



HAL
open science

Analyse du comportement mécanique des mousses polymères : apport de la tomographie X et de la simulation numérique

Mouhamadou Dabo

► **To cite this version:**

Mouhamadou Dabo. Analyse du comportement mécanique des mousses polymères : apport de la tomographie X et de la simulation numérique. Physique [physics]. Université de Strasbourg, 2015. Français. NNT : 2015STRAE041 . tel-01332613

HAL Id: tel-01332613

<https://theses.hal.science/tel-01332613>

Submitted on 16 Jun 2016

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.

Université de Strasbourg
Ecole doctorale de physique-chimie
Institut Charles Sadron – Equipe de physique, mécanique et tribologie des polymères

Thèse de Doctorat

Analyse du comportement mécanique des mousses polymères : apport de la tomographie X et de la simulation numérique

Présentée et soutenue par

Mouhamadou Dabo

Pour obtenir le grade de Docteur

Thèse dirigée par Patrick Kekicheff

Soutenue publiquement le 16 décembre 2015

Devant un jury composé de :

- Yann Marco : Professeur ENSTA Bretagne, Rapporteur
- Moussa Nait Abdelaziz : Professeur Polytech'Lille, Rapporteur
- Yannick Hoarau : Professeur Université de Strasbourg, Examineur
- Nicolas Lenoir : Ingénieur PLACAMAT, Examineur
- Patrick Kekicheff : Directeur de recherche CNRS, Directeur de thèse
- Christian Gauthier : Professeur Université de Strasbourg, Invité
- Francis Joachim : Président directeur général INTEREP, Invité

Discipline/ Spécialité : Physique des polymères

Remerciements

⌘ travail est l'aboutissement de trois années de recherches passionnantes et je souhaite exprimer toute ma reconnaissance à l'ensemble des personnes physiques et morales qui ont contribué à l'élaboration de cette thèse. Leur soutien et leur collaboration ont été inestimable.

⌘ adresse toute ma gratitude à mon directeur de thèse M. Patrick Kekicheff. Je le remercie de m'avoir encadré, orienté, aidé et conseillé.

⌘ adresse mes sincères remerciements à M. Thierry Roland pour son encadrement et son accompagnement. Il a été à mes cotés durant toutes ces trois années, me prodiguant aides et conseils. Il m'a permis de prendre gout à la recherche à travers ce sujet très riche couvrant plusieurs disciplines, entre théorie et expérience. Je le remercie encore lui et mon directeur de thèse de m'avoir laissé prendre des initiatives et pour la confiance qu'ils m'ont toujours témoigné.

⌘ tiens à exprimer toute ma reconnaissance à M. Christian Gautier pour son soutien, ses aides et ses conseils.

⌘ tiens à remercier à toute l'équipe de Physique Mécanique et tribologie des polymères au sein de l'ICS qui a su mettre à ma disposition un environnement de travail de bonne qualité en particulier Damien Favier et Leandro Jacomine qui ont été d'un très grand soutien.

⌘ tiens à exprimer mes sincères remerciements à M. Francis Joachim et M. Luc le Pichon de la société INTEREP qui ont manifesté un vif intérêt dans ce travail et y ont grandement contribué tout au long de ces trois années de recherches.

⌘ remercie les membres du jury de thèse, qui ont accepté de m'aider à franchir cette étape importante qu'est la soutenance. En premier lieu je remercie Yann Marco et Moussa Nait Abdelaziz pour leur lecture attentive du manuscrit, leurs critiques pertinentes ainsi que leurs suggestions. Je remercie vivement Yannick Hoarau et Nicolas Lenoir de m'avoir fait l'honneur d'examiner ce travail. Merci en particulier à ce dernier pour ses remarques et conseils.

⌘ adresse mes sincères remerciements à tous les professeurs intervenants et toutes les personnes qui par leurs paroles, leurs écrits, leurs conseils et leurs critiques ont guidé mes réflexions et ont accepté à me rencontrer et répondre à mes questions durant mes recherches.

⌘ grand merci à tous mes collègues thésards Fu li, Ammar, Tristan et Valentin qui ont donné une dimension humaine particulière à ces trois années.

