici $T_{ref} = 20^o$C, et les paramètres $C_1 = 8.852$ et $C_2 = 168.252^o$C identifiés en utilisant le solver NonLinearModelFit de Mathematica® [Wolfram].

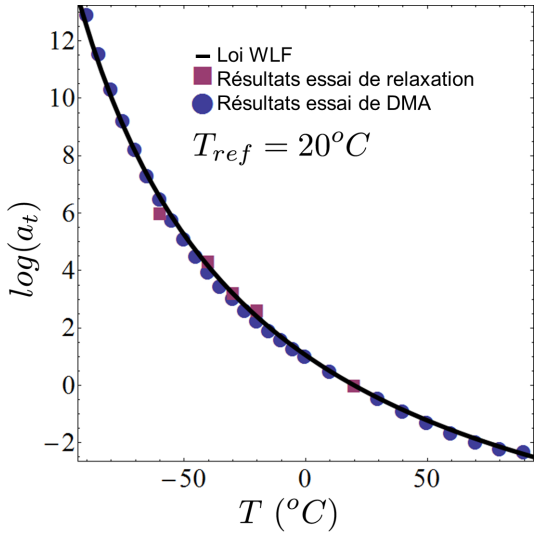


Figure 3.18: Comparaison des facteurs de translation utilisés pour construire la courbe maitresse du module de relaxation et ceux utilisés pour le module dynamique. Modélisation de l'ensemble des résultats par une loi WLF.

Viscoélasticité non linéaire

Les résultats expérimentaux pour une déformation statique supérieure à 1% sont maintenant pris en compte. Une fois les modules dynamiques convertis dans le domaine temporel, il sont comparés aux modules de relaxation, voir la Figure 3.19 avec un grossissement en Figure 3.20. Il y a une bonne recouvrance des deux types de résultats pour des déformations statiques de $0; 3; 4; 6\%$. Les courbes maitresses complètes des modules de relaxation en fonction du temps mais aussi de la déformation statique sont donc obtenues.

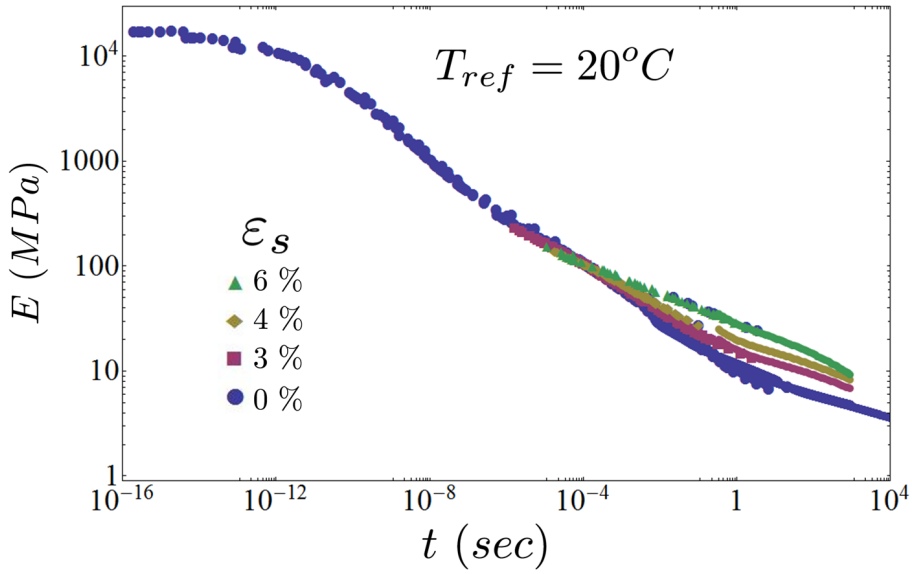


Figure 3.19: Courbes maitresses complètes du module de relaxation non linéaire en fonction du temps et de la déformation statique, pour une température de référence de 20°C, obtenues par "concaténation" entre les résultats issus des essais de relaxation et de DMA.

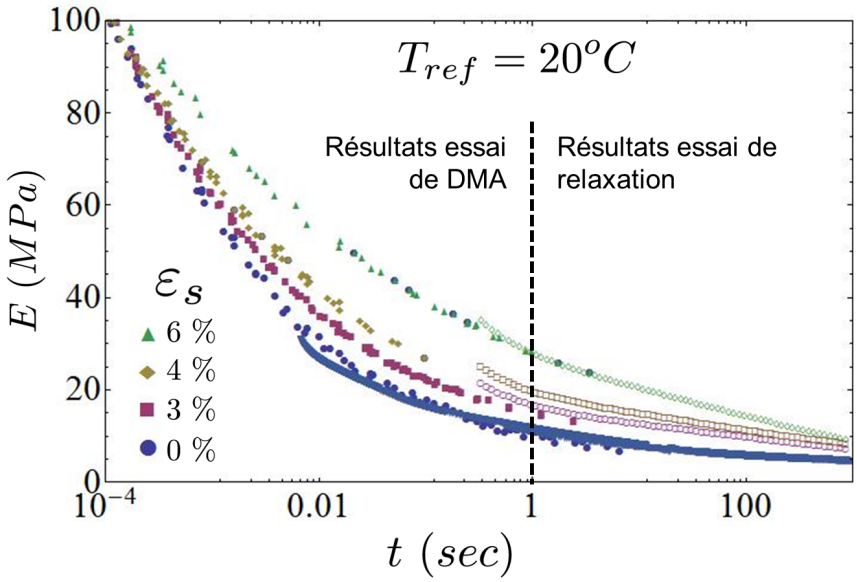


Figure 3.20: Grossissement de la Figure 3.19 pour les temps compris entre $10^{-4} \leq t \leq 10^5$ sec. Bonne recouvrance entre les résultats issus des essais de relaxation et ceux issus de DMA.

Seule la partie de la courbe numérotée III est affectée par la déformation statique. La mobilité moléculaire du réseau principal est inchangée. Par contre les

chaines de polymère libres se retrouvent "prisonnières" et comprimées entre les charges et le réseau principal quand une déformation statique est imposée (Figure 3.21(b)). En considérant une faible déformation statique au niveau macroscopique, le chapitre précédent à mis en évidence de manière quantitative une amplification des déformations de la matrice au niveau local, donc une importante modification du réseau de chaines de polymère réticulées. Les chaines de polymère libre à travers ce réseau principal ont donc une liberté de mouvement modifiée. Ce changement de mobilité moléculaire vient directement impacter les modules de relaxation et dynamique, et donc le spectre des temps de relaxation. Cette conclusion est cohérente avec les résultats des travaux de Zimm et Lumpkin [Zimm and Lumpkin, 1993] qui attribuent une énergie de déformation propre aux chaines de polymère libres qui est modifiée en fonction de la déformation. Dans ce sens, les études de Simhambhatla et Leonov [Simhambhatla and Leonov, 1995] confirment ces effets observés. Elles mettent en évidence deux types de rigidification dans les élastomères fortement chargés. La première rigidification affecte la partie élastique du comportement, dû à l'ajout des charges elles mêmes (fonction de renfort). La seconde rigidification affecte la partie visqueuse, due à la modification de la mobilité moléculaire des chaines de polymère libres.

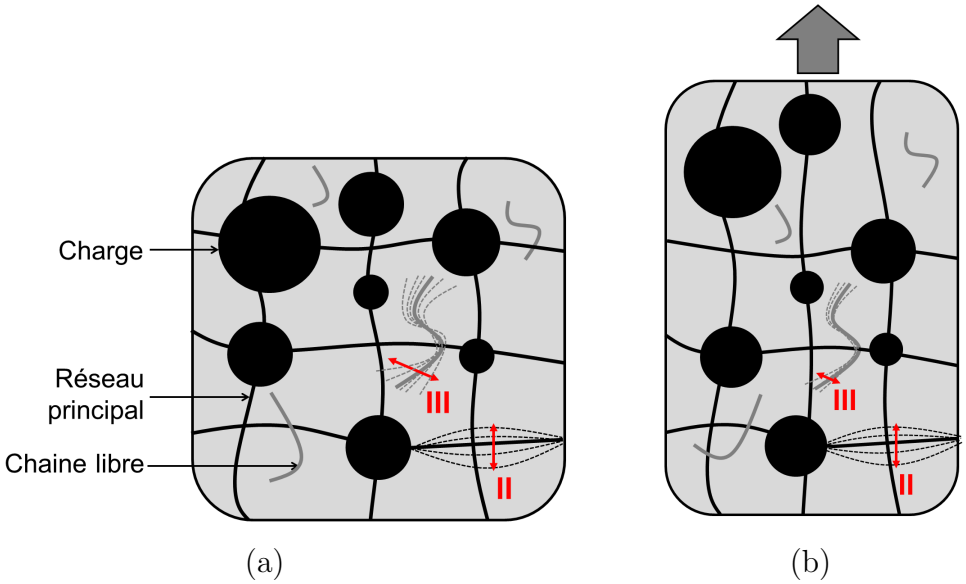


Figure 3.21: Schématisation des mouvements moléculaires de chaque phase de la matrice: mouvement moléculaire du réseau principal II et des chaines de polymère libres III: (a) le propergol est au repos, grande amplitude pour II et III, (b) le propergol est soumis à une déformation statique, grande amplitude pour II mais amplitude réduite pour III qui est comprimé par les charges et le réseau principal.

La Figure 3.22 compare, en fonction de la déformation statique, les valeurs du

module de relaxation pour un temps de 0.03 sec et les valeurs du module dynamique pour une fréquence équivalente, soit $f = 5$ Hz (on a bien $0.03 = \frac{1}{2\ \pi\ f}$). Les deux types d'essais donnent les mêmes résultats. La rigidification du propergol à partir d'un certain seuil de 1% de déformation est mesurable dans le domaine temporel et fréquentiel, et équivalent. Le petit écart entre les deux résultats peut s'expliquer par l'effet Payne (les essais de relaxation sont réalisés avec une marche de déformation supérieure à l'amplitude dynamique des essais de DMA: $\varepsilon_d \leq \varepsilon_0$), ainsi que par les incertitudes liées aux mesures. De plus, comme montré au chapitre précédent, l'endommagement peut déjà intervenir pour les valeurs de déformations statiques considérées.

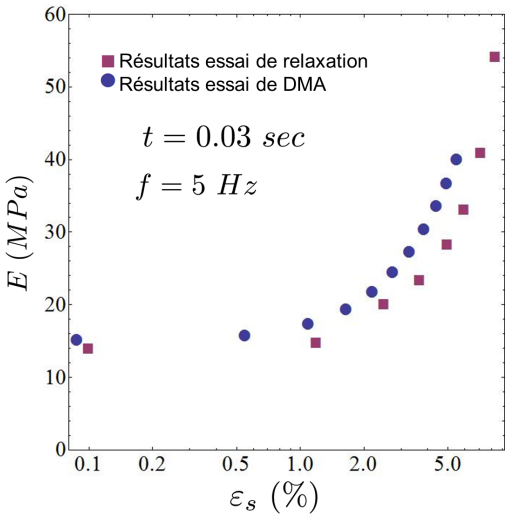


Figure 3.22: Évolution du module de relaxation pour un temps de $t = 0.03\ sec$ en fonction de la déformation statique comparée avec l'évolution de l'amplitude du module dynamique pour une fréquence équivalente de $f = 5\ Hz$.

En utilisant l'équivalence temps/température, les essais de relaxation et de DMA superposés à une déformation statique permettent de donner l'évolution des modules de relaxation et dynamique en fonction de ce paramètre. Grâce à la transformée de Laplace inverse, tous les résultats rapportés dans le domaine temporel se superposent bien et donnent la courbe maitresse de relaxation pour une gamme de temps de 23 décades, en fonction de la déformation imposée. L'application d'une déformation vient comprimer les chaines de polymère libres présentes dans la matrice entre les charges et le réseau principal. La mobilité moléculaire de ces chaines est donc modifiée dans le même temps, ce qui impacte directement les propriétés mécaniques. Plus la déformation statique imposée est importante, plus la mobilité des chaines libres est réduite, plus le matériau rigidifie.

3.2 Caractérisation viscoélastique bi-axiale

La viscoélasticité du matériau est désormais entièrement déterminée dans le cadre linéaire, et les non linéarités engendrées par l'application d'une déformation uni-axiale sont mises en évidence et bien comprises. La question se pose maintenant de l'influence, sur les propriétés viscoélastiques du matériau, d'une déformation dans le sens transverse superposée à une déformation axiale. Une première approche proposée par Azoug [Azoug et al., 2013b] montre que la déformation transverse joue également un rôle sur l'évolution des propriétés visqueuses. Cette partie a pour objectif de caractériser plus précisément l'influence de la déformation statique multi-axiale. Une machine de sollicitation dynamique bi-axiale est conçue afin de balayer une gamme d'état de déformation plus large. Une seule fréquence et une seule amplitude dynamique seront retenues, mais un balayage complet de l'espace des déformations statique sera réalisé.

3.2.1 Machine bi-axiale

Obtenir différents états de déformations multi-axiaux à l'aide d'une machine de sollicitation uni-axiale est possible en modifiant les géométries des éprouvettes utilisées. La flexion trois ou quatre points pour obtenir de la traction/compression à partir d'un mouvement unique [Sideridis and Papadopoulos, 2004, Alix et al., 1994] ou encore des éprouvettes trouées pour obtenir un état de déformation bi-axiale au centre [Bellett et al., 2011]. Les types de déformations recherchés ici conduisent à retenir la solution d'une machine bi-axiale pour imposer des sollicitations bi-axiales [Brieu et al., 2007, Johlitz and Diebels, 2011].

Quatre moteurs électriques NTM-207 munis de guidages linéaires ISOMOVE 50, fournis par la société SNT [SNT] sont disposés deux à deux par l'intermédiaire d'un cadre en acier rigide. Le cadre est maintenu à une hauteur de 1.5 m par une structure de menuiserie en aluminium, fournie par la société Elcom [Elcom]. Une image réelle de la machine est donnée en Figure 3.24 et le schéma de principe correspondant est donné en Figure 3.23. Le pilotage des moteurs se fait par l'intermédiaire du logiciel PowerTool® prévu à cet effet. Les vérins se pilotent en imposant à la fois déplacement, vitesse et accélération. Le câblage réalisé permet un pilotage distinct des vérins, un pilotage synchronisé deux à deux ou une synchronisation totale des vérins. La course maximum d'un vérin est de 50 mm pour une vitesse maximum (à vide) de 100 mm/sec et une accélération de 1000 mm/sec^2 Les plans complets de la machine sont donnés en Annexe B.

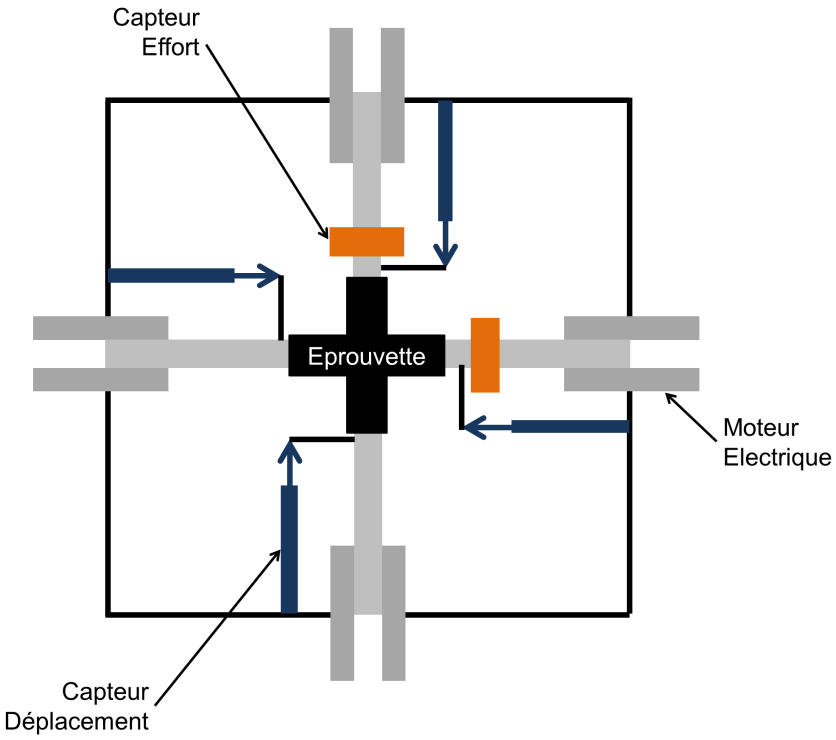


Figure 3.23: Schéma de principe de la machine bi-axiale utilisée pour réaliser les essais multi-axiaux

Chaque vérin électrique est muni d'un capteur de déplacement WA-T Linear Variable Differential Transformer (LVDT) de la société HMB [HBM] d'une course maximum de 30 mm (voir Figure 3.25). Le système n'étant pas asservi, ces capteurs permettent de mesurer le déplacement réel en bout de bras de chaque vérin. Chaque axe est doté d'un capteur d'effort U9B de la société HBM [HBM], avec une capacité maximale de 1000 N (voir Figure 3.25). L'alimentation électrique des capteurs, le conditionnement ainsi que la récupération des signaux de mesures de ces deux types de capteur se fait par l'intermédiaire d'un unique boitier d'acquisition QuatumX MX 840 de la société HBM [HBM], qui permet de gérer la synchronisation des mesures.

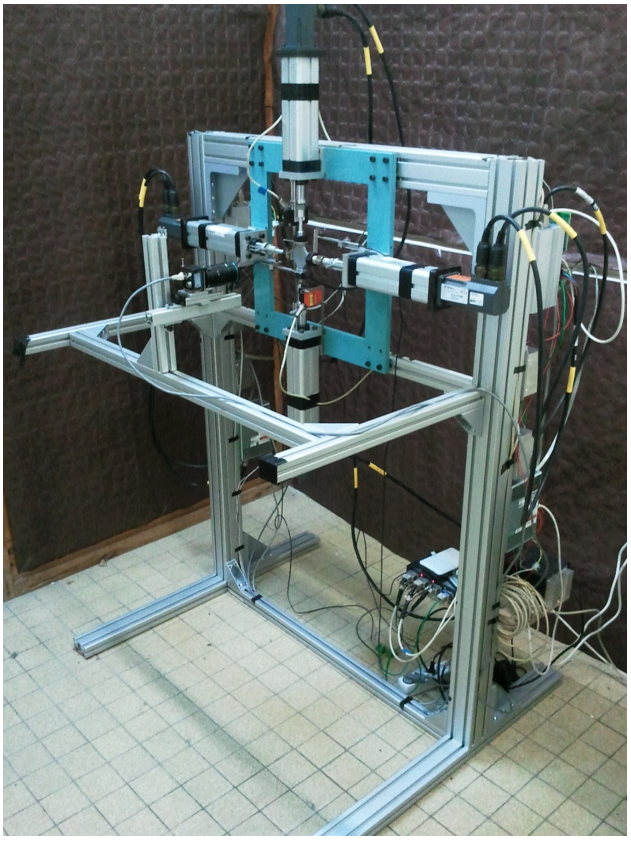


Figure 3.24: Vue d'ensemble réelle de la machine bi-axiale utilisée pour réaliser les essais multi-axiaux

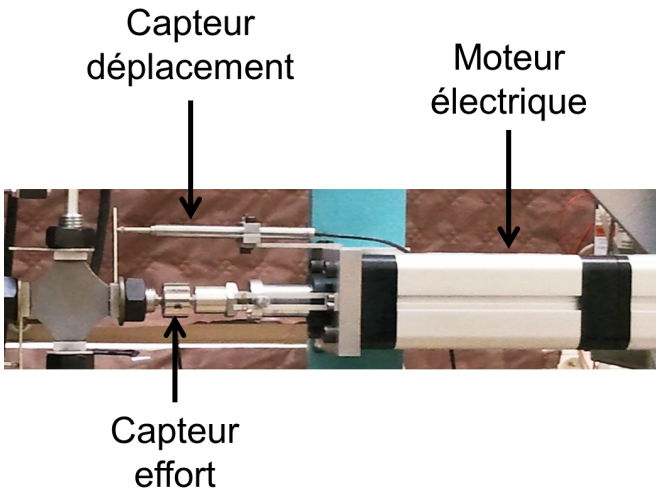


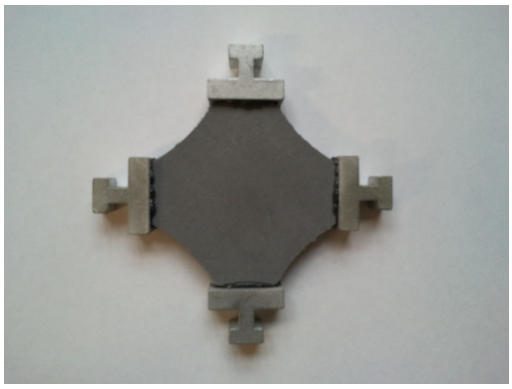
Figure 3.25: Détail du moteur électrique utilisé, doté d'un capteur de déplacement LVDT d'une course de 30 mm ainsi qu'un capteur d'effort de capacité 1000 N.

3.2.2 Éprouvette bi-axiale

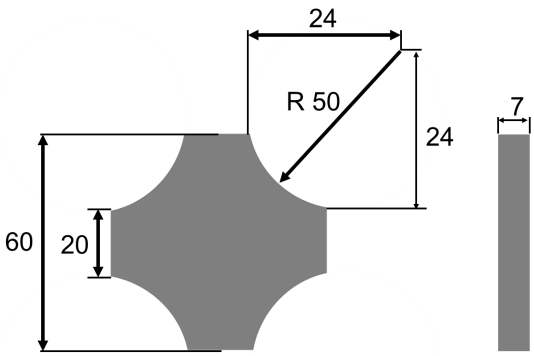
Indépendamment du type d'architecture de machine bi-axiale choisi, l'éprouvette reste l'enjeu majeur lors d'un essai bi-axial. Elle doit remplir plusieurs fonctions. Certes elle doit pouvoir s'adapter à la machine utilisée, mais sa géométrie doit également éviter les concentrations de contraintes et donner une zone dite "homogène" au centre la plus large possible, afin de faciliter les mesures. La zone "homogène" est la partie centrale de l'éprouvette pour laquelle contrainte et déformation restent homogènes quel que soit le type de sollicitation.

La forme la plus classique pour une éprouvette bi-axiale est une croix [Smits et al., 2006, Marco et al., 2002]. En jouant sur la longueur des bras de l'éprouvette, sur le rayon du congé de raccordement, l'épaisseur de la zone centrale, il est possible d'obtenir une géométrie optimisée [Bhatnagara et al., 2007]. L'ajout de trous oblongs le long des bras de l'éprouvette augmente la taille de la zone homogène [Zidane et al., 2008], cependant cette technique n'est pas retenue ici vis à vis des aspects de sécurité de réalisation technologique (usinage dans un matériau explosif).

Après avoir réalisé une étude d'optimisation développée en Annexe C, la forme de l'éprouvette retenue est donnée en Figure 3.26(a), les dimensions sont schématisées en Figure 3.26(b). La forme de cette éprouvette est dictée par le procédé d'obtention.



(a)

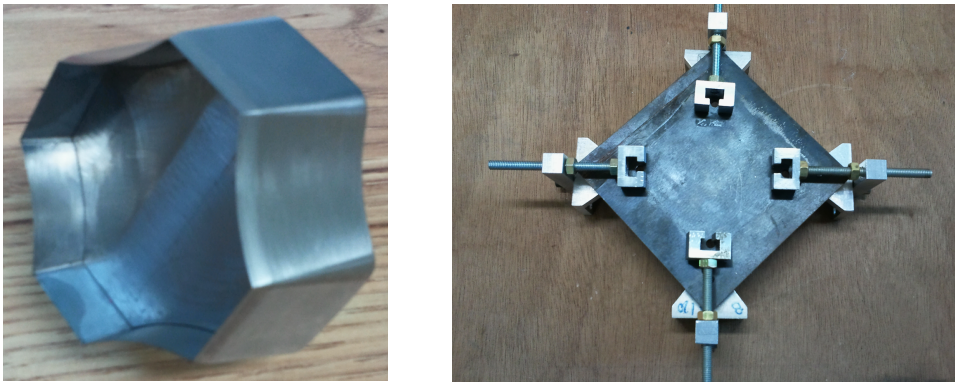


(b)

Figure 3.26: (a) Éprouvette en croix utilisée pour les essais bi-axiaux avec les mors collés à chaque extrémité permettant de la fixer à la machine. (b) Dimensions et géométrie de l'éprouvette retenue, forme en croix avec un très grand rayon du congé de raccordement.

A partir d'une plaque de propergol d'épaisseur 7 mm, l'éprouvette est découpée grâce à un emporte pièce (Figure 3.27(a)) par l'intermédiaire d'une presse. Des mors sont collés sur chaque extrémité de l'éprouvette afin de pouvoir la fixer à chaque bras

de la machine bi-axiale (Figure 3.26(a)). Le dispositif de collage est montré en Figure 3.28(a). Le principe de fixation de l'éprouvette sur la machine bi-axiale est décrit en Figure 3.28(b)



(a) (b)

Figure 3.27: (a) Emporte pièce permettant de découper l'éprouvette à la presse à partir d'une plaque de propergol. (b) Dispositif de collage des mors sur les extrémités de l'éprouvette.

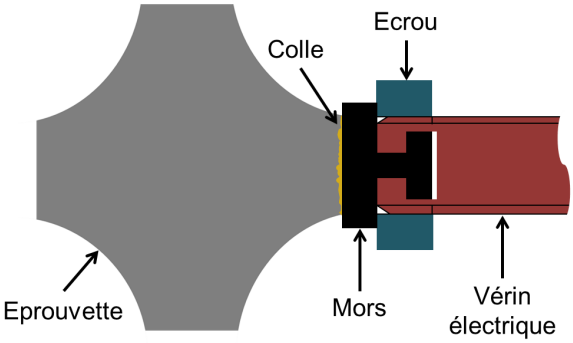


Figure 3.28: Schématisation du principe de fixation de l'éprouvette sur la machine bi-axiale.

3.2.3 Méthode de mesure

Lors d'essais mécaniques, la grandeur utile est le couple contrainte/déformation. Pour le cas d'un essai bi-axial, l'attention est portée sur les valeurs de ce couple au niveau de la zone homogène (donc centrale) de l'éprouvette. L'enjeu est de retrouver les états de contrainte/déformation au centre de l'éprouvette à partir de mesures macroscopiques. La méthode utilisée pour ce faire est identique à celle décrite par Azoug [Azoug, 2010].

La machine bi-axiale est dotée de capteurs qui donnent accès aux efforts F_i et aux déplacement U_i de chaque extrémité de l'éprouvette, voir détail en Figure 3.29. Par symétrie, on se limite à l'étude des deux branches dans les directions X_1 et X_2. Connaissant les sections et les dimensions de l'éprouvette, on définit le vecteur des déformations macroscopiques $\underline{e}$ en bout de bras d'éprouvette par

$$\underline{e} = \begin{pmatrix} e_1 \\ \\ e_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{U_1}{l_1} \\ \\ \frac{U_2}{l_2} \end{pmatrix} \tag{3.8}$$

De même, on définit le vecteur des contraintes macroscopiques $\underline{\Sigma}$ par

$$\underline{\Sigma} = \begin{pmatrix} \Sigma_1 \\ \\ \Sigma_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{F_1}{S_1} \\ \\ \frac{F_2}{S_2} \end{pmatrix} \tag{3.9}$$

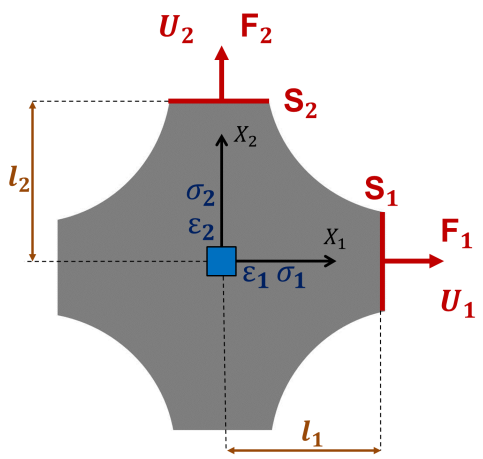


Figure 3.29: Schématisation de l'éprouvette et définition des différents paramètres utilisés.