⌘ remercie mes très chers parents, Abdourahmane et Awa, qui ont toujours été là pour moi, « Vous avez tout sacrifié pour vos enfants n'épargnant ni santé ni efforts. Vous m'avez

donné un magnifique modèle de labeur et de persévérance. Je suis redevable d'une éducation dont je suis fier ». Je remercie ma sœur Fatou et mon frère Amadou pour leur amour inépuisable. Les mots justes me manquent. C'est la fratrie dont j'ai jamais rêvé et toute la motivation qui m'anime n'existe que pour les rendre fiers de ce que je suis.

Je remercie très spécialement toutes mes tantes et oncles et plus particulièrement Aissata, Adia, sadio, Ramata, Maodo Malick, Omar Dabo, Amadou Bal, Vieux Ba. Enfin, je remercie tous mes ami(e)s qui ont été là de près ou de loin, Bayo, Pape gorgui, Aly, Tapha, Ismaila, Masseck et Fama, Adama et Aidara, Alioune, Ameth ...

Pour leur sincère amitié et confiance, et à qui je dois ma reconnaissance et mon attachement. À tous ces intervenants, je présente mes remerciements, mon respect et ma gratitude.

Table des matières

Introduction	25
1. Chapitre 1: Contexte-état de l'art	31
1.1. Le matériau et le processus de fabrication	31
1.1.1. Le composant polymère	31
1.1.2. Les agents gonflants	32
1.1.3. Synthèse des mousses polymères	33
1.1.3.1. La cinétique de réaction.....	33
1.1.3.2. Nucléation et expansion des cellules	34
1.1.3.3. Stabilisation et phénomènes de coalescences	36
1.1.4. Morphologie de la microstructure	37
1.1.4.1. La densité relative.....	37
1.1.4.2. Mousses à cellules fermées ou mousses à cellules ouvertes	37
1.1.4.3. Taille, forme et distribution des cellules	38
1.1.4.4. Anisotropie géométrique	39
1.2. Modélisation de la microstructure	39
1.2.1. Modèle de mousse idéale	39
1.2.2. Modèles de structures régulières	41
1.2.3. Modèles de structures irrégulières.....	43
1.2.4. Approche microstructurale	44
1.3. Mécanique des mousses polymères	45
1.3.1. Mécanismes de déformations des mousses polymères	46
1.3.1.1. L'élasticité linéaire	47
1.3.1.2. Effondrement élastique et plastique	48
1.3.1.3. Densification.....	48
1.3.1.4. Effet du gaz dans les cellules.....	48

1.3.1.5. Viscosité et vitesse de déformation	49
1.3.1.6. Impact de l'anisotropie	50
1.3.2. Comportement mécanique de modèles de structures régulières	51
1.3.2.1. Modèle cubique	51
1.3.2.2. Modèle tétrakaidécaédrique.....	54
1.4. Conclusion	56
2. Chapitre 2: Caractérisations expérimentales	59
2.1. Caractérisation morphologique	59
2.1.1. Microscopie électronique à balayage	60
2.1.1.1. Description du MEB.....	60
2.1.1.2. Observations des microstructures.....	60
2.1.2. Matériaux des parois	62
2.1.3. Résultat expérimentaux	64
2.1.3.1. Analyse des déformations par corrélation d'images digitales.....	65
2.1.3.2. Compression uni axiale	66
2.1.3.3. Essais de Cisaillement	68
2.1.3.4. Analyse mécanique dynamique	70
2.2. Caractérisations microstructurales	73
2.2.1. Caractérisation en 2D	73
2.2.1.1. Traitement numérique des images MEB	73
2.2.1.2. Analyse Statistique	75
2.2.1.3. Inconvénients de la caractérisation en 2D	78
2.2.2. Caractérisation en 3D	78
2.2.2.1. Principe de la tomographie X	79
2.2.2.2. Reconstruction tomographique.....	80
2.2.2.3. Synchrotron ESRF et SOLEIL	82
2.2.2.4. Traitement des modèles 3D	83
2.2.2.4.1. Filtrage des artefacts	83