Il est supposé ici que les états de contraintes $\boldsymbol{\sigma}$ et de déformations $\boldsymbol{\varepsilon}$ au centre de l'éprouvette sont des fonctions linéaires des contraintes et déformations macroscopiques. Le passage des uns aux autres se fait par les fonctions de transferts des déformations L_ε et des contraintes L_σ définies par:

$$\boldsymbol{\sigma} = L_\sigma \underline{\Sigma} \qquad \boldsymbol{\varepsilon} = L_\varepsilon \underline{e} \tag{3.10}$$

Les fonctions de transferts sont calculées par la méthode des Éléments Finis (Figure 3.30). L'éprouvette est modélisée et une simulation élastique incompressible d'essais bi-axial est réalisée avec un module d'Young unitaire de 1 MPa et un coefficient de poisson de 0.49. Une hypothèse est faite ici: les fonctions de transferts sont supposées être identiques en élasticité et en viscoélasticité.

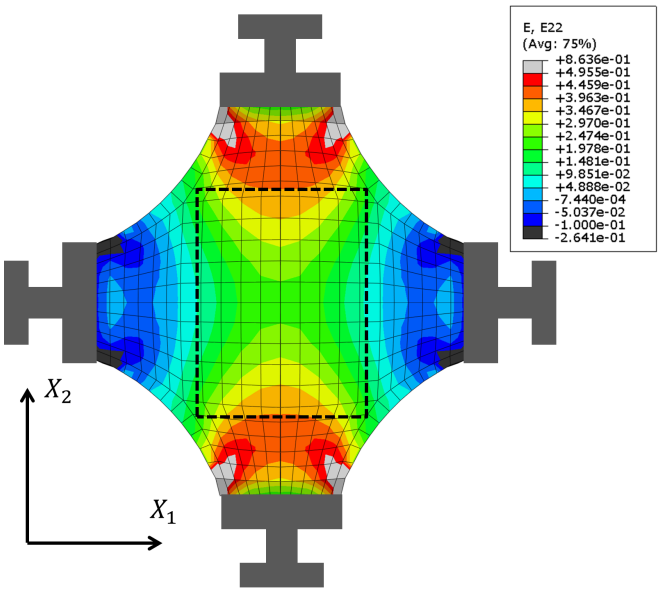


Figure 3.30: Calcul par éléments finis des fonctions de transferts de déformations et de contraintes. Est présentée ici la déformation dans la direction X_2 pour une déformation macroscopique nulle suivant X_1 et de 5% suivant X_2.

Les résultats indiquent que le cisaillement est négligeable dans la zone centrale de l'éprouvette. Les tenseurs $\boldsymbol{\sigma}$ et $\boldsymbol{\varepsilon}$ sont donc diagonales dans cette zone. La nature incompressible du matériau implique une trace des déformations nulle. La géométrie de l'éprouvette pose le problème en contrainte plane et implique une contrainte dans la direction X_3 nulle également, qui se vérifie par le calcul éléments finis. Les tenseurs

des contraintes et déformations au centre de l'éprouvette se simplifient en:

$$\boldsymbol{\sigma} = \begin{pmatrix} \sigma_1 & . & . \\ . & \sigma_2 & . \\ . & . & 0 \end{pmatrix} \qquad \boldsymbol{\varepsilon} = \begin{pmatrix} \varepsilon_1 & . & . \\ . & \varepsilon_2 & . \\ . & . & -\varepsilon_1 - \varepsilon_2 \end{pmatrix} \tag{3.11}$$

Les fonctions de transferts sont identifiées en analysant les résultats de la simulation. En utilisant une notation vectorielle, la fonction de transfert des déformations est égale à:

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0.5760 & -0.1641 \\ -0.1641 & 0.5760 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} e_1 \\ e_2 \end{pmatrix} \tag{3.12}$$

et la fonction de transfert des contraintes à:

$$\begin{pmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0.8799 & -0.3854 \\ -0.3854 & 0.8799 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \Sigma_1 \\ \Sigma_2 \end{pmatrix} \tag{3.13}$$

Afin de valider l'hypothèse que la fonction de transfert des déformations est égale en élasticité et en viscoélasticté, un calcul de corrélation d'image numérique (CIN) [Chevalier et al., 2001] est réalisé (voir Figure3.31). L'éprouvette viscoélastique réelle est soumise aux mêmes sollicitations que la simulation numérique. L'essai est enregistré via une caméra numérique avec une résolution de 6×6 μm^2 par pixel pour une zone utile d'éprouvette de 3×3 cm^2. Le logiciel CorrelManuV [CorrelManuV] est utilisé pour réaliser la corrélation. La taille d'un élément de corrélation est de 20×20 pixels. Le contraste naturel du propergol sert de mouchetis.

La Figure 3.32 compare la déformation au centre de l'éprouvette dans la direction X_1 mesurée par CIN et calculée par la fonction de transfert, en fonction du déplacement macroscopique U_1, pour un déplacement nul dans l'axe transverse ($U_2 = 0$). L'erreur entre les deux types de résultats, prise comme étant égale à la différence entre la valeur mesurée par CIN et donnée par la fonction de transfert, est en moyenne de $2^{\pm 1}\%$. L'hypothèse que la fonction de transfert des déformations est identique en élasticité et en viscoélasticité est confirmée. Il n'y a pas de moyens expérimentaux simples permettant de vérifier l'hypothèse concernant la fonction de transfert des contraintes. Cependant, le fait qu'elle soit calculée par la même méthode que la fonction de transfert des déformations, qui elle est validée, pousse à valider cette hypothèse en contrainte également.

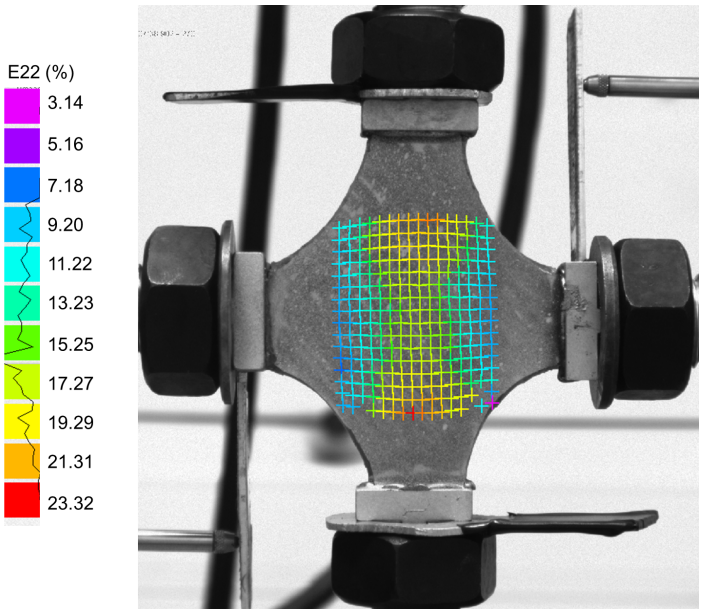


Figure 3.31: Corrélation d'image numérique sur l'éprouvette de propergol, avec présentée ici la déformation dans la direction X_2 pour une déformation macroscopique nulle suivant X_1 et de 5% suivant X_2.

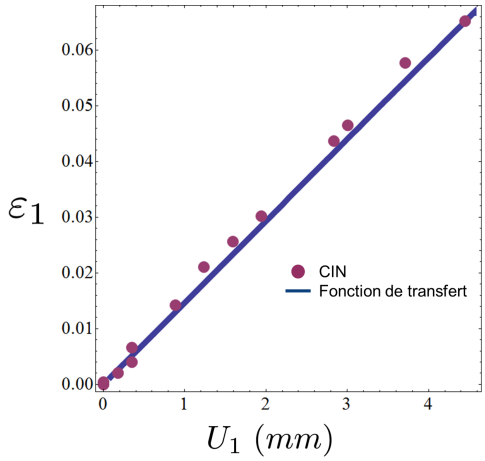


Figure 3.32: Comparaison entre la déformation au centre de l'éprouvette mesurée par CIN et calculée par la fonction de transfert en fonction du déplacement macroscopique U_1, pour un déplacement macroscopique transverse nul $U_2 = 0$.

Ainsi, lors de la réalisation des essais bi-axiaux, les déplacements et efforts à chaque extrémité de l'éprouvette sont enregistrés. Par l'intermédiaire des fonctions de transferts (équations (3.12) et (3.13)), les champs bi-axiaux des déformations et des contraintes au centre de l'éprouvette sont calculés. Les essais sont enregistrés par caméra afin de venir confirmer le calcul des déformations par CIN.

3.2.4 Procédure expérimentale

Protocole

L'objectif, rappelé ici, est de mesurer le module dynamique en fonction d'un état de déformation statique bi-axial. Puisque les déformations dans les trois directions de l'espace sont maintenant maitrisées, on se propose de balayer une large gamme d'état de déformation statique multi-axial au centre de l'éprouvette et de calculer le module dynamique correspondant. Grâce à de la traction dans les deux directions de l'espace X_1 et X_2, un état de déformation multi-axial est imposé dans la zone centrale de l'éprouvette. Pour chaque état de déformation, deux essais de DMA sont réalisés. Un essai de DMA dans la direction X_1 permettant d'avoir accès au module dynamique E_1^* dans cette direction. Un essai de DMA dans la direction X_2 permettant d'avoir accès au module dynamique E_2^* dans cette direction. L'essai se décline en cinq étapes, schématisées en Figure 3.33(a) et (b):

- Imposer une déformation statique $\varepsilon_1 = \varepsilon_{s1}$ dans la direction X_1
- Imposer une déformation statique $\varepsilon_2 = \varepsilon_{s2}$ dans la direction X_2
- Attendre la stabilisation des contraintes
- Superposer une déformation sinusoïdale $\varepsilon_1 = \varepsilon_{s1} + \varepsilon_d \ \sin[\omega t]$ dans la direction X_1 afin de calculer le module dynamique E_1^*
- Superposer une déformation sinusoïdale $\varepsilon_2 = \varepsilon_{s2} + \varepsilon_d \ \sin[\omega t]$dans la direction X_2 afin de calculer le module dynamique E_2^*

Afin de capter uniquement l'influence de l'état de déformation statique sur les propriétés mécaniques, les essais sont réalisés pour une seule fréquence angulaire de $\omega = 2\pi f$ avec $f = 5$ Hz et pour une seule amplitude dynamique de $\varepsilon_d = 0.4\%$. En répétant la procédure décrite ci avant, un vaste domaine du plan $(\varepsilon_{s1}, \varepsilon_{s2})$ est balayé qui donne pour chaque mesure un module dynamique mesuré dans la direction X_1 et un dans la direction X_2.

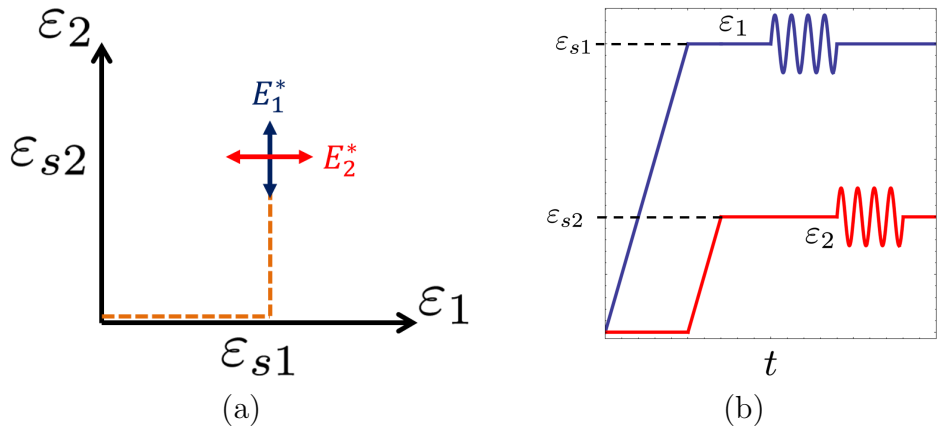


Figure 3.33: Schématisation spatiale (a) et temporelle (b) de la déformation imposée au centre de l'éprouvette. D'abord une déformation statique ε_{s1} dans la direction X_1, puis ε_{s2} dans la direction X_2. Une phase d'attente pour la stabilisation des contraintes. Puis mesure du module dynamique E_1^* dans la direction X_1 et E_2^* dans la direction X_2.

Calcul du module dynamique

Lors des essais de DMA bi-axiaux, quelle que soit la direction i, deux grandeurs physiques sont mesurées:

- La déformation, signal sinusoïdal qui peut se mettre sous la forme $\varepsilon_i = \varepsilon_{si} + \varepsilon_d \ \sin[\omega t]$
- La contrainte, signal sinusoïdal qui peut se mettre après stabilisation sous la forme $\sigma_i = \sigma_{si} + \sigma_d \ \sin[\omega t \ + \ \delta]$

Le module dynamique doit être calculé à partir de ces deux signaux. Trois informations sont nécessaires: l'amplitude du signal sinusoïdale de la déformation ε_d, celui de la contrainte σ_d, et le retard de phase entre les deux δ. La démarche classique que suivent les machines standard de DMA pour calculer le module dynamique est reproduite ici. Elle repose sur les propriétés de la transformée de Fourier [Bracewell, 1975, Press et al.].

En considérant les transformées de Fourier des signaux de la déformation $\mathcal{F}(\varepsilon_i)$ et de la contrainte $\mathcal{F}(\sigma_i)$, le maximum de chaque transformée nous donne l'amplitude dynamique de chaque signal (voir Figure3.34 et Figure3.35). De la même manière, le déphasage entre les deux signaux est donné par l'angle de phase du rapport des deux transformées $\frac{\mathcal{F}(\sigma_i)}{\mathcal{F}(\varepsilon_i)}$.

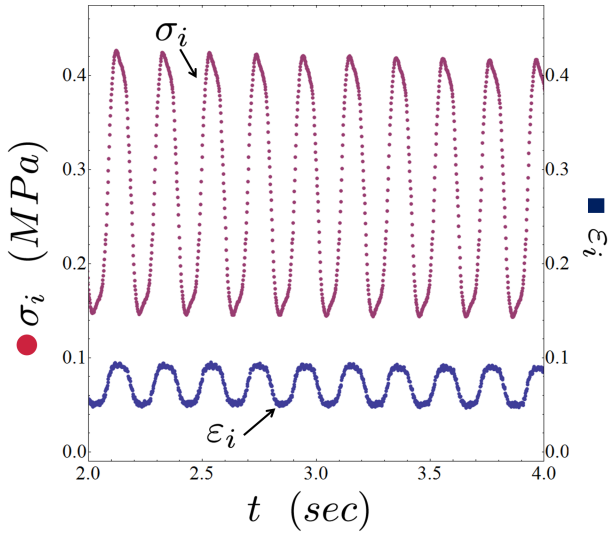


Figure 3.34: Exemple de signal sinusoïdal de contrainte et déformation enregistré lors d'un essai de DMA bi-axial.

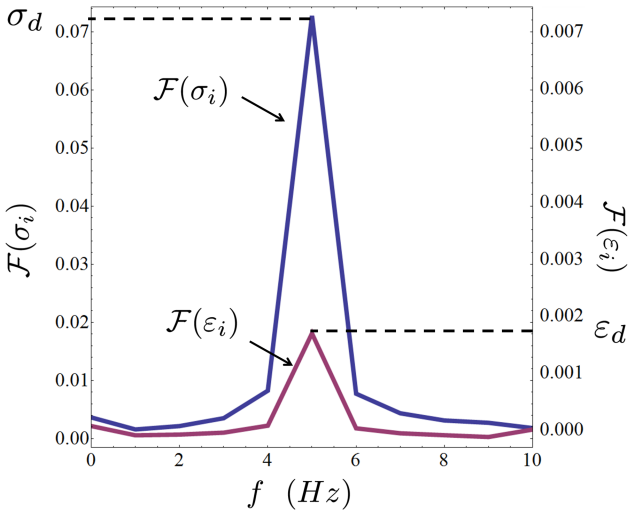


Figure 3.35: Transformée de Fourier des signaux de contrainte et déformation, permettant de calculer les amplitudes dynamiques de chacun.

3.2.5 Résultats

Le plan $(\varepsilon_{s1}, \varepsilon_{s2})$ est balayé et les modules E_1^* et E_2^* dans les directions X_1 et X_2 sont mesurés pour $f = 5$ Hz et $\varepsilon_d = 0.4\%$. Les résultats bruts sont tracés en Figure 3.36. On s'intéresse ici, pour plus de clarté, uniquement à l'évolution de l'amplitude du module dynamique. Les abscisses et ordonnées représentent respectivement les déformations statiques ε_{s1} et ε_{s2} dans les directions X_1 et X_2. La côte représente la

valeur de l'amplitude du module dynamique correspondant (une couleur correspond à une direction de mesure).

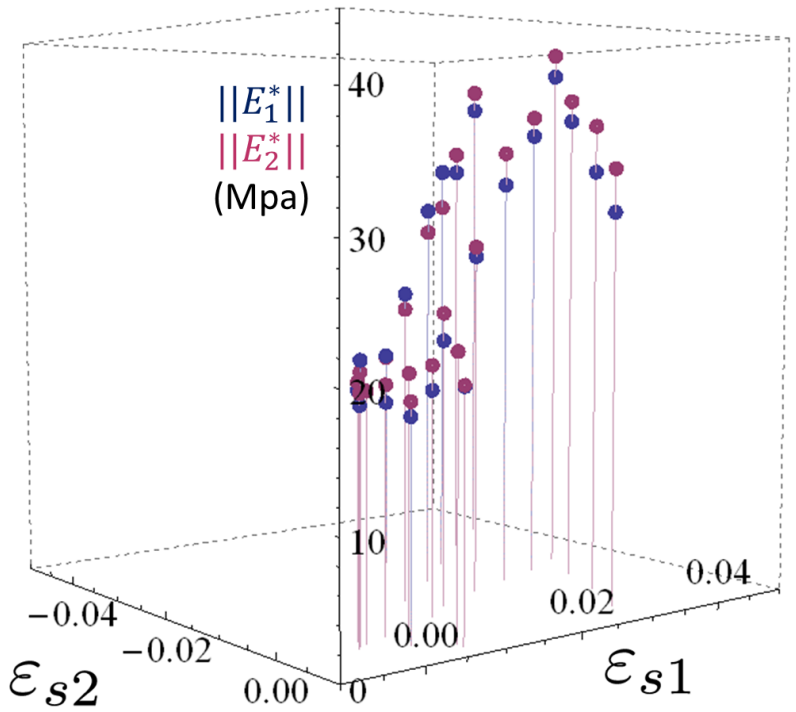


Figure 3.36: Résultats des essais de DMA bi-axiaux. L'amplitude du module dynamique en cote, mesurée dans les directions X_1 et X_2, en fonction des déformations statiques imposées dans la direction X_1 en abscisse et dans la direction X_2 en ordonnée. Résultats pour une fréquence de $f = 5$ Hz et une amplitude dynamique de $\varepsilon_d = 0.4\%$.

En comparant les modules mesurés dans les deux directions, la première conclusion importante qui se dégage est que le module dynamique ne dépend pas de la direction de mesure. Aux dispersions de propriétés mécaniques près, et aux erreurs de mesures près (précisions des capteurs), il y a égalité entre l'amplitude des deux modules $\|E_1^*\| = \|E_2^*\|$. Tous résultats confondus, l'erreur de mesure entre module dans la direction X_1 et module dans la direction X_2 est de $4\%^{\pm 3}$. Cette égalité traduit le caractère isotrope des propriétés mécaniques du matériau. Puisque la direction de mesure n'influence pas le résultat, l'état de déformation statique $(\varepsilon_{si}, \varepsilon_{sj})$ est équivalent à l'état $(\varepsilon_{sj}, \varepsilon_{si})$. Par permutation des indices, et en considérant que pour chaque mesure $E^* = E_1^* = E_2^*$, le domaine du plan $(\varepsilon_{s1}, \varepsilon_{s2})$ balayé augmente et est donné en Figure 3.37.

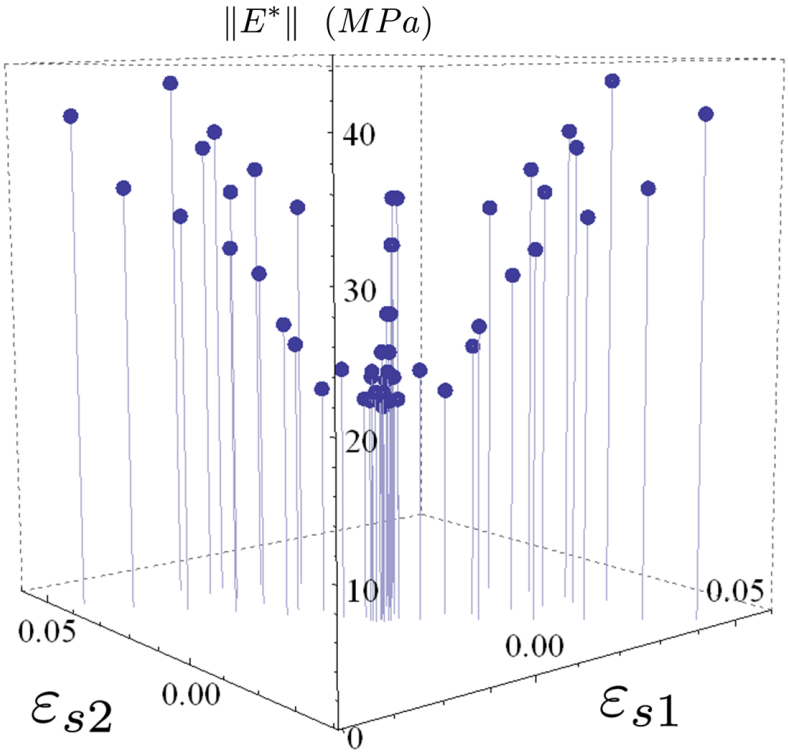


Figure 3.37: Amplitude du module dynamique en fonction de l'état de déformation statique. Description complète du plan $(\varepsilon_{s1}, \varepsilon_{s2})$. Résultats des mesures de DMA bi-axiales pour une fréquence de $f = 5$ Hz et une amplitude dynamique de déformation de $\varepsilon_d = 0.4\%$.

L'évolution du module dynamique traduit dans le repère $(\varepsilon_{s1}, \varepsilon_{s2}, \|E^*\|)$ en Figure 3.37 semble suivre un profil régulier, une forme de "parapluie" renversé. L'isotropie des propriétés visqueuses étant établie, il est possible de tracer l'évolution de l'amplitude du module en fonction d'un invariant de déformation statique.

Plusieurs invariants sont explorés comme la norme $\mathcal{L}_1$, la norme $\mathcal{L}_2$ ou encore la norme infinie [Bresis, 1983]. La comparaison des résultats en utilisant ces différentes normes ainsi que la propriété de permutation des indices (donc l'isotropie) conduit à retenir la norme $\mathcal{L}_2$ comme invariant, à un coefficient multiplicatif près. On définit donc l'invariant de la déformation statique noté ε_s^m par:

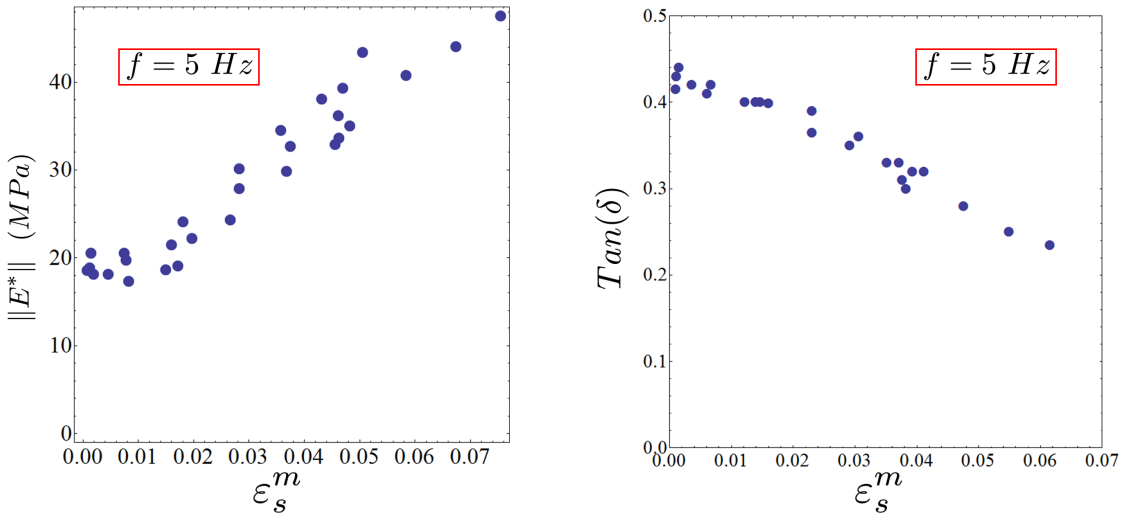
$$\varepsilon_s^m = \sqrt{\frac{2}{3}\boldsymbol{\varepsilon}_s : \boldsymbol{\varepsilon}_s} \tag{3.14}$$

avec $\boldsymbol{\varepsilon}_s$ le tenseur des déformations statiques. Cette invariant correspond à l'invariant des déformations de Von Mises, qui permet de retrouver la valeur absolue de la déformation appliquée en traction simple. Dans les conditions expérimentales choisies

pour réaliser les essais de DMA bi-axiaux, le tenseur des déformations statiques au centre de l'éprouvette est égal à:

$$\boldsymbol{\varepsilon}_s = \begin{pmatrix} \varepsilon_{s1} & . & . \\ . & \varepsilon_{s2} & . \\ . & . & -\varepsilon_{s1} - \varepsilon_{s2} \end{pmatrix} \tag{3.15}$$

La Figure 3.38, qui résume de manière précise les résultats des essais de DMA bi-axiaux, retrace l'amplitude du module dynamique et le facteur de perte en fonction de l'invariant de déformation statique ε_s^m. Les propriétés visqueuses du propergol semblent suivre la même évolution en fonction de cette unique variable. On retrouve la présence d'un seuil en dessous duquel les propriétés sont constantes (partie linéaire), et au-dessus duquel elles suivent une évolution non linéaire: l'amplitude du module augmente et le facteur de perte diminue.



(a) (b)

Figure 3.38: Amplitude du module dynamique (a) et facteur de perte (b) en fonction de l'invariant de l'état de déformation statique ε_s^m. Résultats des mesures de DMA bi-axiales pour une fréquence de $f = 5\ Hz$ et une amplitude dynamique de déformation de $\varepsilon_d = 0.4\%$.

3.2.6 Comparaison uni-axial/bi-axial

L'évolution des mesures bi-axiales en fonction de l'invariant des déformations statiques ε_s^m rappelle l'évolution des résultats uni-axiaux en fonction de la déformation statique uni-axiale ε_{s1}. En tenant compte de l'incompressibilité du matériau, les résultats uni-axiaux de la partie précédente sont tracés dans les repères $(\varepsilon_s^m, \|E^*\|)$ et $(\varepsilon_s^m, Tan(\delta))$. Les mesures des modules en uni-axial et en bi-axial peuvent donc être comparées en Figure 3.39.

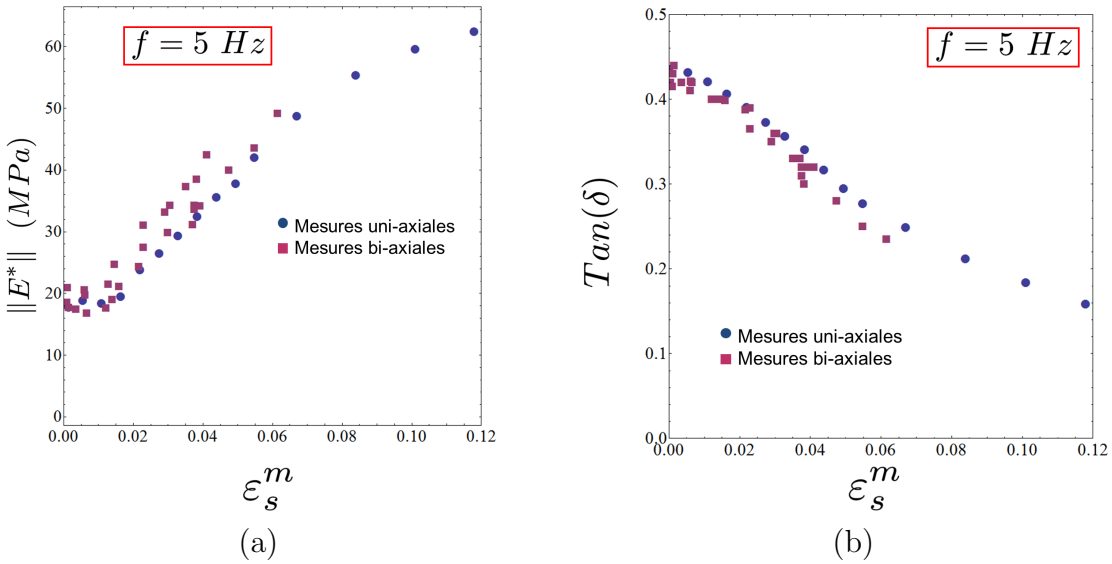


Figure 3.39: Comparaison des mesures uni-axiales et bi-axiales pour une fréquence de $f = 5$ Hz et une amplitude dynamique de déformation de $\varepsilon_d = 0.4\%$ concernant (a) l'amplitude du module dynamique et (b) le facteur de perte.

Quel que soit le type d'essai, uni-axial ou bi-axial, les propriétés mécaniques du propergol sont fonction d'une seule variable: l'invariant de déformation statique ε_s^m. D'un point de vue physique, les propriétés visqueuses d'un polymère renseignent sur la mobilité moléculaire des chaines atomiques le constituant. En uni-axial, l'application d'une déformation statique venait comprimer les chaines de polymère libre entre le réseau principal de la matrice et les charges. Grâce aux résultats de cette partie, le phénomène peut être généralisé en multi-axial. Il existe ce seuil (environ $\varepsilon_s^m = 1\%$) en dessous duquel les propriétés mécaniques sont linéaires, et au-dessus duquel elles évoluent.

La mobilité moléculaire de la fraction de polymère libre de la matrice dépend du volume libre autour d'elle qu'il lui est permis d'occuper. Supposons schématiquement que le volume libre initial autour d'une chaine de polymère libre soit une sphère, voir

Figure 3.40. La chaine de polymère peut bouger dans tout cet espace. L'application d'une déformation multi-axiale va venir modifier ce volume en un ellipsoïde (en un disque pour une déformation équi bi-axiale), par le rapprochement des charges et la modification de la géométrie du réseau principal, comme calculé au chapitre précédent. Par conséquent la mobilité moléculaire de la phase libre va être altérée, ce qui se répercute sur les propriétés visqueuses.

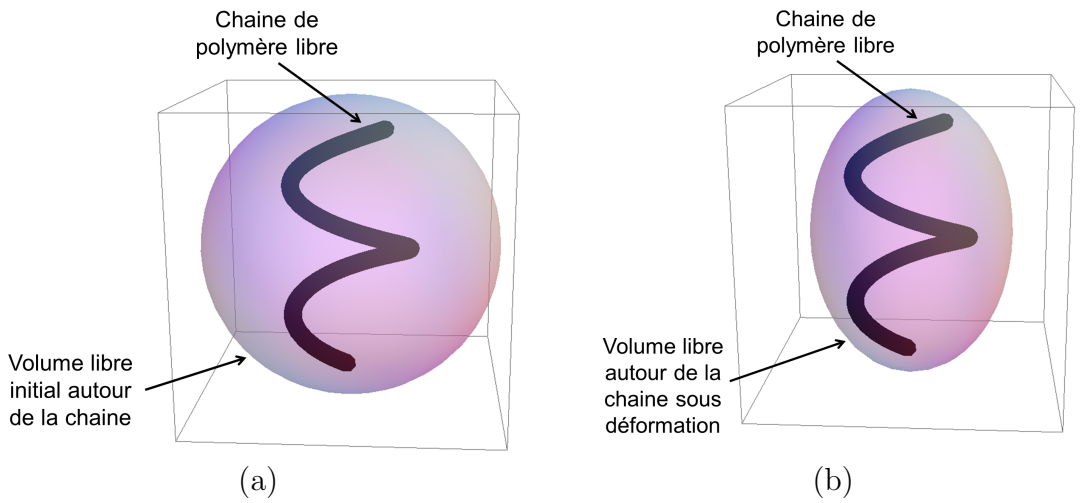


Figure 3.40: Représentation schématique du volume libre autour d'une chaine de polymère libre dans la matrice: (a) au repos et (b) sous un état de déformation.

Conclusion

L'objectif ici était de caractériser les propriétés mécaniques viscoélastiques du propergol. Une campagne expérimentale uni-axiale standard a été menée. Des essais de relaxation et de DMA ont permis de construire les courbes maitresses des modules de relaxation et dynamique dans le domaine linéaire. Les résultats, reportés dans le domaine temporel, permettent de distinguer quatre zones sur l'évolution du module de relaxation en fonction du temps, chaque zone ayant une origine physique. Toujours dans le cadre uni-axial, l'influence de la déformation statique, explorée pour les deux types d'essais, a mis en évidence le comportement viscoélastique non linéaire du matériau. Les propriétés visqueuses relatives à la phase de polymère libre dans la matrice sont affectées par cette déformation. Plus la déformation statique uni-axiale est importante, plus le comportement global du matériau rigidifie. L'influence d'une déformation transverse a été étudiée grâce à des essais de DMA bi-axiaux. Ils ont mis en évidence la dépendance des propriétés mécaniques non pas en fonction de la déformation statique uni-axiale seulement, mais de de l'invariant de l'état de déformation statique multi-axial. Les mesures uni-axiales et bi-axiales sont cohérentes les unes avec les autres. Désormais, les propriétés mécaniques du propergol sont entièrement définies dans le cadre linéaire et dans le domaine non linéaire, en fonction de l'invariant des déformations statiques ε_s^m. La dépendance des propriétés à un invariant de déformation permet l'intégration du comportement dans une loi viscoélastique. Le chapitre suivant s'attache à développer une loi de comportement tenant compte de ces phénomènes non-linéaires.

Chapitre 4

Modélisation du comportement viscoélastique

A partir des résultats expérimentaux obtenus au chapitre précédent, un modèle permettant de décrire les propriétés visqueuses du propergol doit être défini. On rappelle ici que le comportement viscoélastique est entièrement décrit par le spectre des temps de relaxation $H(\tau)$. De plus les propriétés viscoélastiques du propergol ont été caractérisées par des essais de relaxation uni-axiaux (avec et sans déformation statique), par des essais de DMA uni-axiaux (avec et sans déformation statique), et par des essais de DMA bi-axiaux. Ces résultats ont permis de définir une dépendance de la viscoélasticité à un invariant de la déformation, facilitant ainsi son intégration dans une loi de comportement. En utilisant la transformée de Fourier, les résultats dans le domaine fréquentiel ont été retranscrit dans le domaine temporel. Dans cette partie, le spectre continu des temps de relaxation du propergol sera donc identifié dans le domaine temporel. Cette identification sera faite en deux temps: d'abord la partie linéaire du comportement sera étudiée, puis l'impact de la déformation statique sera pris en compte. Le spectre continu obtenu fera l'objet d'une discrétisation en vue d'aboutir à une série de Prony, représentée par un modèle de type Maxwell généralisé non linéaire. Les paramètres de la série de Prony serviront de constantes pour décrire l'évolution des variables internes d'un modèle de comportement viscoélastique non linéaire. Ce modèle sera implémenté finalement dans un code éléments finis, dans l'objectif de déterminer par simulation l'impact du comportement mécanique du propergol.

4.1 Modélisation continue

L'identification du spectre des temps de relaxation, qui contient toutes les informations sur la viscoélasticité d'un matériau, se fera en deux temps. D'abord une identification sur la viscoélasticité linéaire sera menée, puis deuxièmement, prise en compte de la non linéarité due à la déformation statique. La démarche d'identification suit fortement l'algorithme décrit par Smith [Smith, 1971], rappelé en introduction de ce rapport.

4.1.1 Modélisation linéaire

Le spectre des temps de relaxation est premièrement identifié sur la courbe maitresse du module de relaxation dans le régime linéaire (déformation statique inférieure à 1%), Figure 3.17, obtenue par concaténation des résultats des essais de relaxation et de DMA. En s'appuyant sur le chapitre précédent, l'évolution de ce module est découpée en quatre zones: un plateau vitreux (partie I) et trois pentes (parties II, III, et IV). Comme indiqué en première partie, l'identification du spectre passe d'abord par une modélisation du module de relaxation en utilisant une fonction de la forme donnée en équation (1.18). Cependant cette dernière fonction permet de ne reproduire qu'une seule évolution de pente. Manifestement, la courbe maitresse présente trois pentes ici. Il est donc naturel de chercher à modéliser l'évolution du module de relaxation par une somme de trois fonctions de type 1.18 de manière suivante:

$$E(t) = E_1(t) + E_2(t) + E_3(t) \tag{4.1}$$

Soit plus explicitement:

$$E(t) = \frac{E_{g1}}{1 + (\frac{t}{t_1})^{\beta_1}} + \frac{E_{g2}}{1 + (\frac{t}{t_2})^{\beta_2}} + \frac{E_{g3}}{1 + (\frac{t}{t_3})^{\beta_3}} \tag{4.2}$$

Avant tout, la courbe maitresse du module de relaxation ne présente pas de plateau aux temps longs, ce qui implique que l'expression du module ne possède pas de terme constant. Ensuite, les paramètres $(E_{gi}, t_i, \beta_i)_{i=1,3}$ sont identifiés à l'aide de la commande NonLinearModelFit de Mathematica® [Wolfram]. Les valeurs de ces différents paramètres sont données en Table 4.1. Même si l'identification de ces paramètres est réalisée en échelle logarithmique afin de ne pas discriminer les temps court, le résultat obtenu n'est pas unique. Puisqu'il a été montré que la seconde pente présentait un intérêt majeur lors de l'application de la déformation statique, le jeu de paramètre

retenu est celui qui minimise au mieux l'écart entre modèle et mesure pour une évolution du module de relaxation entre $10^{-5} \leq t \leq 10^{1}$ sec. L'effort de l'identification a donc été porté sur la seconde contribution.

	E_{gi} $[MPa]$	t_i $[s]$	β_i $[adim]$
E_1	12191	3.4×10^{-12}	0.333
E_2	91	3.1×10^{-5}	0.312
E_3	6	1.27	0.07

Table 4.1: Identification des paramètres de la fonction donnée en équation (4.2) pour modéliser la courbe maitresse de relaxation du propergol.

Le modèle identifié sur la courbe maitresse du module de relaxation est tracé en Figure 4.1. Les quatre parties de la courbe sont bien modélisées: le plateau vitreux initial ainsi que les trois pentes distinctes. La bonne corrélation entre modèle et courbe expérimentale valide le choix d'une décomposition en trois contributions (équation (4.2)). Le coefficient de détermination est ici égal à 0.985.

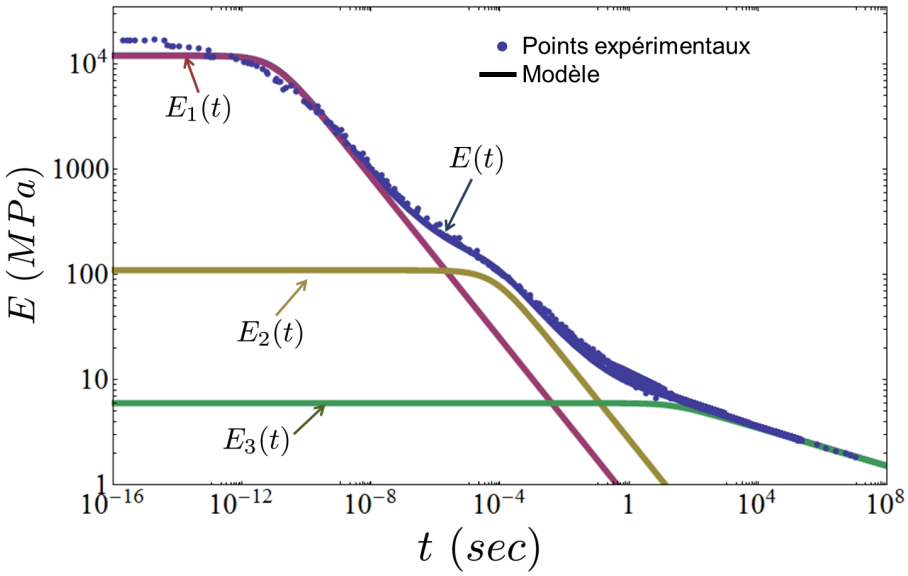


Figure 4.1: Modélisation de l'évolution du module de relaxation par une fonction du type 4.2 identifiée sur la courbe maitresse expérimentale.

Comme décrit dans la section d'introduction, le spectre continu des temps de relaxation est donné grâce à une transformée de Laplace et à un changement de variable (voir équations (1.19),1.20 et 1.21). Les propriétés additives de la transformée de Laplace [Schiff, 1999] conduisent à un spectre de temps de relaxation égal à la somme des transformée de Laplace des trois contributions de l'équation (4.2):

$$H(\tau) = H_1(\tau) + H_2(\tau) + H_3(\tau) \tag{4.3}$$

Avec:

$$H(\tau) = \frac{E_{g1}}{\Gamma(\beta_1)} \left(\frac{\tau}{t_1}\right)^{-\beta_1} e^{-\frac{t_1}{\tau}} + \frac{E_{g2}}{\Gamma(\beta_2)} \left(\frac{\tau}{t_2}\right)^{-\beta_2} e^{-\frac{t_2}{\tau}} + \frac{E_{g3}}{\Gamma(\beta_3)} \left(\frac{\tau}{t_3}\right)^{-\beta_3} e^{-\frac{t_3}{\tau}} \tag{4.4}$$

La Figure 4.2 décrit l'évolution du spectre du propergol identifié en fonction du temps de relaxation. Chaque contribution donne lieu à un maximum local. Le premier pour un temps caractéristique de $\frac{t_1}{\beta_1} = 1 \times 10^{-11}$ sec, le deuxième pour un temps de $\frac{t_2}{\beta_2} = 9.9 \times 10^{-5}$ sec, et le troisième (peu visible sur le graphique) pour un temps de $\frac{t_3}{\beta_3} = 18.1$ sec. Chaque contribution du spectre trouve également un sens physique. La première contribution (indice "1") est la signature de la mobilité moléculaire des chaines de polymère du réseau principal (voir Figures 3.17 et 3.21). La deuxième (indice "2") est la distribution statistique de la mobilité des chaines de polymère libre à travers le réseau principal. La dernière (indice "3") correspond à la mobilité de l'ensemble des chaines de polymères aux temps longs. Ces relations physiques sont en accord avec les résultats des travaux d'Azoug [Azoug et al., 2013a]. Même si les amplitudes des maximums relatifs à chaque contribution du spectre sont nettement différentes, elles ont toutes néanmoins une importance, car elles s'expriment pour des vitesses de sollicitations très différentes.

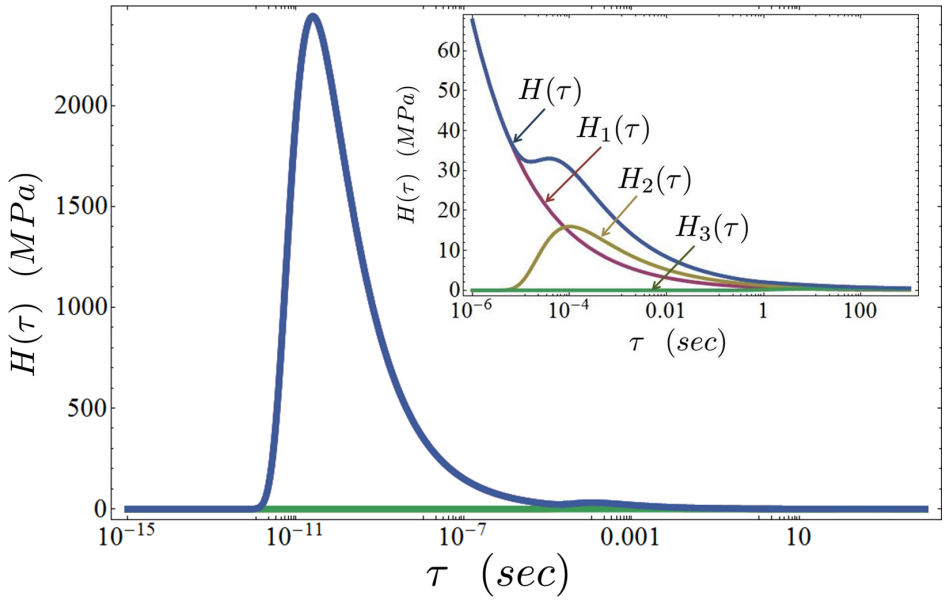


Figure 4.2: Évolution du spectre du propergol en fonction du temps de relaxation: somme de trois contributions, chacune étant la signature de la mobilité moléculaire d'une phase de la matrice.

Vérification

Le spectre des temps de relaxation décrit à lui seul la viscoélasticité d'un matériau. Avant d'enrichir le spectre obtenu pour le propergol, il convient de valider son identification dans le domaine linéaire. Par définition, l'expression analytique du module de relaxation est évaluée en fonction du spectre par la relation 1.3. Ce module de relaxation analytique calculé est comparé avec la courbe maitresse obtenue expérimentalement en Figure 4.3. Le spectre identifié prédit bien l'évolution du module de relaxation sur la plage de temps considérée (8 décades de temps en seconde). L'erreur (calculée sur le logarithme des valeurs) entre la prédiction du modèle analytique et la courbe maitresse expérimentale est de $5^{\pm 2}\%$. Cette différence peut s'explique à la fois par la non unicité de la solution identifiée ainsi que par le cumul des erreurs liées aux mesures et à la construction de la courbe maitresse.

Identiquement, l'expression analytique du module dynamique est déduite du spectre par l'équation (1.4). Découpé en partie réelle E' et imaginaire E'', ce module dynamique analytique est comparé avec la courbe maitresse obtenue expérimentalement en Figure 4.4. Le module complexe analytique déduit du spectre des temps de relaxation reproduit bien l'évolution expérimentale pour des fréquences comprises entre $10^{-1} \leq \omega \leq 10^{11}$ rad/sec. L'erreur entre modèle et expérience au-delà de 10^{11} rad/sec s'explique par les difficultés de mise en oeuvre de la mesure. Le plateau vitreux, do-

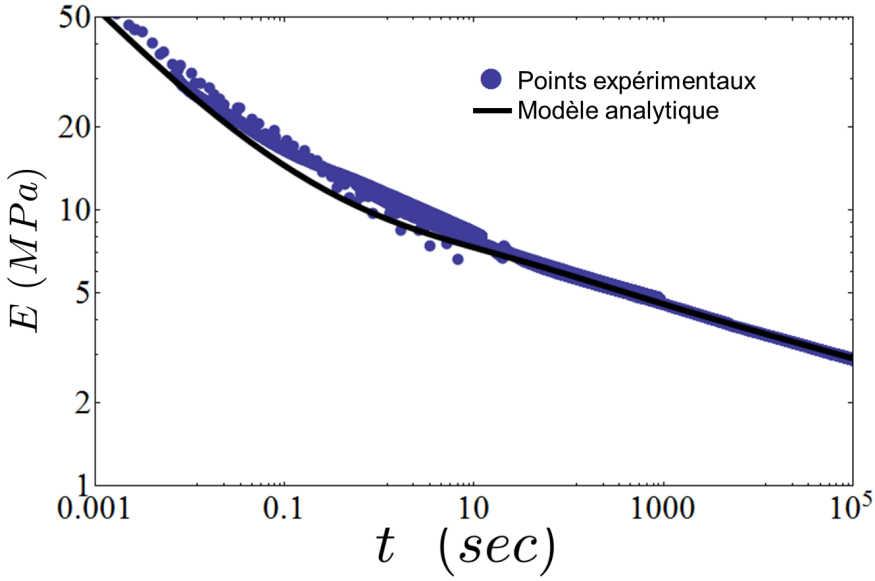


Figure 4.3: Comparaison entre la courbe maitresse du module de relaxation expérimentale et le module de relaxation analytique calculé à partir du spectre identifié pour le propergol (Figure 4.2).

maine dans lequel la partie imaginaire du module chute brusquement, n'est pas un domaine propice à la mesure par DMA.

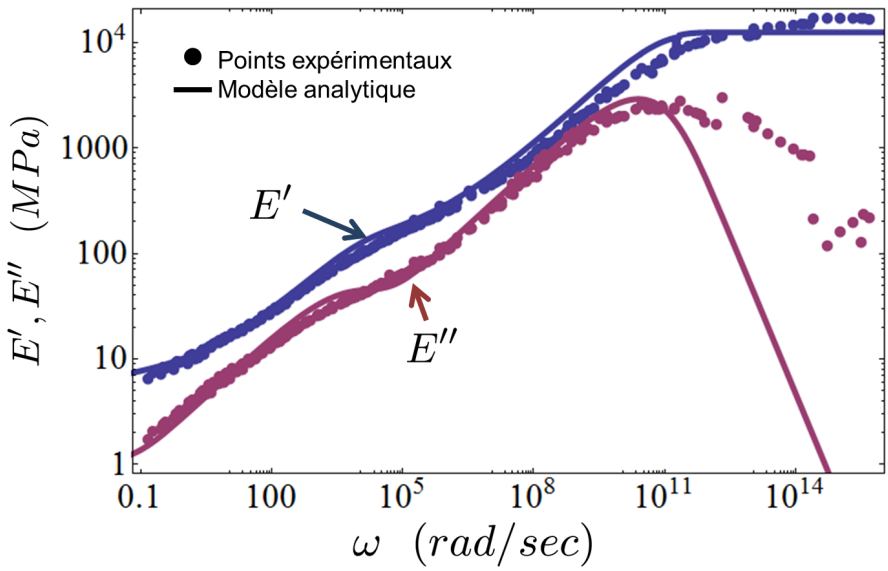


Figure 4.4: Comparaison entre la courbe maitresse du module de relaxation expérimentale et le module de relaxation analytique calculé à partir du spectre identifié pour le propergol (Figure 4.2).

A titre indicatif, l'évolution du facteur de perte en fonction de la fréquence calculée analytiquement et mesurée expérimentalement est tracée en Figure 4.5. Le modèle identifié en équation (4.4) retranscrit quantitativement les deux maximums locaux que présente le facteur de perte. L'erreur entre modèle et expérience, plus importante ici, s'explique par le fait que tous les travaux d'identification réalisés jusqu'ici se concentrent sur les courbes maitresses construites en utilisant l'équivalence entre temps et température sur l'amplitude du module dynamique, et pas sur le facteur de perte.

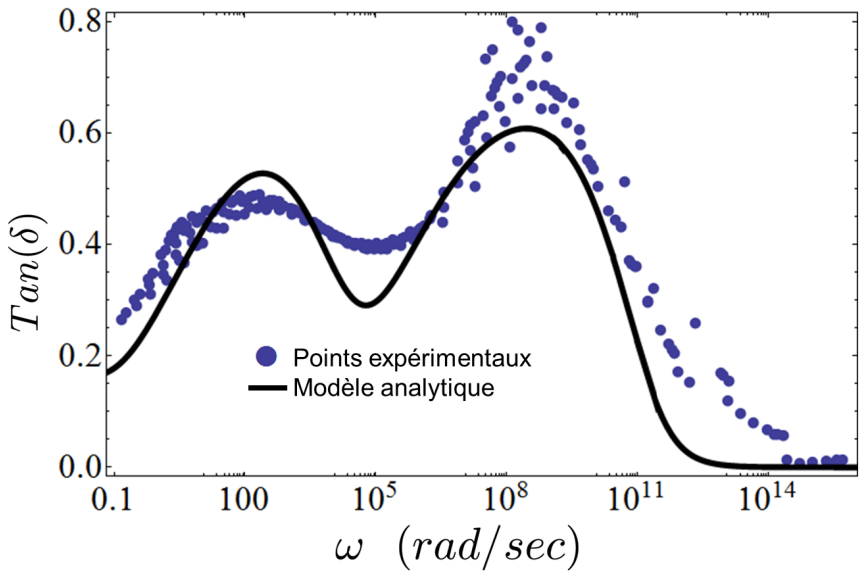


Figure 4.5: Comparaison entre la courbe maitresse du facteur de perte expérimentale et le module de relaxation analytique calculé à partir du spectre identifié pour le propergol (Figure 4.2).

Au regard des Figures 4.3, 4.4 et 4.5, le spectre des temps de relaxation identifié permet néanmoins d'obtenir de bonnes prédictions analytiques comparé aux résultats expérimentaux dans le domaine linéaire. Ce modèle est donc considéré comme validé dans ce domaine.

4.1.2 Modélisation non linéaire

La viscoélasticité du propergol présente une dépendance à la déformation imposée, et plus précisément à l'invariant de déformation. La courbe maitresse du module de relaxation, qui n'est autre qu'une mesure des propriétés visqueuses (Figure 3.19), n'est

impactée par la déformation que pour des temps supérieurs à 10^{-6} sec. En utilisant le découpage de cette courbe en quatre parties, énoncé précédemment, le chapitre précédent montre que seule la partie III semble être modifiée. En effet, plus l'état de déformation statique est important, moins la pente de la partie III de la courbe est importante. Il est assumé ici que la partie IV de la courbe n'est pas modifiée par l'application d'une déformation.

Mathématiquement, chaque partie de la courbe maitresse du module de relaxation a été modélisée par une contribution (voir équation (4.2)). Les paramètres $(\beta_i)_{i=1,3}$ permettent de recaler les pentes de chaque contribution considérée. Puisque l'application d'une déformation vient modifier uniquement la pente de la partie III, modéliser la non linéarité revient à modifier uniquement le paramètre β_2. L'objectif ici est de rendre ce paramètre dépendant de l'état de déformation statique ε_s^m appliquée au matériau (voir équation (3.14)). Le spectre deviendra donc une fonction des temps de relaxation mais également de l'état de déformation statique, avec:

$$\beta_2 = \beta_2(\varepsilon_s^m) \tag{4.5}$$

L'identification de l'évolution de β_2 en fonction de l'invariant de déformation statique est réalisée à l'aide des résultats des essais uni-axiaux de relaxation (Figure 3.14) et de DMA (Figure 3.8), ainsi que les essais bi-axiaux de DMA (Figure 5.24). La démarche adoptée est la suivante:

- Considérer tous les résultats expérimentaux non linéaire

- Considérer le spectre des temps de relaxation avec, cette fois ci, un seul paramètre variable: β_2. Les autres paramètres $(E_{gi})_{i=1,3}$, $(t_i)_{i=1,3}$ et (β_1, β_3) restent constants et égaux aux valeurs données en Table 4.1.

- Identifier la valeur du paramètre β_2 en utilisant la commande NonLinearModelFit de Mathematica® [Wolfram] pour que le spectre des temps de relaxation décrive les résultats de l'essai non linéaire considéré.

La Figure 4.6 regroupe l'évolution de β_2, adimensionnée par sa valeur initiale (soit à déformation statique nulle, voir Table 4.1). Tous les résultats (relaxation ou DMA, uni-axial ou bi-axial) accordent la même évolution au paramètre β_2. Une chute est observée au-delà d'un seuil de déformation statique d'environ 1%. Les résultats de

l'identification sont modélisés par une fonction décroissante de la forme:

$$\beta_2(\varepsilon_s^m) = \frac{\beta_2^0}{1 + (\frac{\varepsilon_s^m}{\varepsilon_r})^p} \tag{4.6}$$

Avec dans notre cas $\beta_2^0 = 0.312$ (voir Table 4.1), $\varepsilon_r = 0.045$ et $p = 2.1$ (calculé grâce à la commande NonLinearModelFit de Mathematica®).

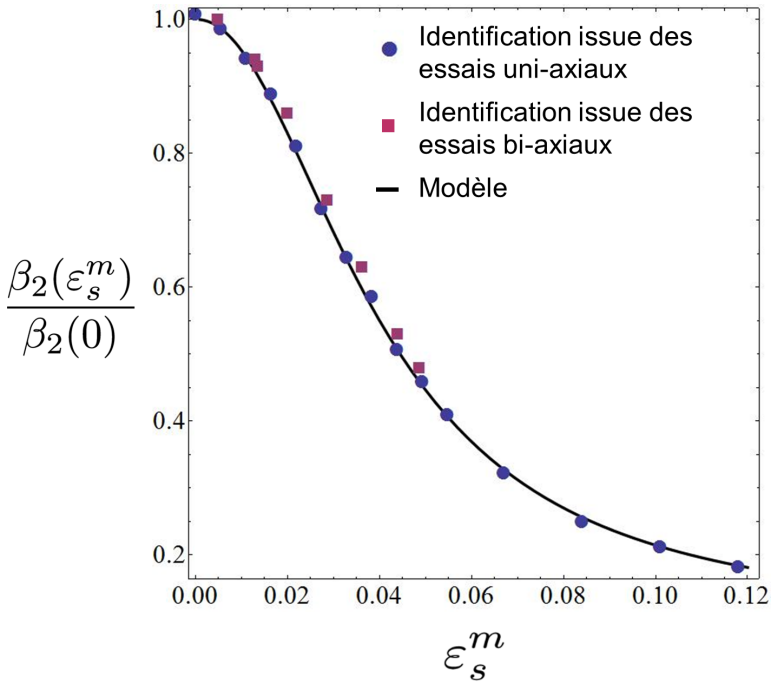


Figure 4.6: Évolution du paramètre β_2 en fonction de l'invariant de déformation statique: identification réalisée sur les essais non linéaire uni-axiaux (point), bi-axiaux (carré). Les résultats sont modélisés par une fonction décroissante de type 4.6.