2.2.2.4.2. Traitement numérique.....	84
2.2.2.5. Analyses statistiques.....	84
2.2.2.6. Calcul de la fraction solide Φ	86
2.2.2.7. Essais mécaniques in situ.....	90
2.2.2.7.1. Montage expérimental.....	90
2.2.2.7.2. Analyses des déformations locales.....	92
2.3. Conclusion.....	97
3. Chapitre 3 : Elaboration d'un générateur de microstructures basé sur le processus de fabrication des mousses polymères.....	99
3.1. Introduction.....	99
3.1.1. Objectifs.....	99
3.1.2. Description générale du processus de fabrication de mousses polymères.....	100
3.2. Influence de la température.....	101
3.2.1. La nucléation.....	101
3.2.2. La viscoélasticité.....	102
3.2.2.1. La viscosité.....	102
3.2.2.2. Le module élastique.....	102
3.3. Modélisation du processus.....	103
3.3.1. Modélisation de la température en fonction du temps.....	104
3.3.2. La nucléation.....	104
3.3.2.1. Nucléation temporelle.....	104
3.3.2.2. Distribution spatiale.....	105
3.3.3. L'expansion.....	106
3.3.3.1. La pression interne.....	107
3.3.3.2. La pression externe dans le mélange.....	108
3.3.3.2.1. Modélisation physique du comportement du mélange.....	108
3.3.3.2.2. Etude de l'évolution du champ de contraintes dans le mélange.....	109
3.3.3.2.3. Distance d'écrantage :.....	117

3.3.3.3. Les forces de tensions superficielles	118
3.3.4. Modèle de croissance unicellulaire final	120
3.3.4.1. Déplacement de l'interface	121
3.3.4.2. Simulation du modèle unicellulaire et influence des caractéristiques E, ν et η	121
3.3.5. Modèle de croissance multicellulaire	122
3.3.5.1. Champ de contrainte total dans le mélange	123
3.3.5.2. Le mûrissement	125
3.4. Simulation du modèle physique en 2D et 3D	126
3.4.1. Implémentation numérique	126
3.4.1.1. Discrétisation du modèle	126
3.4.1.2. Conditions aux limites périodiques	127
3.4.1.3. Algorithme de simulation	128
3.4.1.4. Approximations, stabilité et précision	132
3.4.2. Génération de microstructures 2D et 3D	132
3.4.2.1. Microstructures 2D	133
3.4.2.2. Génération de modèles de microstructures 3D	136
3.5. Cohérence physique et limites du modèle physique	138
3.5.1. Erreurs du modèle	138
3.5.2. Comparaison des microstructures générées et des microstructures réelles de mousses 139	
3.6. Conclusion	144
4. Simulation Numérique	147
4.1. Introduction	147
4.2. Objectif général de la simulation numérique	148
4.3. Description des modèles de simulation EF	148
4.3.1. Le choix du solveur	149
4.3.2. Les modèles de microstructures EF	150
4.3.2.1. Paramètres d'identification de la morphologie d'une microstructure	150

4.3.2.1.1. Paramètres d'une distribution	150
4.3.2.1.2. Identification de la géométrie d'une microstructure.....	151
4.3.2.1.3. Conclusion	154
4.3.2.2. Maillage éléments finis des modèles	155
4.3.2.2.1. Les Types d'éléments d'un maillage	155
4.3.2.2.2. Optimisation du maillage.....	156
4.3.2.2.3. Application aux modèles de microstructures.....	158
4.3.3. La loi de comportement du matériau.....	161
4.3.4. Les conditions aux limites.....	162
4.3.5. Organigramme de simulation	164
4.3.6. Erreurs, convergence et précision des calculs	165
4.3.6.1. Erreurs et convergence de la simulation.....	165
4.3.6.2. Précision des calculs.....	166
4.4. Analyses en 2D	168
4.4.1. Homogénéisation et calcul du volume élémentaire représentatif.....	169
4.4.2. Etude numérique de l'influence de la morphologie de la microstructure	172
4.4.2.1. Modèles de microstructures.....	172
4.4.2.2. Méthode d'identification par approche inverse.....	176
4.4.2.2.1. Définition du problème.....	176
4.4.2.2.2. Etude de l'unicité des paramètres morphologiques	177
4.4.2.3. Résultats de simulation.....	180
4.4.2.3.1. Observations générales	182
4.4.2.3.2. Impact de la porosité.....	185
4.4.2.3.3. Domaine élastique	185
4.4.2.3.4. Domaine plastique	186
4.4.2.3.5. Impact de la répartition spatiale.....	187
4.4.2.3.6. Plateau de stress et densification	190
4.4.2.4. Impact de la distribution de taille	192

4.4.2.5. Conclusion de l'analyse en 2D	196
4.4.2.6. Prédiction de la réponse mécanique d'une microstructure de mousse	197
4.5. Simulations en 3D.....	198
4.5.1. Comparaison de la compression in situ en tomographie X d'un échantillon de mousse à la simulation du modèle correspondant	198
4.5.2. Etude du VER.....	203
4.5.3. Comparaison d'une microstructure réelle issu d'observations tomographiques à un modèle généré à partir des mêmes distributions	205
4.5.4. Simulation mousse polyuréthane	209
4.5.5. Conclusion.....	211
5. Conclusion générale	214
5.1. Description, objectifs, résumé de la thèse.....	214
5.2. Apport de la thèse	215
5.3. Résultats de simulation	216
5.4. Extension et perspectives	217
Annexes	220
Bibliographie	227

Tables des illustrations

Figure 1 : Différents types de mousses obtenues en fonction de la nature du matériau, du procédé de fabrication et de la morphologie de la microstructure	27
Figure 2 : Modélisation de la croissance d'une bulle sphérique isolée dans un mélange de PE et courbe d'évolution du rayon de la bulle dans le temps [15]	35
Figure 3 Illustration de la de la zone d'influence dans la nucléation et la croissance simultanée de bulles.....	36
Figure 4 : Mousse à cellules ouvertes (gauche) et mousse à cellules fermées (droite) [1]	38
Figure 5 Evolution de la forme des cellules en fonction de la porosité	38
Figure 6 : Structure de bulle de savon (a) et une mousse polyéthylène (b) [1].....	40
Figure 7 : Les polyèdres réguliers ou semi réguliers pour paver l'espace	42
Figure 8 : Structure de Kelvin (a) [31] et le modèle de Weaire – Phelan (b) [30].....	42
Figure 9 : Diagramme de Voronoï 2D	43
Figure 10 : Modèles 3D de structures Voronoï à partir d'un réseau ordonné de points [34]..	44
Figure 11 : Allure des courbes contrainte-déformation de mousses en compression uni axiale: (a) mousse élastomère ; (b) mousse élasto-plastique ; (c) mousse élastique fragile	46
Figure 12 : (a) Réponse en compression selon trois étapes d'une mousse élastomère ; (b) Etapes de déformations d'une structure nid d'abeilles.....	47
Figure 13 : Chargement et déchargement viscoélastique	50
Figure 14 : Compression dans deux directions d'une mousse transversalement isotrope.	50
Figure 15 : Modèles cubiques proposés par Gibson and M. F. Ashby [1].....	51
Figure 16 : Régimes de déformations du modèle cubique ouvert [Gibson and Ashby 1997] .	52
Figure 17 : Modèle tétrakaidécaédrique : (a) cellule ouverte : (b) cellule fermée	55
Figure 18 : Microstructure à différentes échelles de la mousse NR/SBR (<i>B</i>).....	61
Figure 19 : Microstructure à différentes échelles de la mousse NR/SBR (<i>A</i>).....	61
Figure 20 Microstructure à différentes échelles de la mousse <i>D4</i>	61
Figure 21 : Microstructure à différentes échelles de la mousse NBR (<i>E</i>).....	62