La chute de ce paramètre en fonction de l'état de déformation a pour conséquence sur le spectre des temps de relaxation la chute de l'amplitude du second pic. Comme indiqué en Figure 4.7, plus la déformation statique est importante, moins le second pic est conséquent, jusqu'à même totalement disparaitre pour des grandes déformations. Ceci a pour signification la quasi absence totale de mouvements moléculaires des chaines de polymère libre à travers le réseau principal pour d'importantes déformations macroscopiques appliquées au matériau.

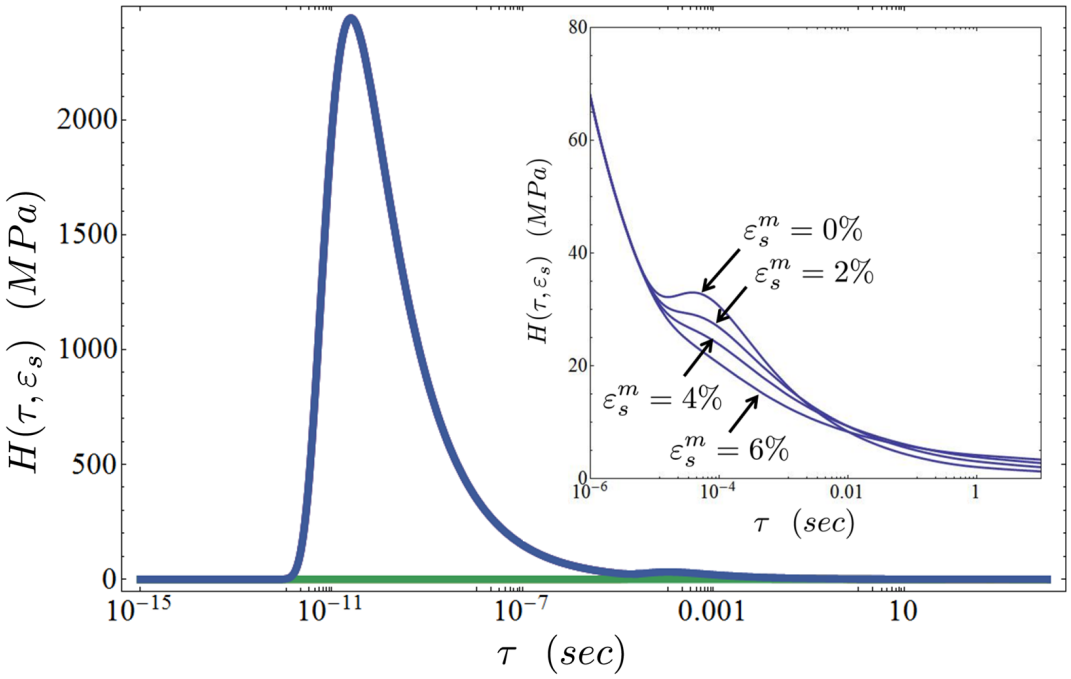


Figure 4.7: Spectre des temps de relaxation en fonction de l'état de déformation statique imposé.

Résumé

Un modèle viscoélastique non linéaire tenant compte de l'effet de la déformation statique est obtenu, complètement décrit par son spectre des temps de relaxation, qui s'exprime par:

$$H(\tau) = \frac{E_{g1}}{\Gamma(\beta_1)} \left(\frac{\tau}{t_1}\right)^{-\beta_1} e^{-\frac{t_1}{\tau}} + \frac{E_{g2}}{\Gamma(\beta_2)} \left(\frac{\tau}{t_2}\right)^{-\beta_2} e^{-\frac{t_2}{\tau}} + \frac{E_{g3}}{\Gamma(\beta_3)} \left(\frac{\tau}{t_3}\right)^{-\beta_3} e^{-\frac{t_3}{\tau}}$$

Avec:

$$\beta_2(\varepsilon_s^m) = \frac{\beta_2^0}{1+(\frac{\varepsilon_s^m}{\varepsilon_r})^p}$$

Table 4.2: Spectre continu des temps de relaxation

Ce modèle est identifié, et donc valide, pour des valeurs de déformations d'au maximum 10%. Au-delà de cette valeur, d'autres phénomènes sont à prendre en compte, tels par exemple la variation de volume (voir Figure 1.19).

Vérification

Le modèle viscoélastique non linéaire du propergol décrit par son spectre des temps de relaxation doit être vérifié dans le régime non linéaire. Bien que l'identification de ce modèle repose sur ces mêmes essais, il est proposé de confronter le modèle analytique avec tous les différents essais réalisés avec déformation statique (relaxation et DMA). En utilisant une fois de plus la relation entre module de relaxation et spectre (équation (1.3)), les résultats des essais de relaxation avec déformation statique uni-axiale sont comparés avec les prédictions analytiques en Figure 4.8. Le modèle capte bien la rigidification du module de relaxation au cours du temps en fonction de la déformation imposée.

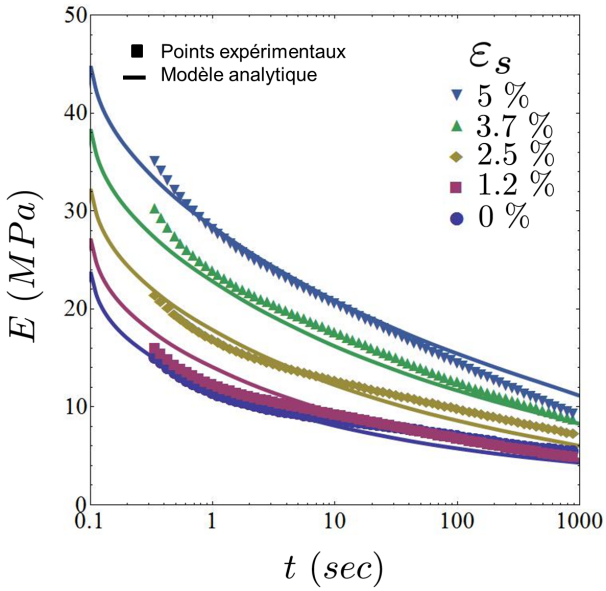
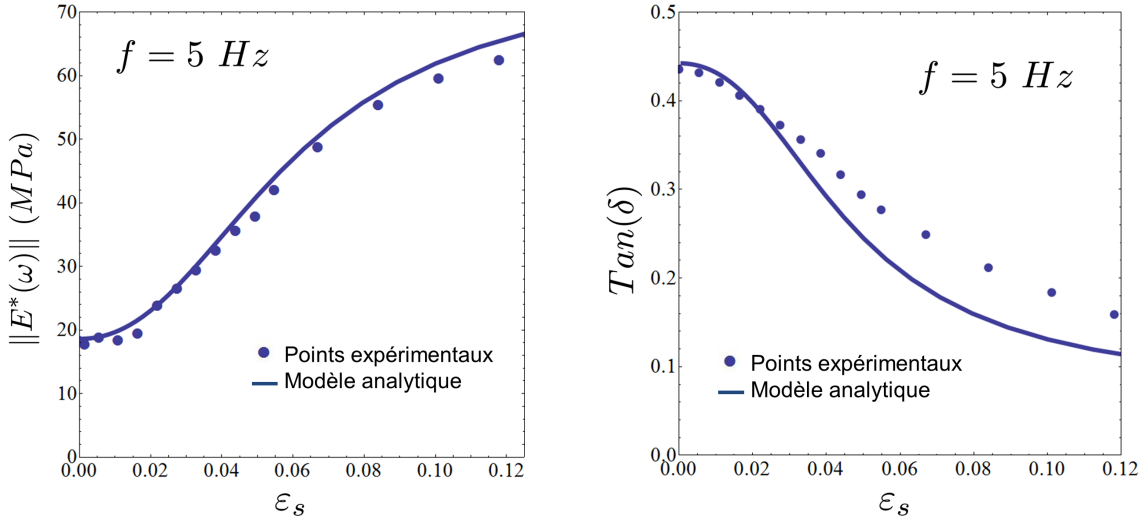


Figure 4.8: Comparaison entre prédictions analytiques du modèle viscoéolastique non linéaire et résultats des essais de relaxation avec déformation statique uni-axiale.

De même, la Figure 4.9 présente les résultats des essais de DMA ainsi que les résultats analytiques, en fonction de la déformation statique, pour une fréquence de

$f = 5$ Hz. La rigidification du module est bien retraduite, la chute du facteur de perte est légèrement sous-évaluée.



(a) (b)

Figure 4.9: Comparaison entre prédictions analytiques du modèle viscoéolastique non linéaire et résultats des essais de DMA avec déformation statique uni-axiale pour (a) l'amplitude du module dynamique et (b) le facteur de perte.

Pour finir, les résultats des essais de DMA bi-axiaux sont confrontés au modèle analytique. La Figure 4.10 renseigne sur l'augmentation de l'amplitude du module dynamique pour des déformations statiques ε_{s1} et ε_{s2} dans deux directions de l'espace. Le modèle arrive à capter la forme de parapluie obtenue expérimentalement. La couleur des points correspond à l'erreur relative entre la prédiction et le résultat expérimental, et est de $6^{\pm 2}\%$ pour un écart maximum de 15%.

Le spectre des temps de relaxation du propergol est identifié à l'aide de la courbe maitresse de relaxation. Premièrement, la partie linéaire du comportement mécanique viscoélastique est modélisée. Le spectre est considéré comme la somme de trois contributions, chacune relatant de la mobilité moléculaire d'une phase de la matrice. Ensuite, l'application d'un état de déformation vient altérer une seule contribution. L'influence de cette déformation peut être contenue dans l'évolution d'un seul paramètre du modèle. Après identification de cette évolution, le comportement non linéaire du propergol est entièrement modélisé par un spectre continu des temps de relaxation, fonction de l'invariant de déformation statique.

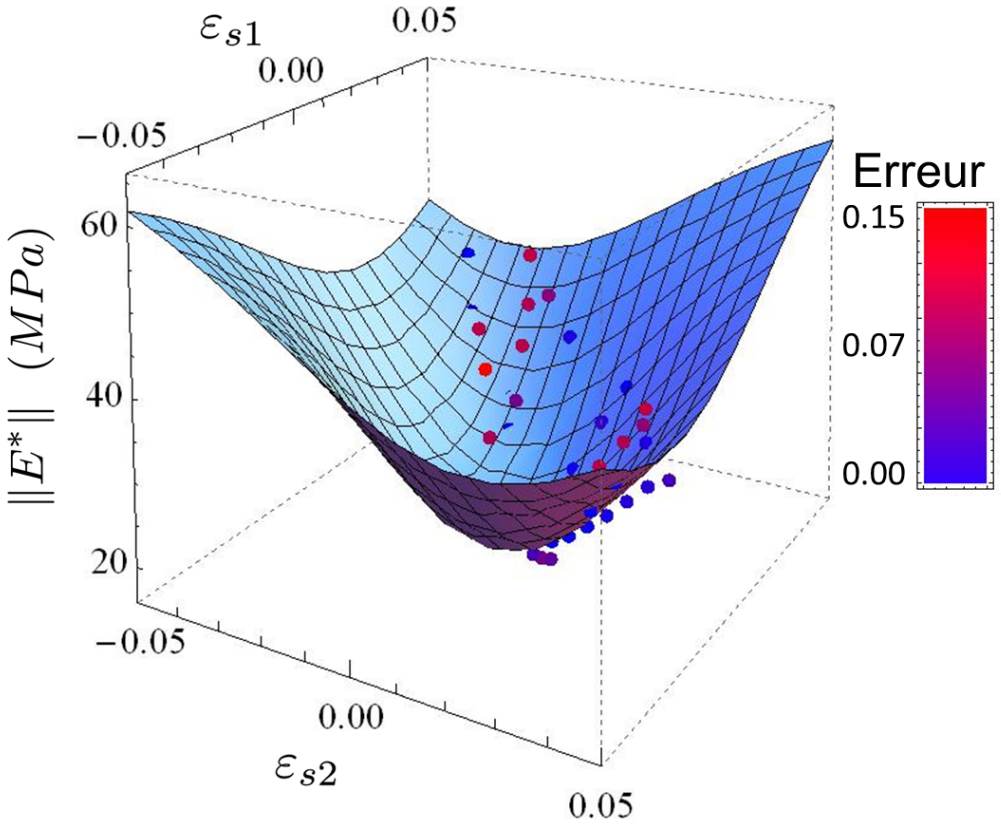


Figure 4.10: Comparaison entre prédictions analytiques du modèle viscoéolastique non linéaire et résultats des essais de DMA bi-axiaux sur l'évolution de l'amplitude du module dynamique. La couleur des points correspond à l'erreur entre simulation et résultat expérimental

Le modèle est comparé avec les résultats expérimentaux sur lesquels il a été identifié en partie. Il s'agit là de vérifier à chaque étape qu'il reproduit bien la réalité observée. Il pourrait néanmoins être validé à proprement parler, en comparant prédiction du modèle et résultats expérimentaux, en considérant d'autres types d'essais. La réponse à une sollicitation plus complexe (combinaison entre relaxation et DMA par exemple) pourrait être étudiée par la suite.

4.2 Modèle de comportement

Le comportement viscoélastique du propergol est modélisé jusqu'ici par son spectre des temps de relaxation continu. Il nécessite désormais d'être traduit dans un modèle de comportement mécanique, à savoir une relation explicite entre contrainte et déformation, qui peut être implémentée dans un code de calcul par éléments finis. Ce passage du modèle continu à une loi de comportement passe par une étape de discrétisation du spectre continu en une série discrète, classiquement appelée série de Prony.

4.2.1 Série de Prony

Il a été souligné en introduction qu'il était préférable de travailler en mécanique avec un spectre des temps de relaxation discret $\hat{H}(\tau)$ (voir équation (1.24)) plutôt qu'un spectre continu $H(\tau)$. Cette simplification se traduit par une représentation du comportement par un modèle de Maxwell Généralisé (voir Figure 1.14), caractérisé par une série de Prony (τ_i, E_i). La discrétisation se réalise en deux étapes:

- Adopter une distribution discrète de l'axe des temps de relaxation (passer de τ à $(\tau_i)_{i=1,n}$).
- Calculer les valeurs du spectre $H(\tau_i)$ correspondantes.

Comme rappelé en introduction, la discrétisation choisie pour les temps de relaxation est généralement une distribution régulière en échelle logarithmique (voir Figure 1.15).

En alternative à cette discrétisation arbitraire avec un pas régulier, il est proposé ici un algorithme de calcul de la distribution des temps de relaxation, reposant sur une méthode de minimisation. Il se décompose en plusieurs étapes. D'abord se donner deux paramètres: γ, qui doit être inférieur à 1 et n, qui va correspondre au nombre d'éléments composant la distribution des temps de relaxation $(\tau_i)_{i=1,n}$. La discrétisation se concentre ensuite sur la partie du spectre des temps de relaxation comprise entre $\zeta_1 \leq \tau \leq \zeta_{n+1}$, comme expliqué en Figure 4.11, de telle sorte que $\gamma\ H_{max} \leq H(\tau)$.

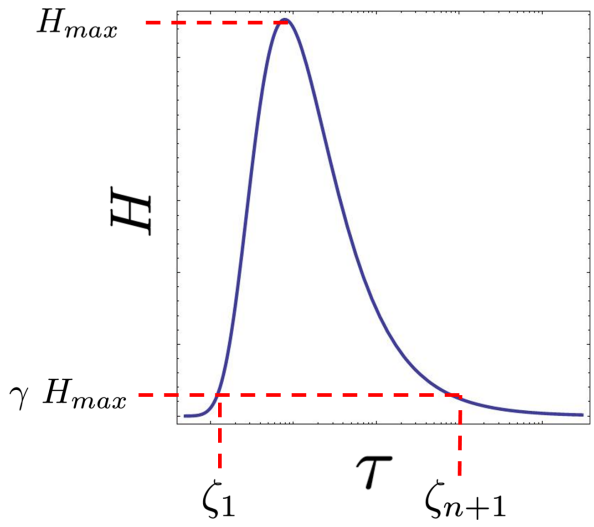


Figure 4.11: Principe du découpage de la courbe du spectre des temps de relaxation où seule la partie comprise entre $\tau_{c1} \leq \tau \leq \tau_{c2}$ fait l'objet de la discrétisation.

L'objectif est d'approximer le spectre continu $H(\tau)$ entre ζ_1 et ζ_{n+1} par une fonction en escalier $S(\tau)$ à pas variable composée de n marches [Kurtz et al., 2004], comme schématisée en Figure 4.12. En considérant que la i^{eme} marche soit définie sur un intervalle de temps $[\zeta_i; \zeta_{i+1}]$, le temps de relaxation associé sera égal à la valeur moyenne logarithmique:

$$\log\tau_i = \frac{\log\zeta_i + \log\zeta_{i+1}}{2} \tag{4.7}$$

La distribution des temps de relaxation sera donc égale à la collection de l'ensemble des valeurs des temps moyens $(\tau_i)_{i=1,n}$ des n marches.

La meilleur approximation va minimiser le résidu R correspondant à l'écart entre le spectre continu H et cette fonction en escalier S [Press et al.]. Puisque H et S ont une forme analytique, ce résidu R est calculé grâce à la norme Euclidienne, par:

$$R = \frac{\parallel \int_{\zeta_1}^{\zeta_{n+1}} H(\tau) - S(\tau)\ d\tau \parallel}{\parallel \int_{\zeta_1}^{\zeta_{n+1}} H(\tau)\ d\tau \parallel} \tag{4.8}$$

Par définition, la fonction en escalier S est égale à:

$$S(\tau) = \sum_{i=1}^{n} H(\tau_i)\ U_{(\zeta_i,\zeta_{i+1})}(\tau) \tag{4.9}$$

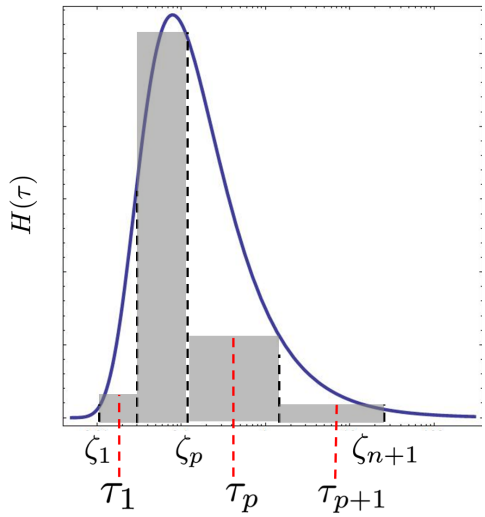


Figure 4.12: Principe d'approximation du spectre par une fonction en escalier à pas variable.

avec τ_i défini en équation (4.7) et U la fonction "boite unitaire" définie par:

$$U_{(\zeta_i,\zeta_{i+1})}(\tau) = \begin{cases} 1 & si \quad \zeta_i \leq \tau \leq \zeta_{i+1} \\ 0 & sinon \end{cases} \tag{4.10}$$

Puisque les valeurs de ζ_1 et ζ_{n+1} sont fixées par le choix de γ, le problème de minimisation se réduit à:

$$\boxed{\text{Trouver la famille } (\zeta_i)_{i=2,n} \text{ qui minimise le résidu } R}$$

La distribution des temps de relaxation est donnée par l'équation (4.7). Cet algorithme d'optimisation est implémenté numériquement sous Mathematica® [Wolfram]. Il permet dans certain cas de diviser par deux le nombre de temps discret comparé à une distribution classique avec un pas logarithmique régulier. Une discussion plus complète et détaillée est donnée dans [Jalocha et al., 2015].

Après application au propergol, une distribution des temps de relaxation $(\tau_i)_{i=1,n}$ à $n = 49$ éléments est trouvée pour une valeur de $\gamma = 0.0001$ (qui donne environ $\zeta_1 = -14$sec et $\zeta_{n+1} = 10^{20}$sec). Afin de compléter la série de Prony, l'étape suivante est de calculer les valeurs des raideurs correspondantes à chaque temps de relaxation discret, en utilisant la relation 1.29. A la place des raideurs qui ne seront pas utilisées par la suite, il est proposé ici de calculer les viscosités associées η_i, obtenues en combinant

les équations (1.29) et 1.22, soit:

$$\eta_i(\varepsilon_s) = H(\tau_i, \varepsilon_s)\ \tau_i\ \ln(\sqrt{\frac{\tau_{i+1}}{\tau_{i-1}}}) \tag{4.11}$$

Une série de Prony "modifiée" (dans le sens où ce ne sont pas des raideurs mais des viscosités) à 49 termes est obtenue décrivant les propriétés viscoélastiques du matériau. Puisque le spectre H dépend de l'état de déformation statique, chaque viscosité va aussi avoir une dépendance à ce paramètre qui lui est propre. Le modèle viscoélastique peut désormais se simplifier sous la forme de la série suivante:

$$\boxed{(\tau_i, \eta_i(\varepsilon_s^m))_{i=1,n}}$$

En exemple, la Figure 4.13 trace les viscosités η_{15} et η_{30} en fonction de l'invariant de déformation statique. Les deux viscosités suivent des évolutions différentes. Il aurait été impossible d'accéder directement à ces évolutions sans passer par une l'utilisation du spectre continu.

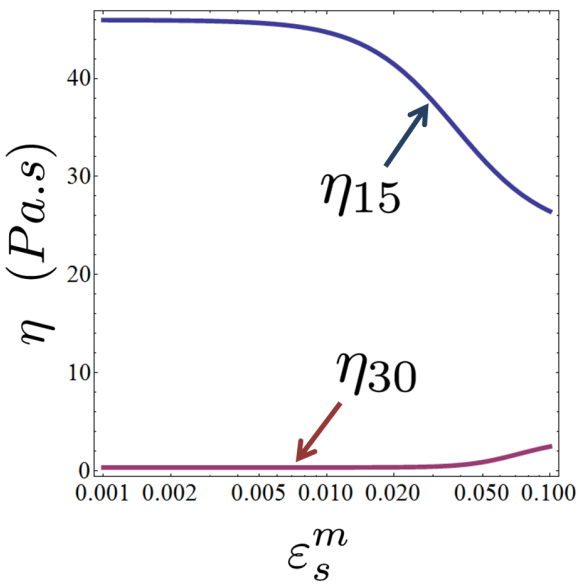


Figure 4.13: Exemple d'évolution de viscosités en fonction de l'invariant de déformation statique.

4.2.2 Modèle de comportement viscoélastique non linéaire

Le spectre des temps de relaxation étant maintenant discrétisé, il faut l'implémenter dans un modèle de comportement. Différents modèles existent pour décrire les comportements viscoélastiques, que ce soit dans le domaine des petites [Ward and Sweeney, 2000, Simo and Hughes, 1998, Lion, 1998] ou des grandes [Simo, 1987, Bonet, 2001, S. Lejeunes and et al., 2012, Lectez et al., 2013] transformations. Certains utilisent une forme intégrale [Ozupek and Becker, 1992, Christensen, 1980, Swanson and Christensent, 1983, Govindjee and Mihalic, 1998, Lion et al., 2009, Lectez et al., 2014, Petiteau et al., 2013], d'autres préfèrent utiliser un jeu de variables internes [Coleman and Gurtin, 1967, Huber and Tskmakis, 2000, LeTallec et al., 1993]. Quelle que soit la forme utilisée, le modèle de comportement doit être stable d'un point de vue thermodynamique [Halphen and Nguyen, 1975].

Il sera préféré ici de développer un modèle de comportement avec variables internes, qui se classe automatiquement dans la famille des matériaux standards généralisés, et donc thermodynamiquement consistent. La démarche à adopter se décompose en plusieurs parties: après avoir choisi le nombre de variables internes, il suffit de se donner pour chaque variable une forme d'énergie élastique et une forme de potentiel de dissipation. Classiquement, cette démarche se ramène de manière schématique à un modèle de Maxwell généralisé (voir Figure 4.14): le nombre de variables internes correspond au nombre d'éléments, l'énergie élastique correspond à l'énergie élastique du ressort, et le potentiel de dissipation correspond au potentiel de l'amortisseur. Les modèles de comportement viscoélastiques non linéaires à variables internes se découpent en deux catégories: soit la non linéarité du modèle repose sur une énergie élastique non linéaire [Morman, 1983, Lion, 2002, Natali et al., 2008, Diani et al., 2006], soit elle repose sur un potentiel de dissipation non linéaire [Huber and Tskmakis, 2000, Reese and Govindjee, 1998]. Bien que moins utilisée dans la littérature, c'est ce dernier type de modèle qui sera adopté dans cette étude car il accorde plus de liberté d'un point de vue mathématique. Une énergie élastique (linéaire ou non) doit présenter un caractère défini, positif et convexe. Un potentiel de dissipation doit seulement être défini et positif.

Forme générale

Puisque la caractérisation est réalisée pour de relativement faibles déformations, le cas des petites transformations est adopté pour la modélisation. Il est rappelé qu'un état de déformation, représenté par son tenseur linéarisé $\boldsymbol{\varepsilon}$, peut se décomposer en une partie sphérique $\boldsymbol{\varepsilon_v}$ et déviatorique $\boldsymbol{\varepsilon_{dev}}$ ([Lion, 1997]), par:

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon_v} + \boldsymbol{\varepsilon_{dev}} \tag{4.12}$$

Avec $\boldsymbol{\varepsilon_v} = \frac{1}{3}Tr(\boldsymbol{\varepsilon})\ \boldsymbol{I}$, où $Tr(\cdot)$ est l'opérateur trace. Certes l'étude se place dans le cas incompressible, mais la décomposition entre une partie déviatorique et sphérique est utile pour l'intégration du modèle dans un code de calcul par élément fini, en imposant un coefficient de compressibilité suffisamment élevé pour ne pas altérer les résultats. D'après [Coleman and Gurtin, 1967], par définition, la relation de comportement entre contraintes $\boldsymbol{\sigma}$ et déformations $\boldsymbol{\varepsilon}$ est donnée par:

$$\boldsymbol{\sigma} = \frac{\partial \psi}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}} \tag{4.13}$$

où ψ est la fonction d'énergie de déformation. En se basant sur les travaux de Simo [Simo, 1987], une décomposition classique de l'énergie de déformation ψ est considérée:

$$\psi(\boldsymbol{\varepsilon}, \boldsymbol{\alpha^1}, ..., \boldsymbol{\alpha^m}) = \psi^{\infty}(\boldsymbol{\varepsilon_{dev}}) + \sum_{i=1}^{n} \psi^i(\boldsymbol{\varepsilon_{dev}}, \boldsymbol{\alpha^i}) + J(\boldsymbol{\varepsilon_v}) \tag{4.14}$$

avec $\boldsymbol{\alpha^i}$ les variables internes associées au système qui traduisent les phénomènes visqueux du matériau, ψ^i les énergie élastiques, ψ^{∞} l'énergie élastique d'équilibre et J la partie associée à la variation de volume.

En considérant un processus isotherme, la stabilité thermodynamique, qui s'exprime par l'inégalité de Clausius-Duhem [LeTallec and Rahier, 1994], impose:

$$0 \leq \boldsymbol{\sigma} : \dot{\boldsymbol{\varepsilon}} - \dot{\psi} \tag{4.15}$$

En introduisant l'équation (4.14), cela donne:

$$0 \leq (\boldsymbol{\sigma} - \frac{\partial \psi}{\partial \boldsymbol{\varepsilon}}) : \dot{\boldsymbol{\varepsilon}} - \sum_{i=1}^{n} \frac{\partial \psi}{\partial \boldsymbol{\alpha^i}} : \dot{\boldsymbol{\alpha^i}} \tag{4.16}$$

Qui se simplifie en intégrant la relation de comportement 4.13 en:

$$0 \leq -\sum_{i=1}^{n} \frac{\partial \psi^i}{\partial \boldsymbol{\alpha^i}} : \dot{\boldsymbol{\alpha^i}} \tag{4.17}$$

D'après [LeTallec and Rahier, 1994], l'inégalité de Clausius-Duhem est respectée s'il existe une fonction ϕ^i, appelée potentiel de dissipation, telle que:

$$\frac{\partial \psi^i}{\partial \boldsymbol{\alpha^i}} + \frac{\partial \phi^i}{\partial \dot{\boldsymbol{\alpha^i}}} = 0 \tag{4.18}$$

Choix des énergies et potentiels

Le choix de la fonction d'énergie de déformation et des potentiels de dissipations va dépendre du matériau considéré, de l'application, et reste arbitraire sous réserve que les équations (4.13) et 4.18 soient respectées. Motivé par les travaux de Holzapfel [Holzapfel, 2006], une forme linéaire est choisie pour les énergies élastiques:

$$\psi^{\infty}(\boldsymbol{\varepsilon_{dev}}) = \frac{1}{2} E_{\infty} \boldsymbol{\varepsilon_{dev}} : \boldsymbol{\varepsilon_{dev}} \qquad \psi^i(\boldsymbol{\varepsilon_{dev}}, \boldsymbol{\alpha^i}) = \frac{1}{2} E_i (\boldsymbol{\varepsilon_{dev}} - \boldsymbol{\alpha^i}) : (\boldsymbol{\varepsilon_{dev}} - \boldsymbol{\alpha^i}) \tag{4.19}$$

avec $(E_i)_{i=1,n}$ des constantes de raideurs positives ou nulles. Une forme linéaire est également choisie pour la partie volumique de l'énergie qui, en prenant K comme le module de compressibilité, est égale à:

$$J(\boldsymbol{\varepsilon_v}) = \frac{K}{2} (\boldsymbol{\varepsilon_v} : \boldsymbol{\varepsilon_v}) \tag{4.20}$$

Cette forme d'énergie décrit le modèle de Maxwell généralisé (voir Figure 4.14), avec $\boldsymbol{\alpha^i}$ les variables internes qui correspondent à la déformation dans les amortisseurs. Une contrainte fictive $\boldsymbol{q^i}$ est associée à chaque variable interne $\boldsymbol{\alpha^i}$, correspondant à la contrainte dans amortisseur. Par analogie avec l'équation (4.13), la relation entre la contrainte fictive et sa variable interne est, suivant [Holzapfel, 2006], supposée égale à:

$$\boldsymbol{q^i} = -\frac{\partial \psi}{\partial \boldsymbol{\alpha^i}} \tag{4.21}$$

qui, en utilisant l'équation (4.19), revient à:

$$\boldsymbol{q^i} = E_i (\boldsymbol{\varepsilon_{dev}} - \boldsymbol{\alpha^i}) \tag{4.22}$$

Concernant les potentiels de dissipations, une forme quadratique est choisie pour chacun:

$$\phi^i = \frac{1}{2}\eta_i \, \dot{\boldsymbol{\alpha}}^{\boldsymbol{i}} : \dot{\boldsymbol{\alpha}}^{\boldsymbol{i}} \tag{4.23}$$

avec η_i la viscosité, qui peut avoir une évolution dans le temps mais qui doit absolument être positive ou nulle [Amin et al., 2006].

La combinaison des équations (4.13) et 4.19 donne:

$$\boldsymbol{\sigma} = E^{\infty}\boldsymbol{\varepsilon_{dev}} + \sum_{i=1}^{n} E_i(\boldsymbol{\varepsilon_{dev}} - \boldsymbol{\alpha}^{\boldsymbol{i}}) + K\boldsymbol{\varepsilon_v} \tag{4.24}$$

De la même manière, la combinaison des équations (4.18) et 4.19 aboutit à l'équation d'évolution des variables internes:

$$\eta_i\dot{\boldsymbol{\alpha}}^{\boldsymbol{i}} - E_i(\boldsymbol{\varepsilon_{dev}} - \boldsymbol{\alpha}^{\boldsymbol{i}}) = 0 \tag{4.25}$$

Le temps de relaxation associée τ_i, pris comme constant, vaux donc:

$$\tau_i = \frac{\eta_i}{E_i} \tag{4.26}$$

Pour finir, en supposant que $\boldsymbol{q^{\infty}} = E_{\infty}\boldsymbol{\varepsilon_{dev}}$, en utilisant la définition de la contrainte fictive $\boldsymbol{q^i}$ ainsi que les équations (4.24) et 4.25, le modèle viscoélastique complet est donnée par:

$$\boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{q^{\infty}} + \sum_{i=1}^{n} \boldsymbol{q^i} + K\boldsymbol{\varepsilon_v} \tag{4.27}$$

$$\eta_i\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}_{\boldsymbol{dev}} = \tau_i\dot{\boldsymbol{q}}^{\boldsymbol{i}} + \boldsymbol{q}^{\boldsymbol{i}} \tag{4.28}$$

L'utilisation du modèle défini par Holzapfel [Holzapfel, 2006] permet de faire apparaitre des grandeurs relatives à des contraintes. Ceci implique d'utiliser, pour les équations d'évolutions, uniquement les paramètres de temps de relaxation et de viscosités. Dans ce cas, le point crucial utilisé ici est que les temps de relaxation doivent être constants, mais les viscosités peuvent évoluer en fonction d'un paramètre. Cette évolution n'est pas forcément convexe mais doit rester positive. Si le modèle était écrit en faisant intervenir les modules variables E_i, l'évolution de ces modules aurait dû être positive et convexe.

Relation de comportement final

Dans le cas de cette étude, la viscosité va dépendre de l'invariant de déformation statique. Ainsi la série de Prony identifiée précédemment va pouvoir être utilisée ici. Schématiquement, un modèle de Maxwell généralisé à viscosité variable caractérise le modèle viscoélastique non linéaire obtenu (voir Figure 4.14). La loi de comportement viscoélastique non linéaire se résume à:

$$\boxed{\begin{array}{c} (\tau_i, \eta_i(\varepsilon_s^m))_{i=1,n} \\ \boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{q^\infty} + \sum_{i=1}^{n} \boldsymbol{q^i} + K\boldsymbol{\varepsilon_v} \\ \eta_i(\varepsilon_s^m)\ \dot{\boldsymbol{\varepsilon}}_{\boldsymbol{dev}} = \tau_i \dot{\boldsymbol{q^i}} + \boldsymbol{q^i} \end{array}}$$

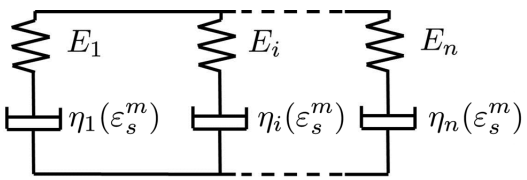


Figure 4.14: Schématisation du modèle viscoélastique obtenu par un modèle de Maxwell généralisé à viscosité variable.

4.2.3 Implémentation numérique

La relation de comportement viscoélastique obtenue est implémentée dans le code de calcul éléments finis Abaqus® [Abaqus] sous forme d'une "User Material". Les paramètres matériaux à renseigner sont:

- Les temps de relaxation identifiés $(\tau_i)_{i=1,n}$
- Les paramètres relatifs au spectre continu des temps de relaxation (voir table 4.2), à savoir $(E_{gi}, t_i)_{i=1,3}$, β_1, β_2, β_2^0 ainsi que ε_r et p.

Pour chaque incrément de déformation, les viscosités associées aux temps discrets de relaxation sont calculées, puis l'incrément de contrainte est évalué.

Séparation déformation statique / dynamique

Comme énoncé en introduction (équation (1.33)) et en généralisant à la notation tensorielle, le tenseur des déformations $\boldsymbol{\varepsilon} = (\varepsilon_{kl})_{kl}$ peut se décomposer en une partie statique $\boldsymbol{\varepsilon_S} = (\varepsilon_{S_{kl}})_{kl}$ et une partie dynamique $\boldsymbol{\varepsilon_D} = (\varepsilon_{D_{kl}})_{kl}$ de manière suivante:

$$\varepsilon_{kl}(t) = \varepsilon_{D_{kl}}(t) + \varepsilon_{S_{kl}}(t) \tag{4.29}$$

En se basant sur une analyse des essais expérimentaux de traction (non développé ici), il est postulé que la déformation dynamique est calculée à partir d'un filtre passe bande sur le signal de déformation total de manière suivante:

$$\dot{\varepsilon}_{D_{kl}}(t) + f_2\ \varepsilon_{D_{kl}}(t) = f_1\ \varepsilon_{kl}(t) \tag{4.30}$$

Avec $f_1 = 0.1\ s^{-1}$, et $f_2 = 5\ (1 + \frac{1}{1+(\frac{\varepsilon_{kl}}{10^{-4}})^4} - \frac{1}{1+(\frac{\varepsilon_{kl}}{1})^4})\ s^{-1}$. Cette relation est empirique et peut être discutée, mais permet néanmoins de rendre de bons résultats. A titre d'illustration, le découpage résultant entre partie statique et dynamique en Figure 4.15 pour un essai de traction, puis relaxation et DMA, à déformation ε_{11} imposée.

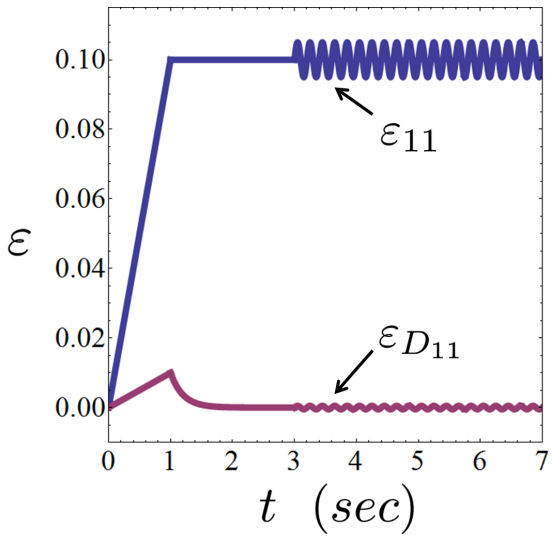


Figure 4.15: Décomposition de la partie statique et dynamique pour un essai de traction, puis relaxation et DMA.

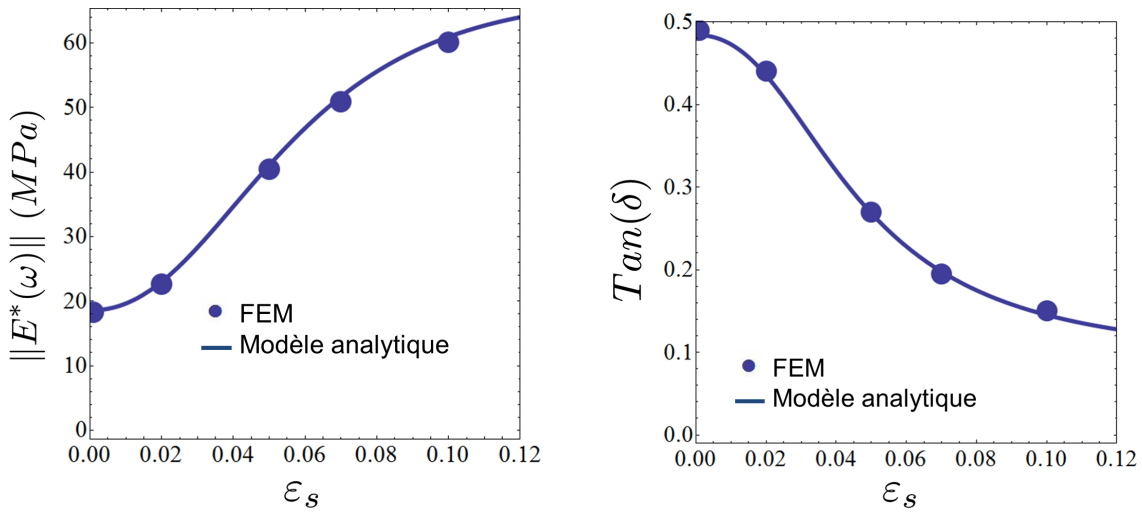
En utilisant l'équation (4.29), le tenseur de déformation statique peut être calculé et l'invariant de déformation statique égal à:

$$\varepsilon_s^m = \sqrt{\frac{2}{3}\boldsymbol{\varepsilon_S} : \boldsymbol{\varepsilon_S}} \tag{4.31}$$

Ainsi, à chaque pas de temps du calcul éléments finis, l'invariant de déformation statique est défini et permet de calculer les valeurs des viscosités (équation (4.11)).

Vérification

Afin de vérifier l'implémentation de la loi de comportement dans le code de calcul éléments finis, les prédictions du modèle analytique (voir Table 4.2) sont comparées avec les résultats de la simulation éléments finis. La Figure 4.16 évalue les résultats analytiques et les résultats issus des éléments finis pour un essai uni-axial de DMA réalisé avec déformations statiques pour une fréquence de $f = 5$ Hz et une amplitude dynamique de déformation de 0.3%.



(a) (b)

Figure 4.16: Comparaison entre prédictions analytiques du modèle viscoélastique non linéaire et résultats de la simulation éléments finis de (a) l'amplitude du module dynamique et (b) le facteur de perte pour des essais de DMA avec déformation statique uni-axiale.

En vue de valider le modèle obtenu et afin de justifier le choix de la fonction f_2, la Figure 4.17 propose de tracer les prédictions numériques avec des essais de traction à différentes vitesse. Tout en rappelant que la traction n'est pas l'essai le plus approprié pour ce type de comportement, la comparaison entre les deux types de résultats montre que la modèle sous évalue légèrement les valeurs expérimentales, mais reste néanmoins acceptable.

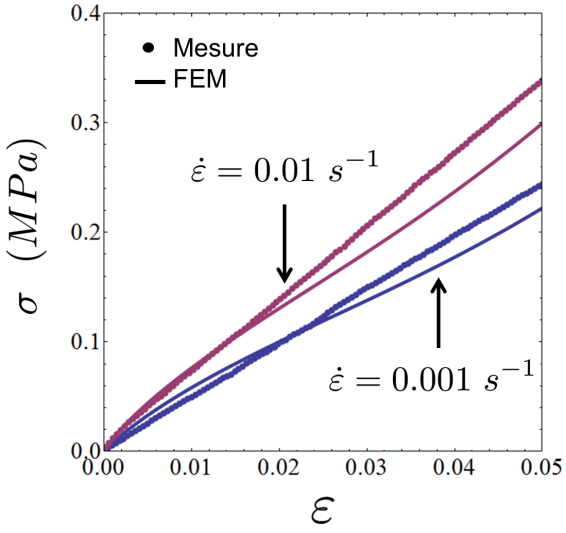


Figure 4.17: Comparaison entre prédiction numérique et résultats expérimentaux d'essais de traction à différentes vitesses de sollicitations.

La discrétisation du spectre viscoélastique continu a été réalisée en utilisant un algorithme d'optimisation. Grâce à une méthode de minimisation, une distribution optimale des temps de relaxation est trouvée puis les viscosités correspondantes ont été calculées. La série de Prony identifiée peut être combinée à la relation de comportement viscoélastique en petite transformation développée. Cette loi de comportement se schématise par un modèle de Maxwell généralisé à viscosité variable. La loi de comportement est intégrée dans un code de calcul élément fini. Les résultats des simulations numériques sont en accord avec le modèle analytique.

Conclusion

Dans ce chapitre, un modèle continu non linéaire est tout d'abord proposé pour décrire la viscoélasticité du propergol en utilisant le spectre des temps de relaxation. Identifié sur la courbe maitresse du module de relaxation, il se décompose en trois contributions, chacune correspondant à la signature de la mobilité moléculaire d'une phase de la matrice. L'origine des non linéarités observables dans le matériau étant attribuée à la fraction de polymère libre, sa contribution correspondante dans l'expression du spectre est modifiée pour tenir compte de l'invariant de déformation statique appliqué. Un spectre continu non linéaire permet donc à présent de décrire les propriétés viscoélastiques du matériau.

En vue d'être implémenté dans une loi de comportement, le spectre continu est discrétisé par un algorithme d'optimisation en une série de Prony à paramètres non constant, schématisé par un modèle de Maxwell généralisé à viscosité variable. Une loi classique de comportement viscoélastique en petite déformation est modifiée pour prendre en compte les variations des viscosités. La loi de comportement ainsi définie est ensuite traduite dans un code de calcul éléments finis et est validée par des essais mécaniques numériques. Afin de déterminer l'influence de cette non linéarité sur la réponse d'une structure complète, des simulations sur un modèle numérique de moteur à propulsion solide peuvent désormais être réalisées en tenant compte de cette loi viscoélastique non linéaire pour le propergol.

Chapitre 5

Réponse dynamique d'un moteur à propulsion solide

Les moteurs à propulsion solide destinés à des applications militaires présentent souvent une architecture étagée, voir Figure 5.1. Le mouvement général est assuré par plusieurs moteurs. Successivement, le moteur du premier étage génère la propulsion par combustion de son propergol, puis est largué. Le moteur du deuxième étage prend alors le relais, puis est également largué, et ainsi de suite.

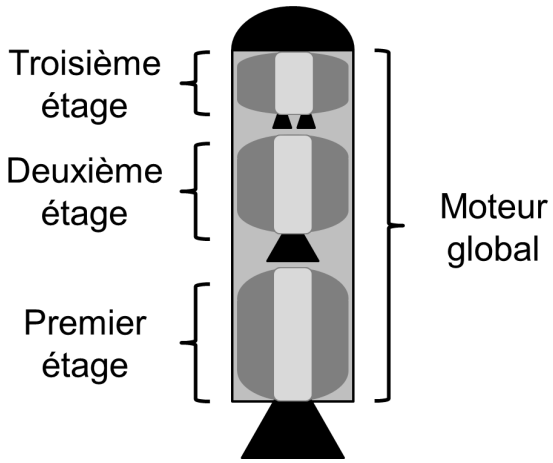


Figure 5.1: Schématisation d'un moteur à propulsion solide pour application militaire: le moteur global présente une architecture étagée.

Lors du fonctionnement d'un moteur d'un étage inférieur, des vibrations sont générées dans les moteurs des étages supérieurs, et plus généralement dans la structure

complète. La bonne connaissance de la réponse à des sollicitations de vibrations des moteurs des étages supérieurs est donc un réel enjeu. Un moteur est composé, majoritairement en poids, de propergol. L'objectif ici est donc de déterminer l'influence du modèle de comportement attribué au propergol sur la réponse dynamique d'un moteur à propulsion solide. L'analyse proposée en vue de déterminer l'influence du comportement du propergol repose sur la méthode numérique des éléments finis. Afin de mettre en évidence la nécessité de prendre en compte les non linéarités observées dans le comportement du propergol, la réponse dynamique d'un moteur sera successivement calculée avec un comportement mécanique pour le propergol, d'abord viscoélastique linéaire, puis viscoélastique non linéaire développé au chapitre précédent.

5.1 Démarche

La démarche numérique suivie en vue de déterminer l'influence du comportement mécanique du propergol sur la réponse en fréquence propre d'un moteur est développée dans cette partie. Un modèle numérique de moteur à propulsion solide simplifié est utilisé, et les différentes pièces le constituant sont brièvement décrites.

5.1.1 Modèle numérique du moteur

Afin de simplifier l'étude, un moteur à propulsion solide (voir Figure 5.2(a)) est représenté par un modèle numérique de dimension deux axi-symétrique (voir Figure 5.2(b)). Il est composé:

- d'une structure
- d'une tuyère
- d'une protection thermique
- de propergol
- d'une interface de collage entre la protection thermique et le propergol

La structure, la tuyère, la protection thermique ainsi que l'interface de collage sont prises en compte dans le calcul mais ne sont pas développées ici.

Le poids de toutes les pièces est renseigné et des comportements standards (élastique linéaire) sont utilisés pour décrire la mécanique de la structure, de la tuyère, de la protection thermique ainsi que des éléments de collage. En revanche, une attention particulière est portée sur le comportement mécanique du propergol. Deux analyses sont menées en parallèle. L'une utilise un modèle viscoélastique linéaire pour le propergol, à savoir que le comportement ne dépend pas de l'état de déformation statique. Les propriétés visqueuses du propergol sont prises comme constantes, et décrites par une série de Prony (voir équation (4.11)) où les viscosités associées aux temps discrets de relaxation τ_i sont égaux à $\eta_i = \eta_i(0)$. L'autre considère un modèle viscoélastique non linéaire pour le propergol, dépendant de l'état de déformation statique, développé au chapitre précédent avec $\eta_i = \eta_i(\varepsilon_s^m)$. Les résultats donnés par les deux analyses seront ensuite confrontés pour déterminer l'influence du comportement mécanique du propergol. La démarche est schématisée en Figue 5.3.

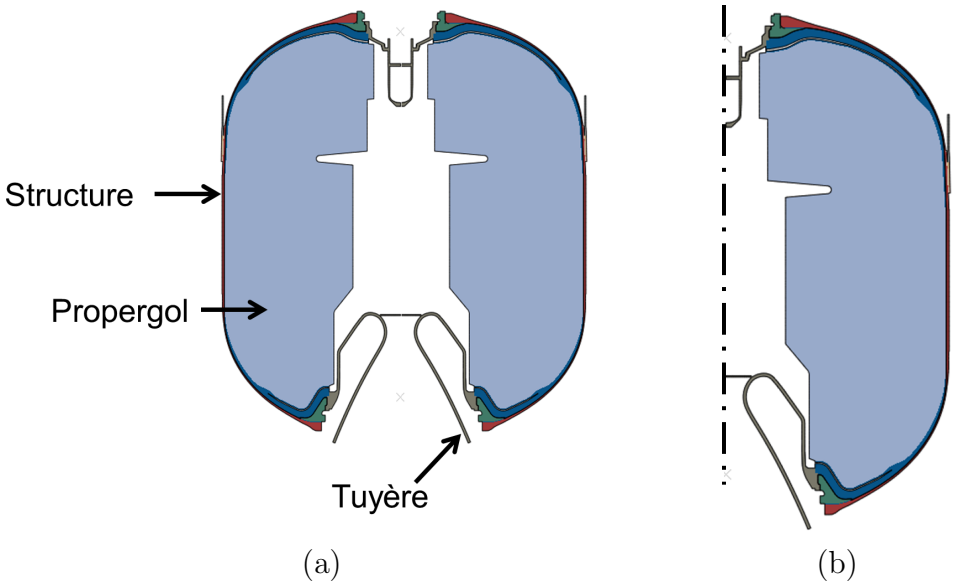


Figure 5.2: (a) Modèle numérique de moteur à propulsion solide complet. (b) Modèle numérique de moteur à propulsion solide simplifié, en deux dimensions axi-symétrique, utilisé pour l'étude.

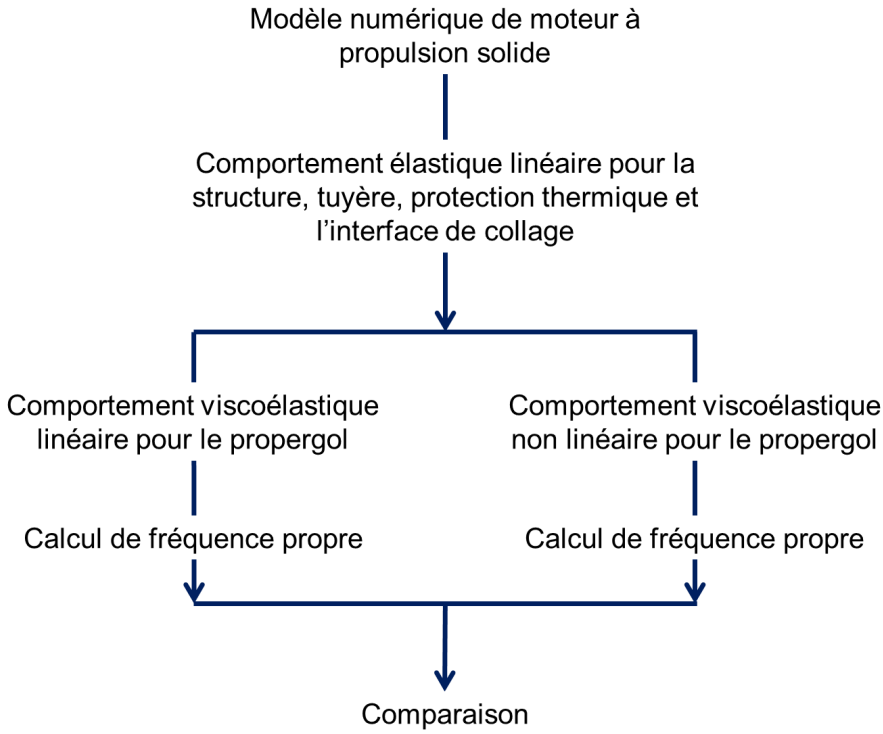


Figure 5.3: Schématisation de la démarche adoptée pour mettre en évidence l'influence du comportement mécanique du propergol sur le calcul de fréquence propre de vibration d'un moteur à propulsion solide.

5.1.2 Conditions aux limites

Il est choisi ici de rechercher la fréquence propre de vibration d'un moteur à propulsion solide d'un étage supérieur dans sa configuration de vol réelle. Les différents étages sont fixés les uns avec les autres au niveau de leurs parties hautes. Le seul point de liaison entre eux est matérialisé par le point "E" en Figure 5.4. Ils sont donc dans une position dite "suspendue". Lorsque le premier étage est en fonctionnement, il génère des vibrations qui se transmettent dans les moteurs des étages supérieurs par ce point "E". Il est choisi ici de s'intéresser à la première fréquence propre de vibration longitudinale (direction 2).

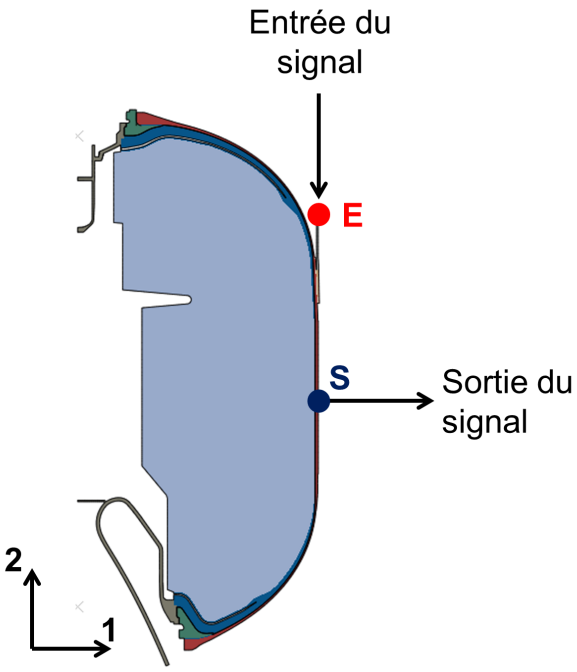


Figure 5.4: Modèle numérique du moteur avec les notations utilisées en vue de déterminer ses fréquences propres de vibration.

De manière classique en dynamique des structures [Girard and Roy, 2003], une analyse modale est réalisée. La structure est sollicitée par une accélération longitudinale sinusoïdale $a_e(t)$ au point "E" dans la direction 2. Par convention, l'accélération $a_s(t)$, dite en "mi-virole", est enregistrée au point "S" également dans la direction 2 et est considérée comme le point de sortie. Les transformées de Fourier deux signaux sont égales à:

$$a_e^*(\omega) = \mathcal{F}(a_e(t)) \qquad a_s^*(\omega) = \mathcal{F}(a_s(t))$$

et la fonction de transfert complexe $FT(\omega)$ associée est définie par:

$$FT(\omega) = \frac{a_s^*(\omega)}{a_e^*(\omega)} \tag{5.1}$$

Les fréquences donnant un maximum à l'amplitude de cette fonction de transfert sont égales aux fréquences propres de vibration de la structure

Au regard des choix numériques (choix du solveur, utilisation de comportements viscoélastiques), l'analyse modale doit être faite dans le domaine temporel. Ensuite, les différents signaux doivent ensuite être convertis dans le domaine fréquentiel. Sous cette contrainte, plusieurs méthodes sont possibles pour déterminer cette fonction de transfert:

- Sélectionner une série finie de n fréquences de sollicitation $(\omega_k)_{1\leq k\leq n}$ et les utiliser une à une comme fréquence d'accélération. Le signal d'entrée, à répéter n fois, devient alors

  $$a_e(t) = a_d \ \sin(\omega_k t)$$

  En enregistrant l'accélération en mi-virole pour chaque valeur de fréquence, la fonction de transfert $FT(\omega_k)$ se construit point par point. Cette méthode nécessite n calculs.

- Utiliser un signal de fréquence glissante en fonction du temps, dit signal "chirp". Cette méthode permet en un seul calcul de balayer une gamme de fréquence de sollicitation comprise en $\omega_1 \leq \omega \leq \omega_2$ en un temps donné T. Le signal d'entrée unique devient:

  $$a_e(t) = a_d \ \sin\left(\frac{\omega_1 \ T}{q_c} \times \left(e^{\frac{q_c t}{T}} - 1\right)\right)$$

  avec $q_c = \log(\frac{\omega_2}{\omega_1})$.