Figure 22 : Exemples de mousses avec les équivalents massifs des matériaux correspondants : (a) Mousse EPDM <i>B</i> , (b) Ebauche Matériau EPDM <i>A</i> et <i>B</i> , (c) Mousse <i>C</i> , (d) Ebauche Matériau <i>C</i>	64
Figure 23 : Analyse des déformations par CID : Détection d'un seuil de déformation et suivi par rapport à la microstructure (gauche, détection – milieu, suivi de l'évolution des déf.– droite, lien sur la position).....	66
Figure 24 : Banc de test expérimental.....	64
Figure 25 : Différences entre le matériau élastomère pur et le matériau ébauche non expansé	67
Figure 26 : Courbes contrainte-déformation de différentes mousses avec différentes porosités	68
Figure 27 : Montage Arcan et éprouvette papillon associée (géométrie et maillage).....	69
Figure 28 : Banc de test essais de cisaillement	69
Figure 29 : Courbes de contrainte-déformation de mousses en cisaillement ($\alpha=90^\circ$).....	70
Figure 30 : Analyse mécanique dynamique de différentes mousses pour une plage de température comprise entre -60°C et 90°C	72
Figure 31 : Processus de segmentation de l'image de la microstructure (mousse <i>A</i>)	75
Figure 32 : labelling du modèle reconstruit	76
Figure 33 : Distribution de l'aire à gauche (a) et du diamètre moyen à droite (b) des cellules.....	77
Figure 34 : Répartition spatiale des cellules.....	77
Figure 35 : Altération de la microstructure lors de prise d'image MEB (artefacts, effet du vide).....	78
Figure 36 Principe de la tomographie X	80
Figure 37 : Principe d'acquisition des radiographies	80
Figure 38 : Algorithme de rétroprojection filtré.....	81
Figure 39 : Binarisation directe sans filtrage des anneaux de diffractions.....	83
Figure 40 : Filtrage des anneaux de diffraction.....	84
Figure 41 : Mousse <i>B</i> reconstruit et analyse statistique : (a) mousse <i>B</i> reconstruit ; (b) échantillon cylindrique ; (c) labelling des cellules.....	84

Figure 42 : Comparaison des distributions de volume (à gauche) et de diamètre équivalent (à droite) entre les mousses <i>A</i> et <i>B</i>	85
Figure 43 : Comparaison de la sphéricité en fonction du diamètre équivalent entre les mousses <i>A</i> et <i>B</i>	86
Figure 44 : illustration de la méthode de calcul de la fraction solide.....	88
Figure 45 : Application de la méthode développée sur un modèle reconstruit.....	88
Figure 46 : Distribution des épaisseurs des parois.....	89
Figure 47 : Calcul de la fraction de matière des faces et des piliers dans une mousse de polyuréthane : (a) Mousse de polyuréthane reconstruite (b) Fraction solide en niveau de couleurs, (c) Isolation des faces, (d) Isolation des piliers.....	90
Figure 48 : Dispositif expérimental de compression in situ en tomographie X.....	91
Figure 49 : Courbe de relaxation en charge et décharge de la mousse <i>A</i> et <i>D</i>	91
Figure 50 : Déformation du volume de la zone d'échantillonnage.....	92
Figure 51 : Suivi de coupes d'images de l'échantillon suivant les paliers de déformations....	93
Figure 52 Modèles reconstruits (matière et cellules) suivant les paliers de compression.....	94
Figure 53 : Déplacements des centres des cellules suivant les paliers de déformations (en pixels).....	95
Figure 54 : Evolution de la sphéricité en fonction du volume de chaque cellule suivant les paliers de déformations.....	95
Figure 55 : Déformation totale des cellules en fonction de leur volume.....	96
Figure 56 : Modélisation du processus de fabrication des mousses polymères.....	100
Figure 57 : Illustration de la répartition spatiale des cellules.....	106
Figure 58: Modélisation du mélange polymère fluide.....	108
Figure 59: Illustration de l'évolution de la perturbation dans le mélange.....	117
Figure 60: Forces de tensions superficielles.....	119
Figure 61: Pression résultante sur l'interface gaz-mélange.....	120
Figure 62 : Profils de croissance de la bulle en fonction de K et η	122
Figure 63: Champs de contraintes individuelles (à gauche) des cellules et.....	124