Cette dernière méthode est retenue pour déterminer la première fréquence propre de vibration longitudinale d'un moteur à propulsion solide. Elle a l'avantage d'être moins coûteuse en temps de calcul et plus précise.

5.2 Simulations et analyse

L'objectif ici est de simuler un cycle de vie d'un moteur à propulsion solide et de déterminer sa fréquence propre de vibration longitudinale par la suite. Deux comportements vont être successivement attribués au propergol: un comportement viscoélastique linéaire et un comportement viscoélastique non linéaire (voir Figure 5.3).

5.2.1 Cycle de vie

Un délai généralement long peut s'écouler entre le moment de début de fabrication d'un moteur et sa mise en marche: il s'agit de son cycle de vie. Le propergol va être sollicité mécaniquement pendant cette période, ce qui va générer des pré-déformations internes. Deux phases de ce cycle de vie sont principalement prises en compte dans les simulations. La première est la fabrication du propulseur, dont les étapes sont rappelées au premier chapitre. Dû à la géométrie du moteur, le refroidissement thermique vient générer des déformations internes dans le propergol. La seconde est la phase de stockage. Le fluage au cours du temps superpose des déformations suite à des délais d'attentes avant allumage relativement longs. Puisqu'il est impossible de recenser les positions du propulseur au cours de toute sa vie, cette dernière phase est mal connue. Elle est souvent simplifiée par un fluage du propergol au cours d'un stockage du moteur pour une position de tuyère orientée vers le bas. Pourraient s'ajouter à cela des phases de cycles thermiques (suivant la situation géographique du stockage du moteur) et des cycles de transports, mais elles ne sont pas intégrées dans cette étude.

Le cycle de vie du moteur simulé pour cette analyse est donc:

- le refroidissement de 30°C subit lors de la phase de fabrication sur 15 jours.
- un stockage du moteur sous gravité terrestre pendant an, tuyère orientée vers le bas.

L'état de déformation statique ε_s^m, tel qu'il a été défini en équation (4.31), résultant de ce cycle de vie est donné en Figure 5.5. La déformation statique moyenne dans le moteur est de $< \varepsilon_s^m >= 1.8\%$. Cet état de déformation statique dépend principalement de la phase de refroidissement (donc du coefficient de dilatation thermique ainsi que de la manière d'appliquer ce refroidissement), alors que la phase de stockage sous gravité a peu d'influence.

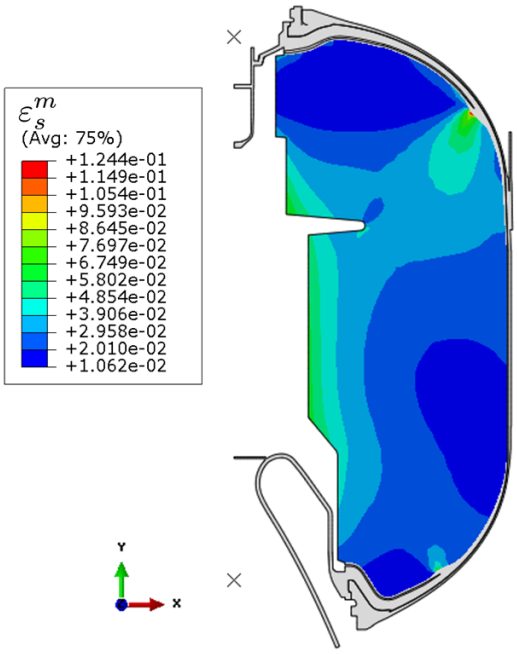


Figure 5.5: État de déformation statique dans un moteur après refroidissement de 30^oC sur 15 jours et stockage sous gravité pendant un an.

5.2.2 Fréquence propre longitudinale

A partir de cet état de déformation statique, la première fréquence propre longitudinale est recherchée. Pour ce faire, la méthode décrite à la section précédente est utilisée. Un signal d'accélération chirp est appliqué en entrée au point "E" dans la direction 2. Il balaye des fréquences comprises entre $10 \leq f \leq 50$ Hz (soit $62 \leq \omega \leq 314$ rad/sec) sur une période de $T = 10$ sec, pour une amplitude dynamique choisie de $a_d = 6.86$ m/sec^2. Le signal temporel de l'accélération est donné en Figure 5.6. Afin de se rendre compte de la fréquence variable du signal en fonction du temps, la Figure 5.7 effectue un grossissement de la période comprise entre 1 et 4 sec.

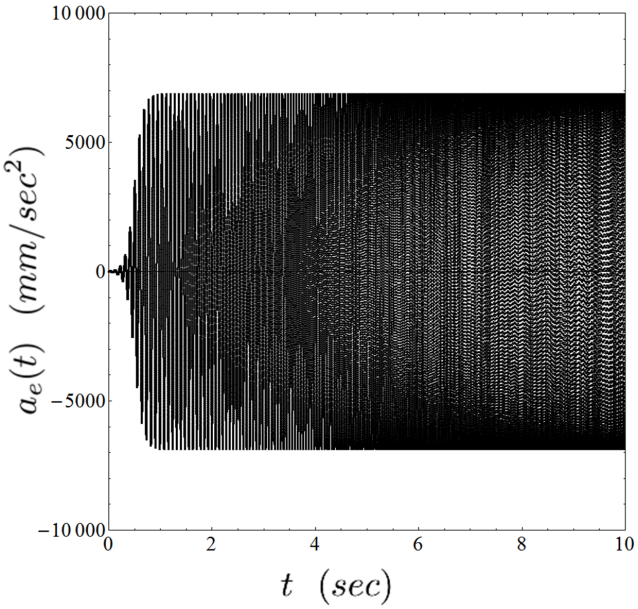


Figure 5.6: Signal d'accélération utilisé pour solliciter la structure au point "E" dans le domaine temporel pendant 10 sec.

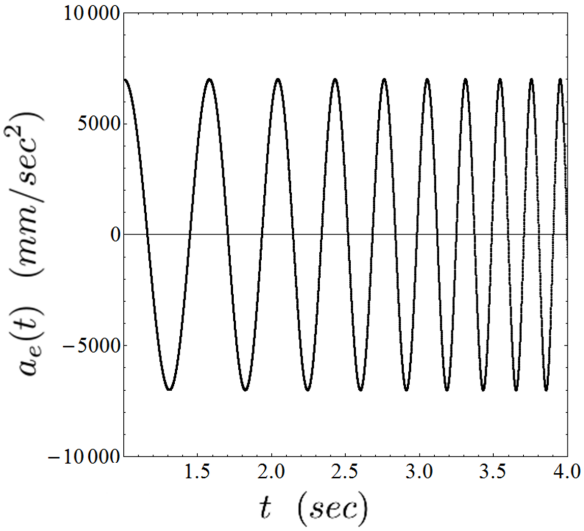


Figure 5.7: Mise en évidence de la fréquence glissante du signal en fonction du temps sur une plage entre 1 et 4 sec.

La transformée de Fourier $a_e^*(f)$ de l'entrée en accélération $a_e(t)$ tracée en Figure 5.8 confirme que le signal balaye la plage de fréquences souhaitée.

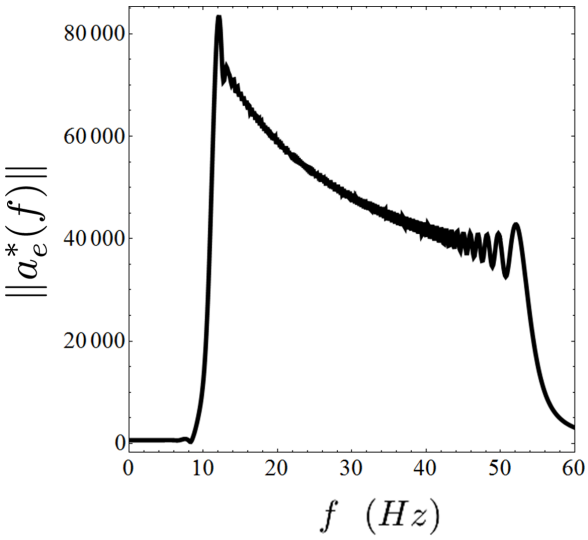


Figure 5.8: Signal d'accélération à fréquence glissante utilisé pour solliciter la structure au point "E" dans le domaine fréquentiel, balayant une gamme entre $10 \leq f \leq 50$ Hz.

L'accélération $a_s(t)$ induite par cette sollicitation $a_e(t)$ est enregistrée en mi-virole. La Figure 5.9 donne la réponse de la structure dans le domaine temporel, pour une modélisation du propergol par un comportement viscoélastique linéaire. Le pic de résonance, qui se produit autour de 7 sec, laisse supposer que le signal de sollicitation balaye une gamme qui inclut la première fréquence propre de vibration. Ce pic est également marqué dans le domaine fréquentiel par la transformée de Fourier du signal en mi-virole en Figure 5.10.

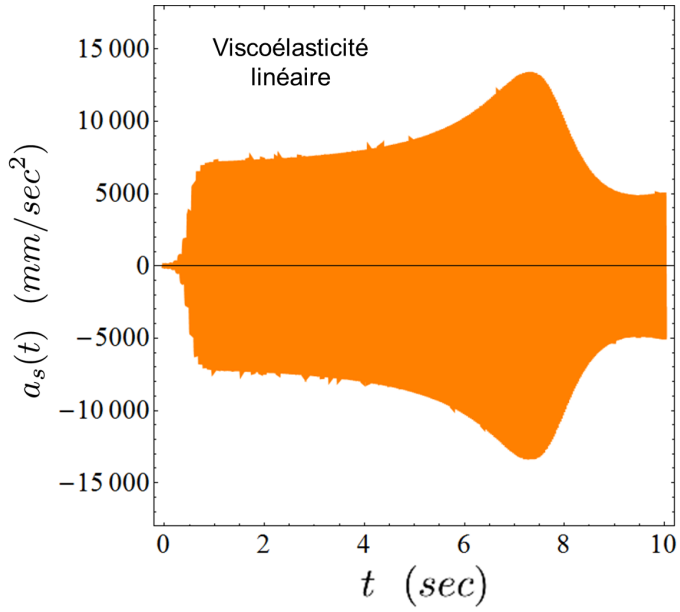


Figure 5.9: Signal dans le domaine temporel de l'accélération enregistrée en mi-virole pour un comportement viscoélastique linéaire du propergol.

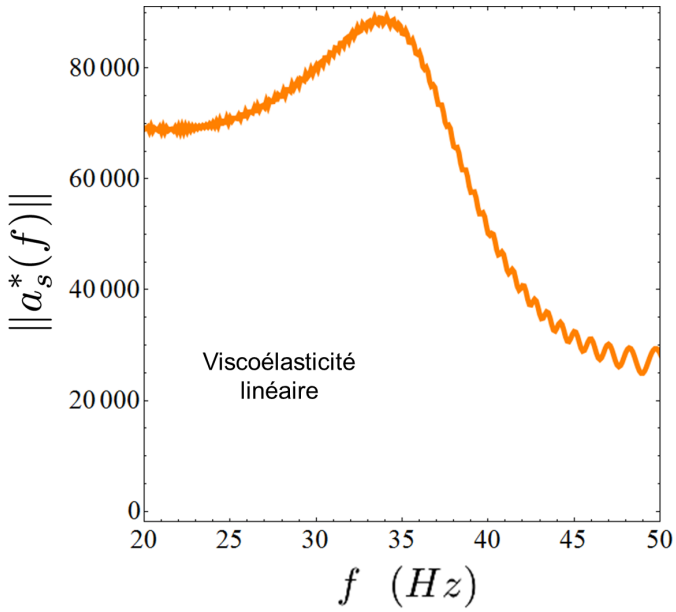


Figure 5.10: Signal dans le domaine fréquentiel de l'accélération enregistrée en mi-virole pour un comportement viscoélastique linéaire du propergol.

De même, la Figure 5.11 trace le signal temporel de l'accélération mesurée en mi-virole pour un comportement viscoélastique non linéaire attribué au propergol. Un pic de résonance semble être atteint pour la gamme de fréquence balayée, ce qui est confirmé par l'évolution de la transformée de Fourier du signal en Figure 5.12.

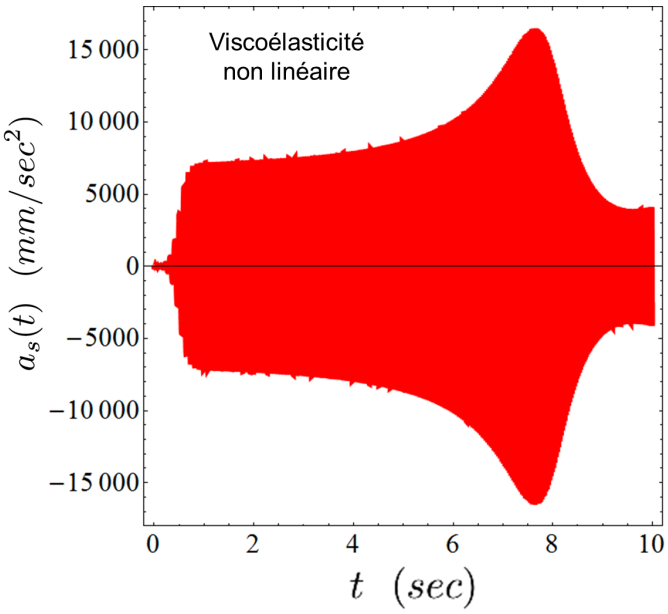


Figure 5.11: Signal dans le domaine temporel de l'accélération enregistrée en mi-virole pour un comportement viscoélastique non linéaire du propergol.

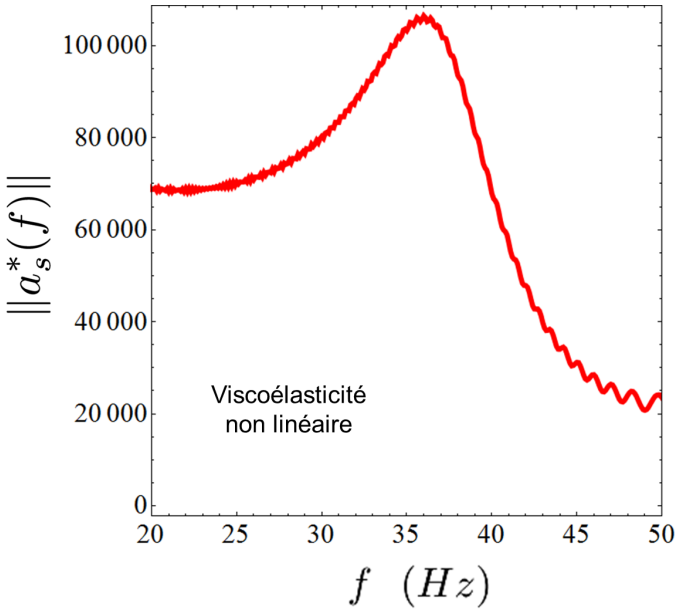


Figure 5.12: Signal dans le domaine fréquentiel de l'accélération enregistrée en mi-virole pour un comportement viscoélastique non linéaire du propergol.

A partir des transformées de Fourier des signaux d'accélération d'entrée (Figure 5.8) et de sortie (Figure 5.9(b) pour le comportement linéaire et Figure 5.11(b) et pour le comportement non linéaire), les fonctions de transfert sont calculées en utilisant l'équation (5.1). Les amplitudes de ces fonctions de transfert en fonction de

la fréquence sont données en Figure 5.13. Quel que soit le comportement attribué au propergol, viscoélastique linéaire ou non linéaire, un maximum est enregistré pour chacune d'entre elles. Outre la différence de la valeur maximum entre les deux fonctions de transfert (le gain est de 2 pour un comportement linéaire, et de 2.5 pour un non linéaire), il est intéressant de rechercher les fréquences qui engendrent ces maximums.

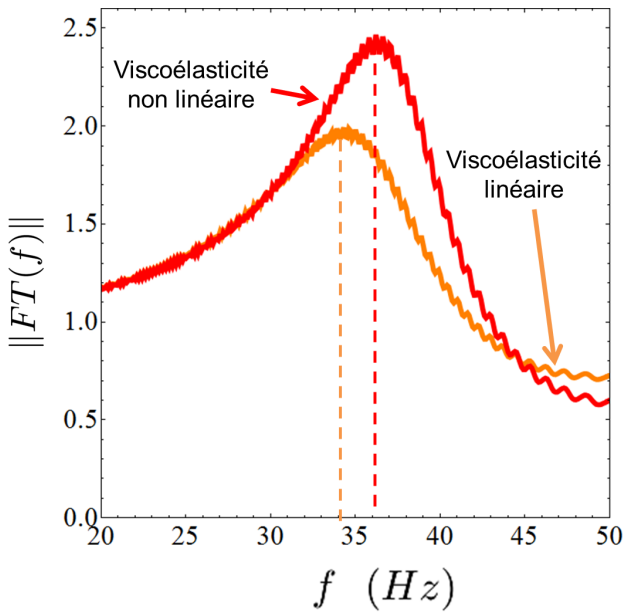


Figure 5.13: Amplitude des fonctions de transfert de la structure pour une sollicitation en accélération au point "E", en considérant un comportement mécanique du propergol viscoélastique linéaire et non linéaire.

Si le propergol est modélisé par un comportement viscoélastique linéaire, qui ne prend donc pas en compte la rigidification du matériau en fonction de la déformation statique, alors la première fréquence propre de vibration longitudinale calculée est égale à 34 Hz. En revanche, en utilisant le modèle non linéaire développé dans cette étude, qui retranscrit les modifications des propriétés en fonction de cette pré-déformation, la première fréquence propre de vibration longitudinale calculée devient égale à 36 Hz. Cette différence de 2 Hz représente une erreur relative non négligeable de 6% si le phénomène non linéaire du propergol n'est pas pris en compte.

	Fréquence propre (Hz)
Modèle linéaire	34
Modèle non linéaire	36

Conclusion

Cette partie permet de mettre en évidence l'importance de la prise en compte de la déformation statique dans la loi de comportement viscoélastique développée au chapitre précédent pour caractériser le comportement du propergol. La démarche numérique cherche à mettre en évidence l'influence du choix de comportement du propergol sur le calcul de la réponse dynamique d'un moteur à propulsion solide. Après avoir simulé un cycle de vie du moteur, la première fréquence propre longitudinale est recherchée en sollicitant la structure par un signal chirp d'accélération. Le calcul est réalisé en utilisant d'une part un modèle viscoélastique linéaire pour le propergol qui ne tient pas compte de la variation des propriétés mécaniques en fonction de la déformation statique, et d'autre part un modèle non linéaire qui tient compte de cet effet. Les fonctions de transfert du système sont calculées dans les deux cas, et les fréquences propres de vibration enregistrées. Une différence non négligeable de 6% est observée entre les deux résultats suivant si l'on tient compte ou pas des non linéarités. Cet écart montre l'importance de modéliser finement le comportement mécanique viscoélastique du propergol pour la recherche de fréquence propre de vibration de la structure, qui impacte les solutions technologiques retenues par la suite. Le modèle doit être enrichi en prenant en compte à présent d'autres non linéarités, à savoir l'effet Payne, l'effet Mullins, ou de l'endommagement. Une loi de comportement complète serait alors définie pour le propergol.

Conclusion

Avec un taux de charge proche de 70%, le propergol se classe dans la famille des élastomères fortement chargés. Afin de garantir l'intégrité des moteurs à propulsion solide, déterminer le comportement mécanique du propergol reste un défi majeur depuis ces dernières décennies. Ses propriétés mécaniques sont fortement non linéaires, quel que soit le régime de sollicitation. En quasi-statique, l'effet Mullins apparait lors d'un chargement cyclique. En dynamique, la rigidité du matériau dépend de l'amplitude dynamique de la déformation (effet Payne) mais également de l'amplitude statique du signal. Cette étude cherche à comprendre l'origine physique de cette dernière non linéarité, la caractériser et la modéliser en vue de l'intégrer dans un code de calcul par éléments finis.

Malgré sa présence minoritaire dans le composite (seulement 30% du volume), la matrice confère au propergol son comportement viscoélastique. La viscoélasticité d'un élastomère provient de mouvement moléculaire de ses chaines de polymère et peut être entièrement modélisée grâce à une seule fonction spectre des temps de relaxation. Différentes études ont permis de définir et caractériser la composition microscopique d'un propergol et surtout de sa matrice. A cause de son fort taux de charge, la méthode de fabrication du composite va induire une microstructure complexe et une matrice polyphasée. Un réseau de chaines de polymère réticulées participe à l'adhésion des particules entre elles, au travers duquel se trouvent des chaines de polymères libre non réticulées. Dans ces travaux, une analyse des phénomènes microscopiques agissant dans les élastomères chargés lors de sollicitations mécaniques est d'abord réalisée, reposant sur des méthodes numériques. Des microstructures

générées avec un algorithme de remplissage aléatoire présentent des taux de charge allant jusqu'à 70%. Leur étude permet de mesurer et quantifier le mouvement des particules et l'amplification des déformations au niveau microscopique lors d'un chargement mécanique. Ainsi, lors d'une sollicitation macroscopique, due aux mouvements des charges et aux déformations subies par la matrice, la mobilité moléculaire des chaines non réticulées est modifiée, entrainant au niveau macroscopique une non linéarité des propriétés viscoélastiques en fonction de la déformation appliquée.

Afin de déterminer la viscoélasticité du propergol en fonction de la déformation appliquée, une caractérisation complète est effectuée en parallèle dans le domaine fréquentiel ou temporel. La concordance entre les deux types de résultats permet d'obtenir une description de ces propriétés sur une large gamme de fréquence/temps. La réalisation d'une machine de sollicitation dynamique bi-axiale a permis de rendre compte de la dépendance de la viscosité à l'invariant de l'état de déformation appliquée. Le couplage entre mesure instantanée et éléments finis pour estimer les champs de contrainte et déformation au centre de l'éprouvette, ainsi que des mesures de DMA bi-axiales présentent un caractère innovant dans le domaine de la mesure de propriétés viscoélastiques.

Une méthode d'identification du spectre des temps de relaxation est développée. Premièrement, dans le domaine linéaire cette identification a l'avantage de présenter ni de singularités mathématiques et ni de complexités de mise en oeuvre. Ensuite l'identification de la partie non linéaire du comportement s'établit sur une origine physique. Cette non linéarité repose sur un seul paramètre dans l'écriture du modèle continu, facilement identifiable. La discrétisation de ce modèle, suivant une méthode optimisée, conduit à une représentation du comportement par un modèle de Maxwell généralisé à viscosité variable, dépendant de la déformation statique. Les paramètres de ce modèle discret sont ensuite utilisés dans la définition des équations d'évolution des variables internes d'une loi de comportement viscoélastique, acceptable d'un point de vue thermodynamique. Cette loi de comportement est implémentée dans un code de calcul par éléments finis. Pour compléter la loi, une décomposition de la déformation entre partie statique et dynamique est proposée.

Afin de se rendre compte de l'influence de la prise en compte de la déformation statique dans une loi de comportement viscoélastique, une simulation sur un modèle numérique de moteur à propulsion solide est réalisée. Un tel moteur subit au cours de son cycle de vie des chargements mécaniques qui engendrent dans le propergol des déformations résiduelles: les déformations statiques. Suite à cet état de déformation,

la réponse du moteur sous chargement dynamique est calculée. La simulation prend en compte successivement deux comportements mécaniques pour le propergol: le comportement viscoélastique dépendant de la déformation statique développé dans ses travaux, et un comportement viscoélastique linéaire (indépendant de la déformation statique). La comparaison entre les deux réponses enregistrées montrent une erreur non négligeable de 6% dans le calcul de la fréquence propre de vibration longitudinale, si l'impact de la déformation statique n'est pas pris en compte.

Cette étude complète développe une démarche de caractérisation et de modélisation des propriétés viscoélastiques d'un matériau, tout en s'appuyant sur des observations physiques. Cette démarche est applicable pour n'importe quel matériau et plusieurs non linéarités.

Une étude complémentaire des microstructures numériques pourrait être enrichie d'un modèle de cavitation que l'on rencontre dans les élastomères. Cela aboutirait au domaine de l'endommagement de ces matériaux, en fonction de la déformation appliquée.

La méthode de caractérisation bi-axiale ouvre des perspectives d'applications sur d'autres types de sollicitations, tels une désynchronisation des axes, un balayage plus important de la fréquence. Une amélioration de la machine en y intégrant une étuve permettrait d'explorer l'influence de la température sur les propriétés visqueuses bi-axiales du matériau.

L'identification du spectre des temps de relaxation proposée peut être généralisée à tout type de matériau. Suivant l'application, la non linéarité peut s'exprimer sur différents paramètres du modèle. La méthode d'optimisation de discrétisation du spectre continu, permet de diminuer le nombre de paramètres dans une loi de comportement viscoélastique, appréciable d'un point de vue numérique.

Dans le modèle de comportement thermodynamique développé, le découpage entre partie statique et dynamique peut être discuté et amélioré. Cependant, pour l'application choisie, la distinction retenue est suffisante. Une étude plus précise, avec des essais expérimentaux supplémentaires à définir, pourrait être réalisée en vue de mieux séparer l'influence de la partie statique et dynamique d'une déformation.

De plus, une étude similaire devrait être effectuée pour caractériser et modéliser l'impact de la partie dynamique du signal de déformation. L'effet Payne peut être

caractérisé de manière identique, des courbes maitresses pourraient être réalisées avec différentes amplitudes dynamiques. Un spectre des temps de relaxation dépendant de l'amplitude dynamique serait alors identifié.

Pour finir, la mesure de la réponse du moteur à propulsion solide sous sollicitations dynamiques doit être comparée à des mesures réelles, afin de confirmer l'intérêt des efforts portés sur la modélisation de l'impact de la partie statique de la déformation.

Références

Abaqus. *http://www.3ds.com/products-services/simulia/portfolio/abaqus/overview/.*

O. Alix, P. Ladeveze, and E. Vittecoq. Modelling and identification of the mechanical behavior of composite laminates in compression. *Composite Science and technology*, 51:35–42, 1994.

N. Alves, J. Gomez-Ribelles, and J. Mano. Study of the molecular mobility in polymer with the thermally stimulated recovery technique - a review. *Journal of Macromolecular Science, Part C: Polymer Review*, 45:99–124, 2005.

A. Amin, A. Lion, S. Sekita, and Y. Okui. Nonlinear dependence of viscosity in modeling the rate-dependent response of natural and high damping rubbers in compression and shear: Experimental identification and numerical verification. *International Journal of Plasticity*, 22:1610–1657, 2006.

E. Artin. *The Gamma Function.* Holt, 1964.

R. Avazmohammadi and P. Castaneda. Tangent second order estimates for the large strain, macroscopic response of particle reinforced elastomers. *Journal of Elasticity*, 112:139–183, 2012.

A. Azoug. *Micromecanismes et Comportement Macroscopique d un Elastomere Fortement Chargement.* PhD thesis, Ecole Polytechnique, 2010.

A. Azoug, A. Constantinescu, R. Pradeilles-Duval, M.F Vallat, R. Neviere, and B. Haidar. Effect of the sol fraction and hydrostatic deformation on the viscoelastic behavior of prestrained highly filled elastomers. *Journal of Applied Polymer Science*, 127:1772–1780, 2013a.

A. Azoug, A. Thorin, R. Neviere, R.M. Pradeilles-Duval, and A. Constantinescu. Influence of orthogonal prestrain on the viscoelastic behaviour of highly filled elastomers. *Polymer Testing*, 32:375–384, 2013b.

A. Azoug, A. Constantinescu, R.M. Paridelles Duval, and R. Neviere. Influence of cross-linking and plasticizing on the viscoelasticity of highly-filled elastomers. *Journal of Applied Polymer Science*, 131:201–215, 2014a.

A. Azoug, A. Constantinescu, R.M. Paridelles Duval, and R. Neviere. Influence of fillers and bonding agents on the viscoelasticity of highly-filled elastomers. *Journal of Applied Polymer Science*, 131:301–315, 2014b.

A. Azoug, A. Constantinescu, and R. Neviere. Molecular origin of the influence of the temperature on the loss factor of a solid propellant. *Propellants, Explosives, Pyrothecnics*, accepted, 2014c.

A. Azoug, A. Constantinescu, R. Neviere, and G. Jacob. Microstructure and deformation mechanisms of a solid propellant using 1h nmr spectroscopy. *Fuel*, 147:1–9, 2015.

J. Ball. Discontinuous equilibrium solutions and cavitation in nonlinear elasticity. *Philosophical Transaction of the Royal Society A*, 306:557–611, 1982.

J. Barber. *Elasticity*. GLADWELL, 2002.

M. Baumgaertel and H. Winter. Interrelation between continuous and discrete relaxation time spectra. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 44:15–36, 1992.

D. Bellett, F. Morel, A. Morel, and J. Lebrun. A biaxial fatigue specimen for uniaxial loading. *Strain*, 47:227–240, 2011.

H. Di Benedetto, C. Sauzeat, K. Bilodeau, M. Buannic, S. Mangiafico, Q. Nguyen, S. Pouget, N. Tapsoba, and J. Rompu. General overview of the time-temperature superposition principle validity for materials containing bituminous binder. *International Journal of Roads and Airports*, 10:35–52, 2010.

W. Benenson, J. Harris, H. Stocker, and H. Lutz. *Handbook of Physics*. Horst Stocker, 2000.

N. Bhatnagara, R. Bhardwaja, P. Selvakumara, and M. Brieu. Development of a biaxial tensile test fixture for reinforced thermoplastic composites. *Polymer Testing*, 26:154–161, 2007.

S. Bhattacharjee, A. Swamy, and J. Daniel. Continuous relaxation and retardation spectrum method for viscoelastic characterization of asphalt concrete. *Mechanics of Time Dependent Materials*, 16:287–305, 2012.

J. Bonet. Large strain viscoelastic constitutive models. *International Journal of Solids and Structures*, 38:2953–2968, 2001.

C. Brabec and A. Schausberger. An improved algorithm for calculating relaxation time spectra from material functions of polymers with monodisperse and bimodal molar mass distributions. *Rheologica Acta*, 34:397–405, 1995.

C. Brabec, H. Rgl, and A. Schausberger. Investigation of relaxation properties of polymer melts by comparison of relaxation time spectra calculated with different algorithms. *Rheologica Acta*, 36:667–676, 1997.

R. Bracewell. *The Fourier Transform and Its Applications*. Standford University, 1975.

H. Bresis. *Analyse Fonctionelle*. Masson, 1983.

M. Brieu, J. Diani, and N. Bhatnagar. A new biaxial tension test fixture for uniaxial testing machine. a validation for hyperelastic behavior of rubber-like materials. *Journal of Testing and Evaluation*, 35:35–44, 2007.

F. Brinson. *Polymer Engineering Science and Viscoelasticity. An Introduction*. Springer, 2008.

M. Bryning, D. Milkie an M. Islam, J. Kikkawa, and A. Yodh. Thermal conductivity and interfacial resistance in single wall carbon nanotube epoxy composites. *Applied Physics Letters*, 87:161–164, 2005.

C. Carrot and V. Verney. Determination of a discrete relaxation spectrum from dynamic experimental data using the pade-laplace method. *European Polymer Journal*, 32:69–77, 1996.

S. Castagnet. High temperature mechanical behavior of semi crystalline polymers and relationship to a rubber like relaxed state. *Mechanics of Materials*, 41:75–86, 2009.

A. Chai, E. Verron, A. Andriyana, and M. Johan. Mullins effect in swollen rubber: Experimental investigation and constitutive modelling. *Polymer Testing*, 32:748–759, 2013.

L. Chevalier, S. Calloch, F. Hild, and Y. Marco. Digital image correlation used to analyze the multiaxial behavior of rubber like materials. *European Journal of Mechanics*, 20:169–187, 2001.

K. Cho and A. Gent. Cavitation in model elastomeric composites. *Journal of Materials Science*, 23:141–144, 1988.

R. Christensen. A nonlinear theory of viscoelasticity for application to elastomers. *Journal of Applied Mechanics*, 47:762–768, 1980.

B. Coleman and M. Gurtin. Thermodynamics with internal state variables. *Journal of Chemical Physics*, 47:597–613, 1967.

R. Cook. *Finite Element Modeling for Stress Analysis*. John Wiley and Sons, 1995.

CorrelManuV. *http://www.lms.polytechnique.fr/users/bornert/cmv*.

J. Crevoisier, G. Besnard, Y Merckel, H. Zhang, F Vion-Loisel, J. Caillard, D. Berghezan, C. Creton, J. Diani, M. Brieu, F. Hild, and S. Roux. Volume changes in a filled elastomer studied via digital image correlation. *Polymer Testing*, 31: 663–670, 2012.

H. Darmstadt, C. Roy, and S. Kaliaguine. Characterization of pyrolytic carbon blacks from commercial tire pyrolysis plants. *Carbon*, 33:1449–1455, 1995.

A. Davenas. *Technologie des Propergols Solides*. Masson, 1989.

A. Davies. Solid propellants: The combustion of particles of metal ingredients. *Combustion and Flame*, 7:359–367, 1963.

A. Daviesa and N. Gouldinga. Wavelet regularization and the continuous relaxation spectrum. *Journal of Non-Newtonian Fluid Mechanics*, 189:19–30, 2012.

P. de Gennes. *Scaling Concept in Polymer Physics*. Cornell University Press, Ithaca, New York,, 1979.

B. Deng, Z. Shen, J. Duan, and G. Tang. Finite element method for viscoelastic medium with damage and the application to structural analysis of solid rocket motor grain. *Science China Physics, Mechanics and Astronomy*, 57:908–915, 2014.

J. Diani and P. Gilormini. Using a pattern based homogenization scheme for modeling the linear viscoelasticity of nano reinforced polymers with an interphase. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 63:51–61, 2014.

J. Diani, M. Brieu, and P. Gilormini. Observation and modeling of the anisotropic visco hyperelastic behavior of a rubber like material. *International Journal of Solids and Structures*, 43:3044–3056, 2006.

J. Diani, Y. Merckel, M. Brieu, and J. Caillard. Comparison of stress-softenin in carbon-black filled natural rubber and styrene-butadiene rubber. *Rubber Chemistry and Technology*, 86:572–578, 2013.

M. Doi. Molecular theory of the viscoelastic properties of concentrated polymer solutions. *Chemical Physics Letters*, 26:269–275, 1974.

M. Doi and S. F. Edwards. *The Theory of Polymer Dynamics*. Clarendon, Oxford, 1986.

M. Donna, P. Hanson, and T. Parra. Thermal properties measurements of solid rocket propellant oxidizers and binder materials as a function of temperature. *Journal of Energetic Materials*, 17:1–48, 1999.

J.B. Donnet. *Carbon Black*. Marcel Dekker, 1993.

J. Duan. Fitting methods for relaxation modulus of viscoelastic materials,. *ournal of Central South University of Technology*, 14:248–250, 2007.

S. Edwards. Dynamics of polymers in solution and melts. *Polymer*, 26:163–170, 1985.

Elcom. *http://www.elcom.fr/*.

R. Farris. Dilatation of granular filled elastomers under high rates of strain. *Journal Applied Polymer Science*, 8:25–35, 1964.

W. Findley, J. Lai, and K. Onaran. *Creep and Relaxation of Nonlinear Viscoelastic Materials*. 1976.

S. Fu, X. Feng, B. Lauke, and Y. Mai. Effects of particle size, particle matrix interface adhesion and particle loading on mechanical properties of particulate polymer composites. *Composites*, 39:933–961, 2008.

Y. Fukahori. Generalized concept of the reinforcement of elastomers. *Rubber Chemistry and Technology*, 80:701–725, 2007.

A. Gent and P. Lindley. Internal rupture of bonded rubber cylinders in tension. *Proceeding of the Royal Society of London A*, 249:195–205, 1959.

A. Girard and N. Roy. *Dynamique des structures industrielles*. Lavoisier, 2003.

I. Gitman, H. Askes, and L. Sluys. Representative volume: Existence and size determination. *Engineering Fracture Mechanics*, 74:2518–2534, 2007.

T. Goudarzi and O. Lopez-Pamies. Numerical modeling of the nonlinear elastic response of filled elastomers via composite-sphere assemblages. *Journal of Applied Mechanics*, 47:1028–1036, 2013.

S. Govindjee and P. Mihalic. Viscoelastic constitutive relations for the steady spinning of a cylinder. *Report, University of California, Berkeley*, 1998.

E. Guth. Theory of filler reinforcement. *Journal of Applied Physique*, 16:20–35, 1945.

J.L. Halary, F. Laupretre, and L. Monnerie. *Polymer Materials: Macroscopic Properties and Molecular Interpretations.* Wiley, 2011.

B. Halphen and Q. Nguyen. Sur les matriaux standards generaliss. *Journal de Mcanique*, 14:39–63, 1975.

A. Hanyga. *"Physically Acceptable Viscoelastic Models" in Trends in Applications of Mathematics to Mechanics.*

HBM. *http://www.hbm.com/fr/.*

C. Ho and P. Romero. Alternative function to represent relaxation modulus of viscoelastic materials. *Journal of Material for Civil Engineering*, 24:152–158, 2012.

P. Hofer and A. Lion. Modelling of frequency and amplitude dependent material properties of filler reinforced rubber. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 57:500–520, 2009.

Gerhard A. Holzapfel. *Nonlinear Solid Mechanics, a Continuum Approach for Engineering.* John Wiley and Sons, 2006.

T. Hsia, S. Smith, and B. Lantz. Ciomputerized tomography using a modified orthogonal tangent correction algorithm. *Computer Programs in Biomedecine*, 6:136–141, 1976.

N. Huber and C. Tskmakis. Discussion of finite deformation viscoelasticity laws with reference to torsion loading. *Continuum Mechanics and Thermodynamics*, 12:303–323, 2000.

D. Jalocha, A. Constantinescu, and R. Neviere. Revisiting the identification of generalized maxwell models from experimental results. *International Journal of Solids and Structures*, 64:169–181, 2015.

M. Johlitz and S. Diebels. Characterisation of a polymer using biaxial tension tests. *Archive of Applied Machanics*, 81:1333–1349, 2011.

W. Knauss, L Emri, and H. Lu. *Handbook of Experimental Solid Mechanics*. Spinger, 2006.

G. Kraus. Mechanical losses in carbon black filled rubbers. *Journal of Applied Polymer Science: Applied Polymer Symposium*, 39:75–92, 1984.

D. Kurtz, J. Kurweil, and C. Swartz. *Theory of Integration*. World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd, 2004.

A. Lakes. *Viscoelastic Materials*. Cambridge University Press, 2009.

A. Launay, M Maitournam, Y. Marco, I. Raoult, and F. Szmytka. Cyclic behaviour of short glass fibre reinforced polyamide: Experimental study and constitutive equations. *International Journal of Plasticity*, 27:1267–1293, 2011.

A. Launay, M. Maitournam, Y. Marco, and I. Raoult. Multiaxial fatigue models for short glass fiber reinforced polyamide part i: Nonlinear anisotropic constitutive behavior for cyclic response. *International Journal of Fatigue*, 47:382–389, 2013.

M. Lavrent. *Some Ill-Posed Problems of Mathematics Physics*. Berlin: Springer, 1967.

A Lectez, E. Verron, B. Huneau, A. Beranger, and F. Le Brazidec. Characterization of elastomers under simultaneous tension and torsion for application to engine mounts. *European Conference on Constitutive Models for Rubbers*, 8:585–590, 2013.

A. Lectez, E.Verron, and B.Huneau. How to identify a hyperelastic constitutive equation for rubber like materials with multiaxial tension torsion experiments. *International Journal of Non Linear Mechanics*, 65:260–270, 2014.

J. Lee and C. Hsu. Thermal properties and shelf life of hmx htpb based plastic bonded explosives. *Thermochimica Acta*, 393:153–156, 2002.

V. Lefevre, K. Ravi Chandar, and O. Lopez Pamies. Cavitation in rubber: an elastic instability or a fracture phenomenon? *Interntational Journal of Fracture*, 2014.

P. LeTallec. *Modelisation et Calcul des Milieux Continus*. Edition de l'Ecole Polytechnique, 2012.

P. LeTallec and C. Rahier. Numearical models of steady rolling for non linear viscoelastic structures in finite deformations. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 37:1159–1186, 1994.

P. LeTallec, C. Rahier, and A. Kaiss. Three dimensional incompressible viscoelasticity in large strains: Formulation and numerical approximation. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 109:223–258, 1993.

A. Lion. A physically based method to represent the thermo-mechanical behaviour of elastomers. *Acta Mechanica*, 123:1–25, 1997.

A Lion. Thixotropic behavior of rubber under dynamic loading histories: Experiments and theory. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 46:895–930, 1998.

A. Lion. Strain dependant dynamic properties of filled rubber: a non linear viscoelastic approach based on structural variables. *Rubber Chemistry and Technology*, 72:410–429, 1999.

A Lion. On finite linear viscoelasticity of incompressible isotropic materials. *Acta Machanica*, 159:87–124, 2002.

A. Lion and C. Kardelky. The payne effect in finite viscoelasticity: Constitutive modelling based on fractional derivatives and intrinsic time scales. *International Journal of Plasticity*, 20:1313–1345, 2004.

A. Lion, J. Retka, and M. Rendek. On the calculation of predeformation dependent dynamic modulus tensors in finite nonlinear viscoelasticity. *Mechanic Research Community*, 36:500–520, 2009.

V. Litvinov and P. Steeman. Epdm-carbon black interactions and the reinforcement mechanisms, as studied by low-resolution 1h nmr. *Macromolecules*, 32:8476–8490, 1999.

O. Lopez-Pamies. A new i1 based hyperelastic model for rubber elastic materials. *Compte Rendu Mecanique*, 338:3–11, 2010.

O. Lopez-Pamies, M. Idiart, and T. Nakamura. Cavitation in elastomeric solids: I - a defetct growth theory. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 59: 1464–1487, 2011a.

O. Lopez-Pamies, T. Nakamura, and M. Idiart. Cavitation in elastomeric solids: Ii - onset of cavitation surfaces for neo hookean materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 59:1488–1505, 2011b.

O. Lopez-Pamies, T. Goudarzi, and K. Danas. The nonlinear elastic response of suspensions of rigid inclusions in rubber:ii a simple explicit approximation for finite concentration suspensions. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 61: 19–37, 2013.

J. Luk-Cyr, Crochon T., and C. Li. Interconversion of linearly viscoelastic material functions expressed as prony series: a closure,. *Mechanics of TimeDependent Materials*, 17:53–82, 2013.

A. Malkin. The use of a continuous relaxation spectrum for describing the viscoelastic properties of polymers. *Polymer Science*, 48:39–45, 2006.

Y. Marco, L. Chevalier, and M. Chaouche. Waxd study of induced crystallization and orientation in poly(ethylene terephthalate) during biaxial elongation. *Polymer*, 43: 6569–6574, 2002.

A. Markovitz and J. Hershel. Boltzmann and the beginnings of rheology. *Transactions of the Society of Rheology*, 21:3:381–398, 1977.

N. Merlette and E. Pagnacco. Structural dynamics of solid propellant with frequency dependant properties. *European Conference on Space Structures, Materials & Environmental Testing*, 12:20–26, 2012.

J. Michel, O. Lopez-Pamies, P. Ponte Castaneda, and N. Triantafyllidis. Microscopic and macroscopic instabilities in finitely strained fiber reinforced elastomers. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 58:1776–1803, 2010.

K. Morman. Finite element analysis of sinusoidal small-amplitude vibrations in deformed viscoelastic solids. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 19:1079–1103, 1983.

D. Mowery, R. Assink, and M. Celina. Sensitivity of proton nmr relaxation times in a htpb based polyurethane elastomer to thermo-oxidative aging. *Polymer*, 46: 10919–10924, 2005.

L. Mullins. Softening of rubber by deformation. *Rubber Chemical Technology*, 42: 339–345, 1969.

T. Nakamura and O. Lopez-Pamies. A finite element approach to study cavitation instablilities in nonlinear elastic solids under general loading conditions. *International Journal of Non-Linear Mechanics*, 47:331–340, 2012.

A. Natali, E. Carniel, P. Pavan, F. Sander, C. Dorow, and M. Geiger. A visco hyperelastic damage constitutive model for the analysis of the biomechanical response of the periodontal ligament. *Journal of Biomechanical Engineering*, 130:144–152, 2008.

Netgen. *http://www.netgenlabs.com/*.

R. Neviere. An extension of the time temperature superposition principle to non-linear viscoelastic solids. *International Journal of Solids and Structures*, 43:5295–5303, 2006.

S. Nguyen, S. Castagnet, and J. Grandidier. Nonlinear viscoelastic contribution to the cyclic accommodation of high density polyethylene in tension: Experiments and modeling. *International Journal of Fatigue*, 55:166–177, 2013.

B. Nicholas. *The Phenomenological Theory of Linear Viscoelastic Behavior: An Introduction*. Hardcover, 1989.

R. Ogden. *Nonlinear Elastic Deformation*. Dover, 1997.

R. Ogden and D. Roxburgh. A pseudo elastic model for the mullins effect in filled rubber. *Proceding of the Royal Society of London*, 455:2861–2877, 1999.

S. Ozupek. *Constitutive Modeling of Hight Elongation Solid Propellants*. PhD thesis, University of Texas, 1989.

S. Ozupek and E. Becker. Constitutive modeling of high elongation solid propellants. *Journal of Engeenering Material and Technology -Trans. ASME*, 114:111–115, 1992.

A. Payne. The dynamic properties of carbon black-loaded natural rubber vulcanizates. part i. *Journal of Applied Polymer Science*, 6:53–57, 1962.

J. Petiteau, E. Verron, R. Othman, H. Le Sourne, J. Sigrist, and G. Barras. Large strain rate-dependent response of elastomers at different strain rates: convolution integral vs. internal variable formulations. *Mechanic of Time Dependent Material*, 17:349–367, 2013.

H. Press, A. Teukolsky, T. Vetterling, and P. Flannery. *Numerical recipes, The art of Scientific Computing.*

S. Reese and S. Govindjee. A theory of finite viscoelasticity and numerical aspects. *Journal of Solids and Stuctures*, 35:3455–3482, 1998.

M. Rendek and A. Lion. Amplitude dependence of filler reinforced rubber: Experiments, constitutive modelling and fem implementation. *International Journal of Solids and Structures*, 47:2918–2936, 2010.

M. Rival. *Grandes inventions de l'humanite.* Larousse, 2005.

C. Roland. Unconventional rubber networks: Circumventhing the compromise between stiffness and strength. *Rubber Chemical Technology*, 86:351–366, 2013.

D. Roylance. *Engineering Viscoelasticity.* MIT, 2001.

T. Nguyen Van S. Lejeunes and, A. Boukamel, and D. Eyheramendy. Linearized behavior of a dissipative rubber with large static preloads. *Computers and Structures*, 96:46–53, 2012.

J. Salenon. *Viscolasticit.* Collection: Cours de calcul des structures anlastiques, 1983.

J. Schiff. *The Laplace Transform.* Springer Science, 1999.

V. Shtrauss. Determination of the relaxation and retardation spectra. a view from the up to date signal processing perspective. *Mechanics of Composite Materials*, 48: 27–46, 2012.

E. Sideridis and G. Papadopoulos. Short beam and three point bending test for the study of shear and flexural properties in unidirectional fiber reinforced epoxy composites. *Journal of Applied Polymer Science*, 93:63–74, 2004.

M. Simhambhatla and A. Leonov. On the rheological modeling of filled polymers with particle matrix interactions. *Rheologica Acta*, 34:329–338, 1995.

J. Simo. On a fully three dimensional finite strain viscoelastic damage model: Formulation and computational aspects. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 60:153–173, 1987.

J. Simo and T. Hughes. *Computational Inelasticity.* Interdisciplinary Applied Mathematics, 1998.

H. Smallwood. Limiting law of the reinforcement of rubber. *Journal of Applied Physique*, 15:758–768, 1944.

T. Smith. Empirical equations for representing viscoelastic functions and for deriving spectra. *Journal of Polymer Science*, 35:39–50, 1971.

A. Smits, D. Vzn Hemelrijck, T. Philippidis, and A. Cardon. Design of a cruciform specimen for biaxial testing of fibre reinforced composite laminates. *Composite Science and Technology*, 66:964–975, 2006.

SNT. *http://www.snt.tm.fr/*.

F. Stadler. Effect of incomplete data sets on the calculation of continuous relaxation spectra from dynamic mechanical data. *Rheologica Acta*, 49:1041–1057, 2010.

F. Stadler and C. Bailly. A new method for the calculation of continuous relaxation spectra from dynamic mechanical data. *Rheologica Acta*, 48:33–49, 2009.

M. Summerfield. *Solid Propellant Rocket Research*. Academic Press, 1960.

S. Swanson and L. Christensent. A constitutive formulation for high elongation propellants. *Journal of SpaceCraft*, 20:559–566, 1983.

J. Teixeira-Pinto, S. Castagnet, C. Nadot-Martin, and F. Touchard. Numerical study of cyclic accommodation at the lamellar scale of a viscoelastic semi crystalline polymer. *International Journal of Fatigue*, 54:133–142, 2013.

A. Thorin, A. Azoug, and A. Constantinescu. Influence of prestrain on mechanical properties of highly filled elastomers: Measurements and modeling. *Polymer Testing*, 31:978–986, 2013.

N. Tschoegl and I. Emri. Generating line spectra from experimental responses. iii. interconversion between relaxation and retardation behavior. *International Journal of Polymeric Materials and Polymeric Biomaterials*, 18:117–127, 1992.

J.D. Ulmer. Strain dependence of dynamic mechanical properties of carbon black filled rubber compounds. *Rubber Chemistry and Technology*, 69:15–47, 1995.

W. Voigt. *Lehrbuch der Kristallphysik*. Berlin: Teubner, 1928.

I. Ward and J. Sweeney. *An Introduction of the Mechanical Porperties os Solid Polymers*. John Wiley and Sons, 2000.

J. White and J. Crowder. The influence of carbon black on the extrusion characteristics and rheological properties of elastomers: Polybutadiene and butadiene styrene copolymer. *Journal of Applied Polymer Science*, 18:1013–1038, 1974.

D. Widder. *The Laplace Transform*. Princeton University Press, 1946.

F.A Williams, M. Barrere, and N.C Huang. *Fundamental Aspects of Solid Propellant Rockets*. Technvision Service, 1969.

M. Williams, R. Landel, and J. Ferry. The temperature dependence of relaxation mechanisms in amorphous polymers and other glass-forming liquids. *Journal of the American Chemical Society*, 77:3701–3707, 1955.

Wolfram. *www.wolfram.com*.

D. Wollscheid. *Predeformation and frequency dependence of filler reinforced rubber under vibration*. PhD thesis, Universitat der Bundeswehr Munchen, 2014.

D. Wollscheid and A. Lion. Predeformation- and frequency-dependent material behaviour of filler-reinforced rubber: Experiments, constitutive modelling and parameter identification. *International Journal of Solids and Structures*, 50:1217–1225, 2013.

J. Zhao, W. Knauss, and G. Ravichandran. Applicability of the time-temperature superposition principle in modeling dynamic response of a polyurea. *Mechanics of Time Dependent Materials*, 11:289–308, 2007.

I. Zidane, C. Zhang, D. Guines, L. Lotoing, and E. Ragneau. Optimisation of biaxial tensil specimen shape from numerical investigations. *Numisheet*, 32:322–336, 2008.

B. Zimm and O. Lumpkin. Reptation of a polymer chain in an irregular matrix: diffusion and electrophoresis. *Macromolecules*, 26:226–234, 1993.

Annexes

A. Relation de passage

Cette annexe a pour but de vérifier la formule empirique permettant de passer du domaine fréquentiel au domaine temporel par la simple relation de passage (3.6). Pour ce faire, la démarche suivie est schématisée en Figure 5.14. Il est proposé de se servir de la courbe maitresse du module dynamique, à savoir des triplets de mesure (ω_j, E'_j, E''_j), à partir de laquelle est identifiée la série de Prony d'un modèle de Maxwell généralisé permettant de retrouver ce comportement, en dynamique. Puis, en parallèle seront calculés le module de relaxation théorique donné par la série de Prony identifiée ainsi que le module de relaxation obtenu par la relation empirique $E(t) = \|E^*(\frac{2*\pi}{t})\|$.

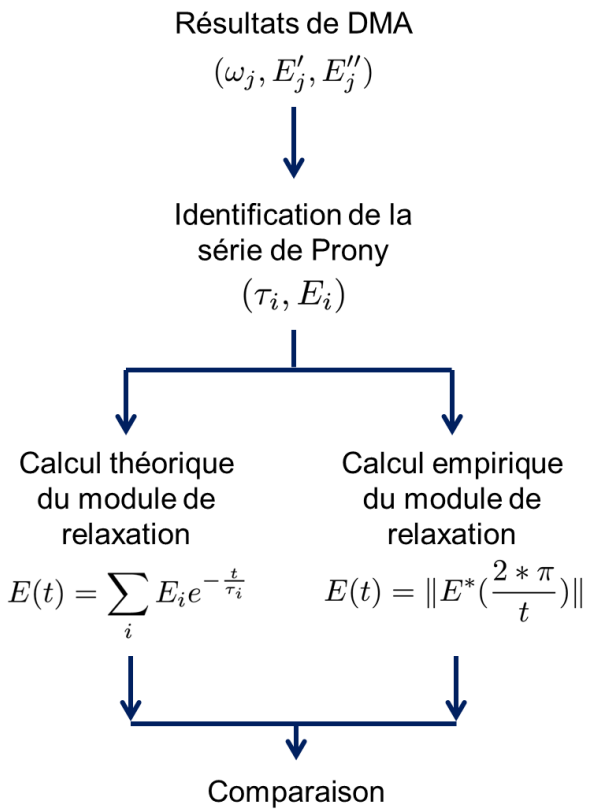


Figure 5.14: Démarche suivie pour valider la relation de passage empirique entre domaine temporel et fréquentiel.

Dans un premier temps, une série de Prony (τ_i, E_i) est identifiée à partir des essais de DMA en utilisant la méthode décrite par Jalocha et al. dans [Jalocha et al., 2015], permettant de déduire un modèle de Maxwell généralisé modélisant l'évolution du module dynamique par les relations données en équation (1.32). La Figure 5.15 compare le module dynamique mesuré expérimentalement par DMA et la prédiction donnée par

le modèle de Maxwell issu de la série de Prony identifiée sur ces mesures. Excepté aux très hautes fréquences (où d'ailleurs l'incertitude de mesure est la plus forte), il y a bonne corrélation entre les prédictions du modèle et les résultats expérimentaux.

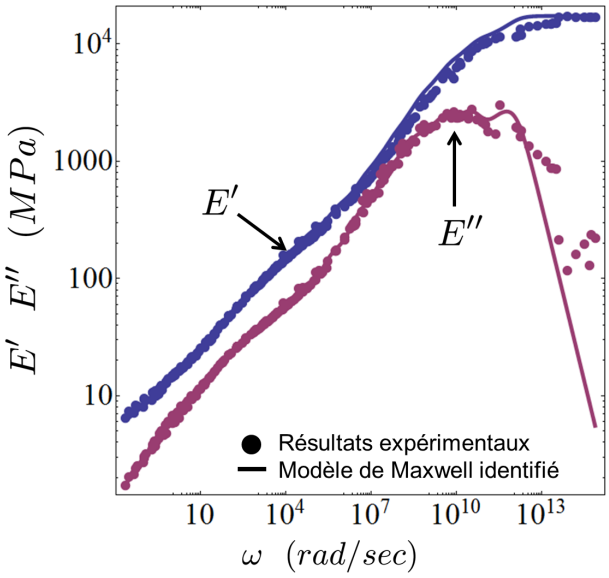


Figure 5.15: Comparaison entre le module dynamique mesuré par DMA et la prédiction du modèle de Maxwell identifié sur ces mesures.

Puis, d'un côté, l'évolution du module de relaxation théorique (donnée par la relation (1.31)) en utilisant la série de Prony identifiée est calculée. De l'autre côté, l'évolution du module de relaxation calculé à partir de la relation de passage empirique (3.6) est déterminée. La Figure 5.16 compare les deux types de résultats. L'erreur relative entre les deux, calculée à partir du logarithme des valeurs, est de $3^{\pm 1}\%$, principalement due à la dispersion des mesures. La bonne concordance entre les deux permet de valider la relation de passage empirique.

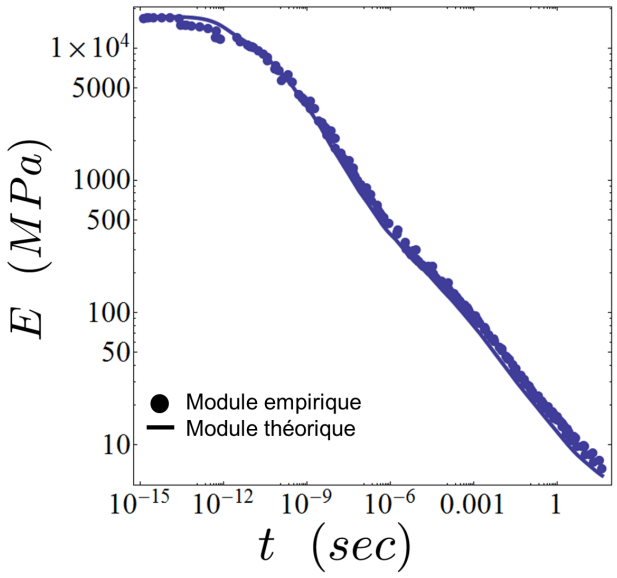


Figure 5.16: Comparaison entre le module de relaxation obtenu théoriquement (par la série de Prony) et le module de relaxation calculé par la relation de passage empirique.