Figure 64: Fusion de deux cellules et influence de la tension superficielle	125
Figure 65: Modélisation de la grille de simulation	127
Figure 66: illustration des conditions aux limites périodiques et application à la simulation	128
Figure 67: Schéma général de l'algorithme de simulation.....	129
Figure 68: Evolution des volumes des cellules au cours de la simulation	134
Figure 69: Différentes morphologies de microstructures simulées.....	135
Figure 70: Simulation 3D Nucléations initiales (a) et microstructure finale (b).....	136
Figure 71: Simulation 3D et extraction du modèle de microstructure	137
Figure 72: Trois différents modèles de microstructures 3D générés.....	137
Figure 73: Modèle de microstructure réel testé (600 cellules).....	140
Figure 74: Calcul des instants de nucléation des cellules du modèle réel en adaptant la distribution de type 3	141
Figure 75: Microstructure simulée avec 600 cellules (a) et modèle cellulaire finale à 400 cellules (b).....	141
Figure 76 : Comparaison du modèle généré et du modèle réel : (a) Analyse de la sphéricité et du volume des cellules ; (a) Analyse de la sphéricité et du diamètre équivalent.....	142
Figure 77: Modèle de microstructure généré (à gauche) et modèle réel à 400 cellules (à droite) : Modèles 3D et deux coupes longitudinales différentes	144
Figure 78: Mesure de la répartition spatiale des cellules des modèles réels	152
Figure 79: Paramétrage de la répartition spatiale des centres des cellules.....	152
Figure 80: Modèles de microstructures en 2D (a) et en 3D à la nucléation (b) et à la fin de la simulation de la microstructure (c) pour différentes valeur de α	153
Figure 81: Quelques exemples de types d'éléments utilisés en 2D et en 3D.....	155
Figure 82 : Quelques exemples d'éléments dégénérés.....	156
Figure 83: Variations des aspects des éléments en fonction de l'aspect ratio.....	157
Figure 84: Maillage des modèles en 2D: (a) modèle initial obtenu après génération de la microstructure, (b) modèle maillé obtenu après une opération de « wrapping », (c) rectification du maillage, (d) remaillage final du modèle	159

Figure 85: Maillage volumique: (a) modèle 3D initial obtenu après la génération de la microstructure et maillé en surfacique, (b) modèle 3D final après le maillage volumique, (c) modèle 3D réel issu d'observations tomographiques X avec un maillage graduel.....	160
Figure 86: Courbe expérimentale contrainte-déformation en traction et compression et modèles de lois de comportement	161
Figure 87: Plans de contacts et conditions aux limites en 2D (à gauche) et en 3D (à droite)	162
Figure 88: Organigramme générale d'un modèle de simulation numérique.....	164
Figure 89: Influence du maillage dans la précision des calculs: (a) Le modèle de microstructure testé ; (b) comparaison des courbes contraintes-déformations ; (c) taille des maillages par rapport aux parois	167
Figure 90: Détermination du VER en fonction de la morphologie de la microstructure: (a) structure périodique et son volume élémentaire (d) ; (b) et (c) structures aléatoires de différentes porosité et différents coefficient α ; (e) méthodologie de calcul du VER.....	170
Figure 91 : Etude du VER : (b) Porosité de 60% et coefficient de répartition spatiale α de 0.2 ; (c) Porosité de 90 % et coefficient de répartition spatiale α de 0.3	171
Figure 92: Différentes morphologies de microstructure: (a) mousse EPDM avec une porosité moyenne de 60% et une répartition aléatoire de cellules ($\alpha \approx 0.2$) ; (b) mousse PU de grande porosité (>90%) ; (c) mousses avec deux tailles distinctes de cellules [27]	172
Figure 93 : 30 modèles de microstructures 2D en fonction de 5 catégories de porosités : P=25%, 40%, 50%, 60%, 75% ; 3 types de répartition spatiale : $\alpha=0, 0.2, 0.3$ et différentes tailles de cellules.	176
Figure 94: Les différentes modèles de microstructures simulés pour étudier l'unicité des paramètres morphologiques P, N_c , α et C_{vol}	178
Figure 95 : Etude de l'unicité des paramètres morphologiques : Comparaison des réponses contrainte-déformation de microstructures ayant les même paramètres P, N_c , α et C_{vol}	179
Figure 96: Courbes contraintes-déformations des modèles simulés	181
Figure 97: Différentes étapes de déformations d'un modèle de microstructure à structure régulière : (a) déformations à la limite élastique, (b) Plateau de déformation (exemple à 30% de déformation), (c) le début de densification partielle, (d) le début de la densification totale	183
Figure 98: Champs de contraintes à la limite élastique.....	183
Figure 99: Champs de contraintes à 30% de déformation.....	184
Figure 100: Champs de contraintes au début de la densification	184