B. Machine bi-axiale

Il est donné ici les plans de la machine bi-axiale réalisée, qui a servi pour mettre en évidence l'influence de l'état de déformation statique multi-axiale sur les propriétés visqueuses du propergol.

La machine de traction dynamique bi-axiale réalisée est construite autour d'une architecture en croix. Un cadre de forme carré, voir Figure 5.17, présente 4 petits logements sur chacune des faces. De formes similaires, 4 équerres, voir Figure 5.18, viennent se fixer dans ces logements. Les 4 vérins ISOMOVE 50, voir Figure 5.19, sont fixés aux cadre par l'intermédiaire des équerres, voir Figure 5.20. Le trou central assure le centrage des vérins sur les équerres, le maintien se fait par 4 vis autour de ce trou. A l'extrémité de chaque vérin électrique est vissé une bague, voir Figure 5.21, qui sert d'adaptateur pour fixer le capteur d'effort, voir Figure 5.22, sur le vérin électrique. Pour finir, de l'autre côté du capteur d'effort vient se visser un porte mors, voir Figure 5.23, qui vient accueillir dans son logement en forme de "T" le mors qui est collé à l'extrémité de l'éprouvette à tester. Le cadre carré est ensuite élevé à hauteur d'homme grâce à une structure de menuiserie en aluminium. Une vue d'ensemble et une vue détaillée de la machine montée sont données en Figure **??** et Figure 5.25.

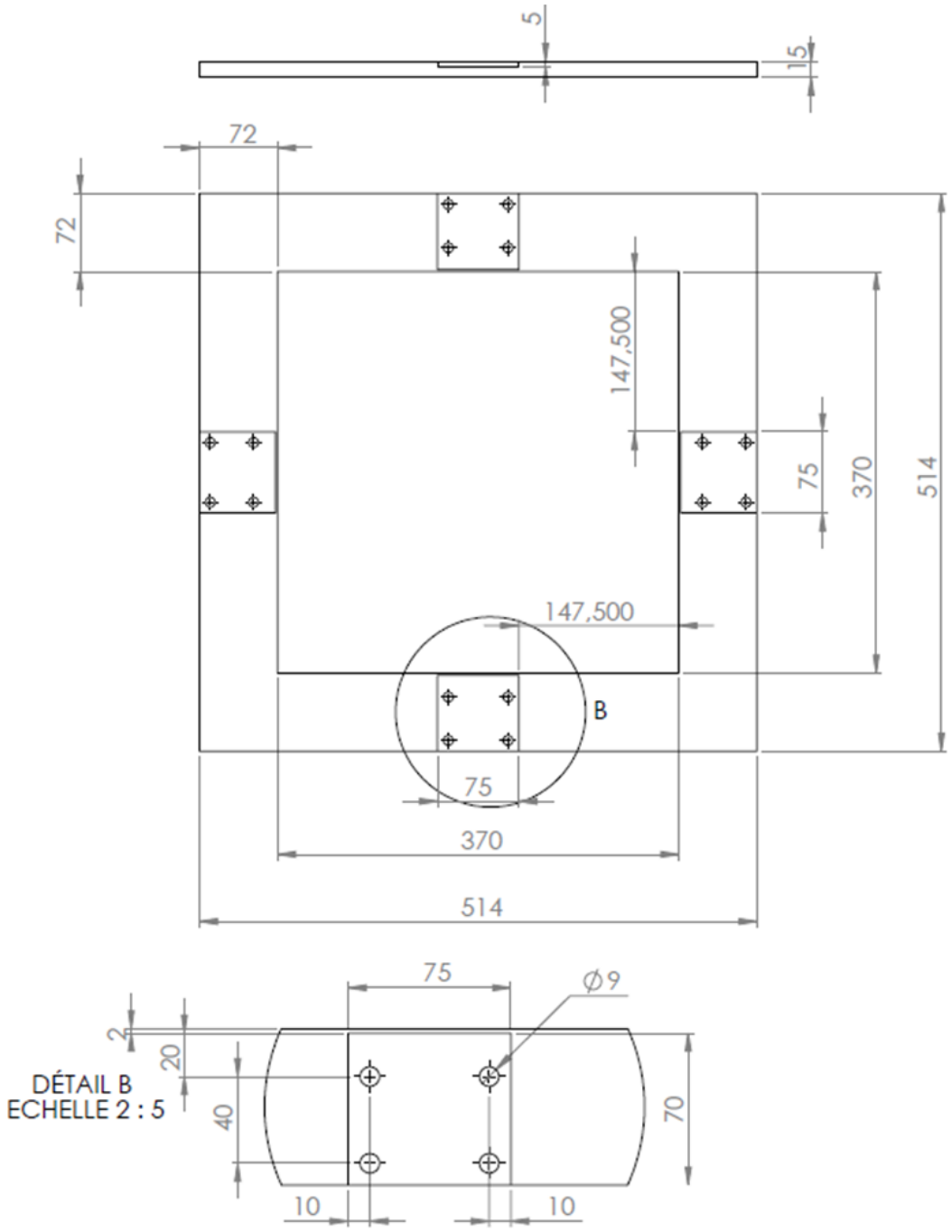


Figure 5.17: Cadre de la structure de la machine bi-axiale réalisée.

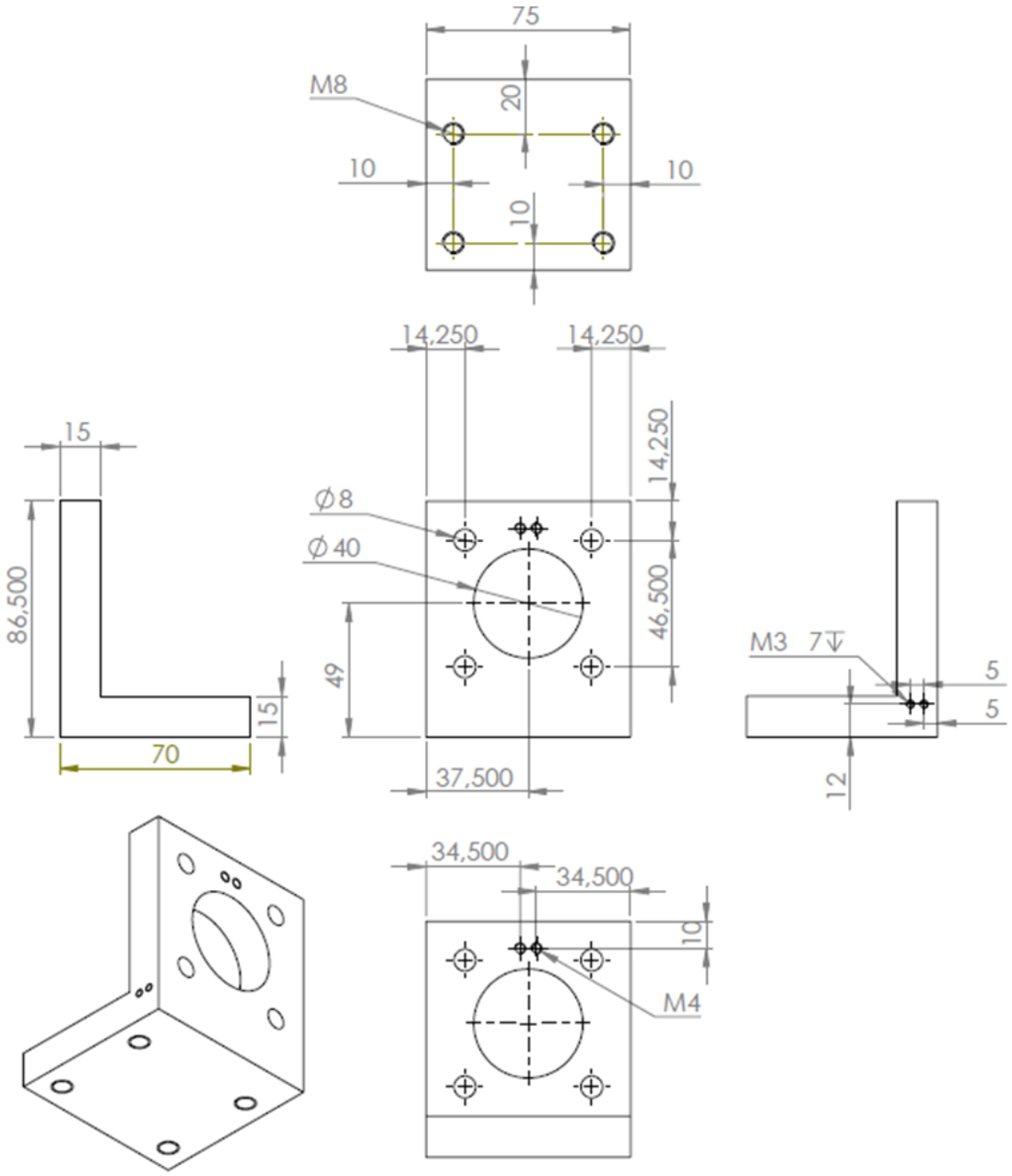


Figure 5.18: Équerre venant se fixer dans un des logements sur les faces du cadre, qui sert de support aux vérins électriques.

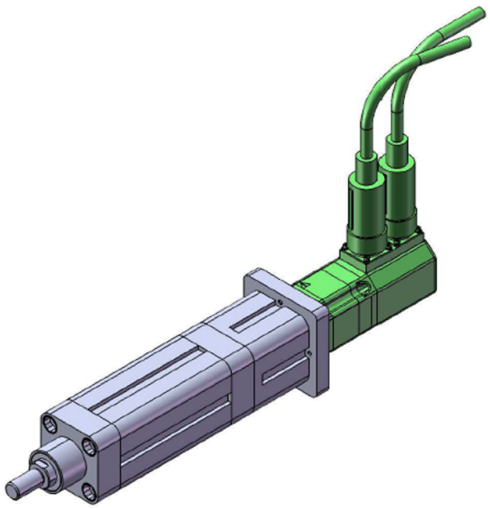


Figure 5.19: Vérin électrique ISOMOVE 50 utilisé pour assurer les déplacements de la machine de traction.

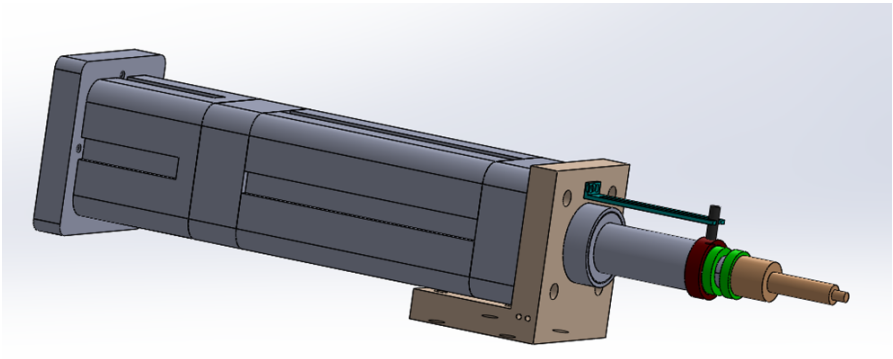


Figure 5.20: Montage du vérin électrique sur l'équerre de fixation.

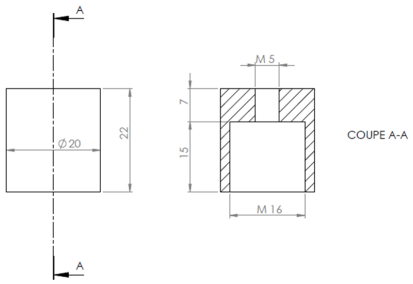


Figure 5.21: Bague intermédiaire vissée sur le vérin électrique et maintien sur ce dernier le capteur d'effort.

Figure 5.22: Capteur utilisé pour mesurer les efforts agissant dans chaque branche de l'éprouvette bi-axiale.

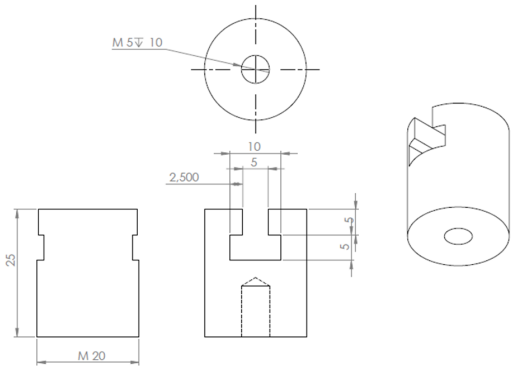
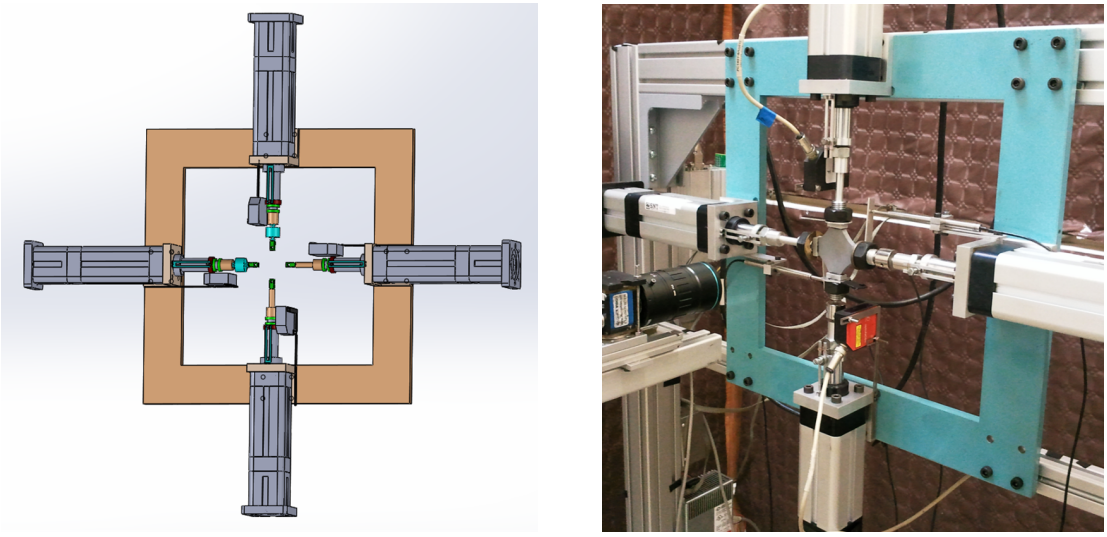


Figure 5.23: Porte mors, vissé sur le capteur d'effort, accueillant dans sa forme en "T" le mors sur lequel est collée une extrémité de l'éprouvette à tester.



(a) (b)

Figure 5.24: Vue d'ensemble (a) numérique et (b) réelle de la machine de traction bi-axiale réalisée.

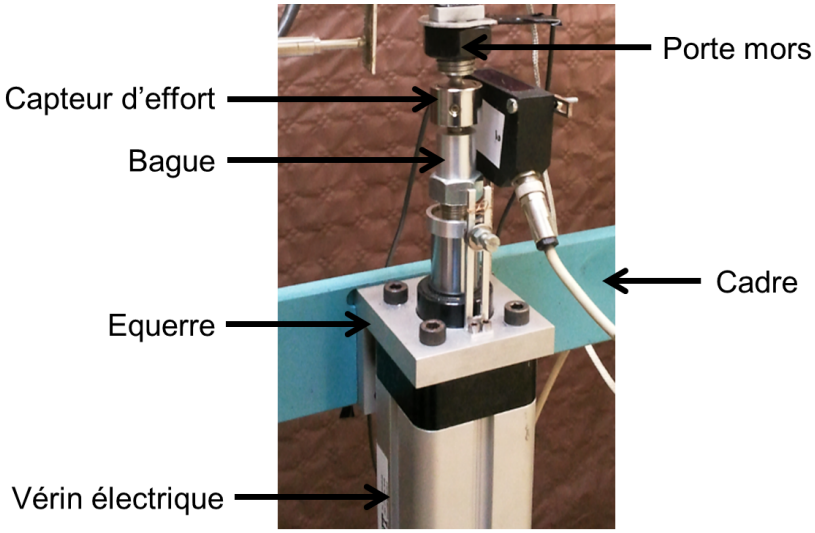


Figure 5.25: Vue détaillée d'un montage autour d'un vérin électrique de la machine bi-axiale réalisée.

C. Éprouvette bi-axiale

Les éprouvettes bi-axiales sont découpées à l'emporte pièce dans des plaques de propergol d'épaisseur 7 mm. La forme générale des éprouvettes est donnée en Figure 5.26. Seulement trois paramètres guident la géométrie de l'éprouvette: les longueurs L_1 et L_2 ainsi que le rayon de raccord R. Au vu des dimensions des plaques initiales de propergol et afin de limiter le volume des chutes lors de la découpe à l'emporte pièce, les deux longueurs sont fixées à $L_1 = 30$ mm et $L_2 = 10$ mm. Une étude d'optimisation de la valeur du rayon R est alors proposée. La solution par éléments finis est retenue, et les conclusions se basent sur les résultats en déformation.

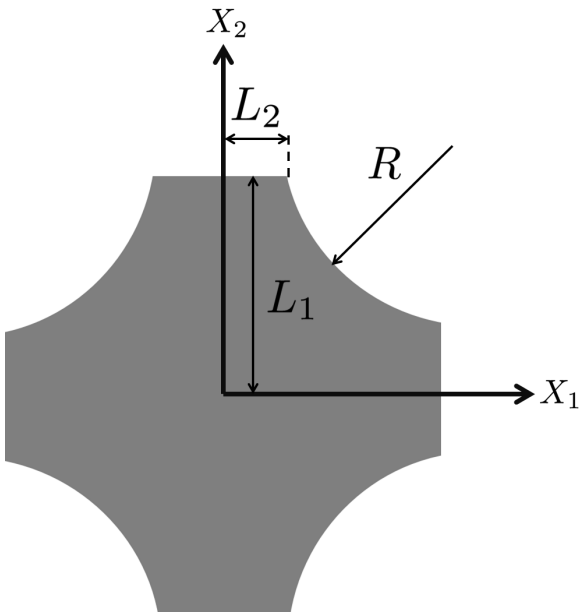


Figure 5.26: Schématisation des paramètres d'une éprouvette bi-axiale.

Plusieurs éprouvettes avec des valeurs de rayon de raccordement différent sont générées numériquement. En utilisant les symétries, seul les quarts des éprouvettes sont représentés. Elles sont maillées à l'aide d'éléments cubiques bi-linéaires (27 noeuds par élément), voir Figure 5.27 pour une éprouvette avec $R = 50$ mm. Un comportement élastique unitaire incompressible est attribué aux éprouvette, soit un module d'Young de $E = 1$ MPa et un coefficient de Poisson de ν =0.495. Les simulations sont réalisées sous Abaqus® [Abaqus].

L'objectif est de déterminer le rayon R qui donne une zone de déformation centrale à l'éprouvette la plus homogène possible. Pour ce faire, une simulation de traction équi bi-axiale est réalisée, avec un déplacement simultané dans les deux directions

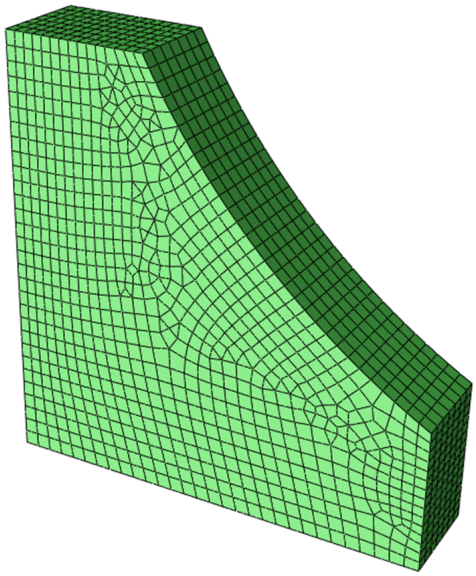


Figure 5.27: Maillage avec des éléments cubiques bi-linéaires d'une éprouvette de rayon de raccordement $R = 50$ mm.

X_1 et X_2 de 1.5 mm. Ce déplacement correspond, suivant les définitions utilisées au chapitre 3, à une déformation macroscopique de $e_1 = e_2 = \frac{1.5}{30} = 5\%$. Pour toutes les éprouvettes et pour cette déformation macroscopique, il est enregistré la déformation locale le long des axes X_1 et X_2. La Figure 5.28 montre l'évolution de la déformation ε_1 dans la direction 1, adimensionnée par la déformation macroscopique e_1, en fonction de l'abscisse X_1 pour des éprouvettes présentant un rayon de $R = 30; 40; 50$ mm.

Quelle que soit la valeur du rayon de raccordement, la taille de la zone centrale sur laquelle la déformation est homogène reste inchangée et environ égale à 4 mm (sur un quart d'éprouvette). Cependant, plus le rayon est important plus la transmission des déformations est bonne, à savoir le ratio $\frac{\varepsilon_1}{e_1}$ est élevé dans la zone centrale homogène.

Une éprouvette bi-axiale avec un rayon de raccordement de $R = 50$ mm est donc retenue, suivant le compromis donné entre grande valeur de rayon et réalisation de l'emporte pièce. La Figure 5.29 donne la distribution du maximum des déformations principales, pour l'éprouvette retenue sous une sollicitation macroscopique équi bi-axiale de $e_1 = e_2 = 5\%$.

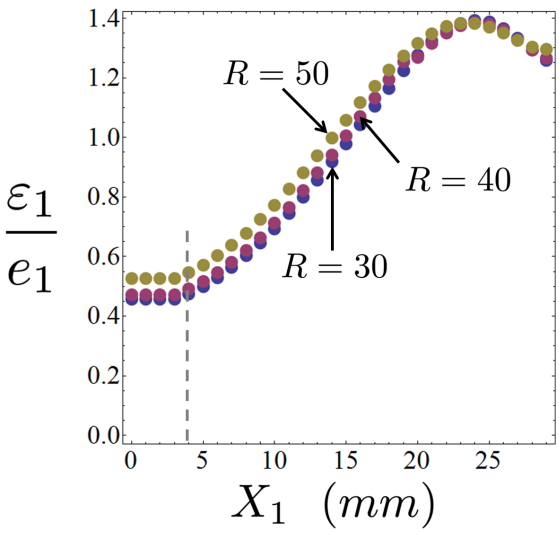


Figure 5.28: Évolution de la déformation ε_1 dans la direction 1 en fonction de l'abscisse X_1 pour une déformation macroscopique de $e_1 = 5\%$.

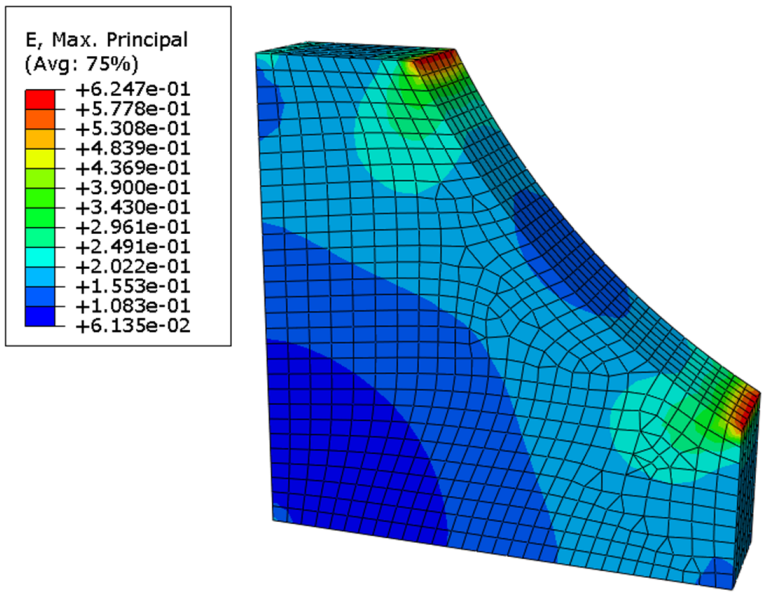


Figure 5.29: Distribution du maximum des déformations pour une éprouvette avec un rayon de raccordement de $R = 50$ mm, sous une sollicitation équi bi-axiale macroscopique de $e_1 = e_2 = 5\%$.

Modélisation du comportement viscoélastique d'un élastomère fortement chargé sous sollicitations multiaxiales

Mots clefs: Elastomère chargé; Viscoélasticité non linéaire; Pré déformation; DMA bi axiale; Spectre des temps de relaxation

Le propergol composite est un élastomère fortement chargé utilisé dans les moteurs à propulsion solide. Garantir la fiabilité d'un tel moteur repose sur la bonne connaissance des propriétés mécaniques de ses constituants. Malgré son fort taux de charge, le comportement du propergol est viscoélastique, mais présente de nombreuses non linéarités. L'étude menée ici se concentre sur l'influence de la déformation statique sur les propriétés visqueuses du composite. L'objectif est de caractériser cette non linéarité, la modéliser, l'implémenter dans un outil de simulation numérique et déterminer son influence sur la réponse générale d'un moteur à propulsion solide soumis à une sollicitation dynamique.

Afin d'atteindre cet objectif, les travaux se divisent en plusieurs étapes. La première consiste à déterminer à l'échelle microscopique les causes des phénomènes non linéaires observables à l'échelle macroscopique. Puis les propriétés viscoélastiques sont caractérisées, en fonction de la déformation statique. Cette étape expérimentale est réalisée à la fois dans le domaine temporel et dans le domaine fréquentiel, et ce sous des sollicitations uni axiales et bi axiales. Pour ce faire, une machine de traction dynamique bi axiale est développée. Puis un modèle non linéaire continu est identifié sur l'ensemble des résultats obtenus, permettant de reproduire à la fois les effets du temps mais également les effets de la déformation statique sur les propriétés mécanique. Ce modèle continu est discrétisé en vue d'être implémenté dans une loi de comportement viscoélastique non linéaire, permettant de donner une relation entre la déformation appliquée dans un matériau et la contrainte générée. Ce modèle est introduit dans un code éléments finis. Pour déterminer l'influence de la non linéarité engendrée par la déformation statique, une simulation est réalisée sur un modèle de moteur à propulsion solide. Les propriétés du propergol le constituant sont successivement modélisées par un comportement linéaire et non linéaire (développé dans ces travaux). Les deux réponses sont comparées et indiquent l'importance de ne pas négliger l'impact de l'effet engendré par la déformation statique, ainsi que la nécessité de modéliser finement le comportement du propergol. De manière analogue, un travail de modélisation pourrait être poursuivit en essayer de prendre en compte cette fois ci la partie dynamique de la déformation sur les propriétés du composite.

Nonlinear viscoelastic modeling of a highly filled elastomer under multiaxial loading

Keywords: Filled elastomer; Nonlinear viscoelasticity; Prestrain; Biaxial DMA; Spectrum of relaxation time

Classify amongst the family of highly filled elastomer, solid propellant is used in the solid propulsion media. In order to guarantee the integrity of the structure, the behavior of solid propellant must be highlighted. Solid propellant behavior is viscoelastic, but present several non-linearities due to his high volume fraction of filler. This study focuses on the impact of the prestrain on the viscoelastic properties. The objective here is to characterize this impact, model it, implement it into a numerical code and investigate this influence on the response of a complete motor under dynamic solicitations.

To do this, the work is divided in several parts. First, the microstructure of the propellant is studied in order to determine the microscopic causes of the macroscopic non-linearities. Then viscoelastic properties are characterized, both into the time or frequency domain, using uni axial and bi axial solicitations. To perform bi axial tests, a bi axial traction device is developed. A base on the experimental results, a continuous model is identified to describe the viscoelastic properties as a function of the prestrain. This model is discretized, in order to be implemented into a constitutive law, which permits to give a relation between strain and stress into the material. The constitutive law is traduced into a finite element code, in order to perform computation. Simulations are done on a numerical model of a solid propulsion motor. The properties of the propellant are alternatively modeled by a linear viscoelastic and non-linear viscoelastic (developed in this study) model. The two responses of the complete structure under dynamic solicitations are then compared, to prove it is important to take into account the non-linear influence of the prestrain, and the necessity to exactly model the propellant behavior. In a similar way, future works could investigate the non-linearity induced by the dynamic part of the strain on the viscoelastic properties.