Figure 101 : Evolution du module d'Young en fonction de la porosité pour différentes répartitions spatiales de cellules.....	186
Figure 102: Evolution du plateau de stress en fonction de la porosité.....	187
Figure 103: Influence de la répartition spatiale pour différentes porosité : de (a) à (d) structures mono disperse ($Cvol \approx 0$), de (e) à (h) structures poly disperse ($Cvol > 1$)	188
Figure 104: Evolution plateau de stress en fonction de la répartition spatiale des cellules : (a) structures mono disperse ($Cvol \approx 0$).....	189
Figure 105: Comparaison à différentes étapes de déformation entre les modèles mono disperse de 70% porosité ($\alpha= 0$, $\alpha= 0.2$ et $\alpha= 0.3$)	190
Figure 106: Champs de contraintes de Von Mises d'un modèle irrégulier pour différent paliers de déformations : en rouge les régions de plus fortes contraintes. La flèche au centre indique la région suivie	191
Figure 107 : Influence de la dispersion de taille des cellules pour différentes porosité : de (a) à (c) structures régulières ($\alpha=0$), de (d) à (f) structures irrégulières ($\alpha=0.2$)	193
Figure 108: Champs de contraintes de Von Mises des deux modèles de 50% de porosité, mono et poly-disperse pour différent paliers de déformations ; en rouge les régions de plus fortes contraintes	194
Figure 109: Modèles de 50% de porosité mono et poly disperse et champs de contraintes de Von Mises ; mécanismes de déformations du modèle poly-disperse et impact de la taille des parois	195
Figure 110: Influence des paramètres morphologiques sur le comportement mécanique global des mousses	196
Figure 111 : Comparaison simulation numérique et expérience pour différents paliers de déformation : (a) modèle expérimental ; (b) champs de contraintes de Von Mises sur le modèle simulé	199
Figure 112 : Comparaison simulation numérique et expérience : évolution de la porosité (a), du volume (b) et de la sphéricité moyenne des cellules internes (c).....	200
Figure 113 : Comparaison simulation numérique et expérience pour différents paliers de déformation : (a) et (b) première coupe longitudinale entre mousse expérimental et champs de contraintes de Von Mises sur le modèle simulé ; (b) et (c) deuxième coupe longitudinale..	202
Figure 114 : Etude du volume élémentaire représentatif en 3D : (a) Simulation d'une structure irrégulière à 1000 cellules ; (b) différents modèles extraits	203

Figure 115 : Distribution de taille des cellules entre les modèles à gauche et premiers résultats de simulations à droite	204
Figure 116 : Comparaison simulation numérique : (a) microstructure réelle reconstruite et maillée ; (b) modèle généré suivant les mêmes paramètres morphologiques	206
Figure 117 : Comparaison modèle généré et mousse réel : Courbes contrainte-déformation	207
Figure 118 : Champs de contraintes de Von Mises calculés sur deux coupes longitudinales différentes (a1 et b1 suivant XZ, a2 et b2 suivant YZ) des microstructures générés (a) et réelles (b) suivant différents paliers de déformation. Les flèches montrent de grandes ressemblances (rouges) ou de grandes différences (vertes) entre les deux microstructures ..	208
Figure 119 Simulation modèle polyuréthane: (a) microstructure réelle reconstruite; (b) modèle éléments finis maillé en volume	209
Figure 120 : Simulation EF de la compression d'une mousse polyuréthane. Les flèches suivent la déformation particulière d'une face	210
Figure 121 : Simulation numérique : Modélisation du gaz dans la microstructure	220
Figure 122 : Impact de la prise en compte du gaz.....	221
Figure 123 : Simulation numérique : Modélisation du gaz comme un solide.....	221
Figure 124 : Comparaison modèle 3D et coupes longitudinales 2D (a) et courbes contrainte-déformation (b).....	222
Tableau 1 : Pourcentages observés de faces de différentes formes géométriques [27]	41
Tableau 2 : Nombre moyen de faces, de côtés par face et d'angles entre faces par cellule [27]	41
Tableau 3 : Sources d'erreurs de la simulation numérique et solutions.....	165
Tableau 4: Erreurs de mesure relative et temps de calcul des modèles en fonction du nombre d'éléments de maillage.....	168
Tableau 5 : Etude de l'unicité des paramètres morphologiques : (×) morphologies de microstructures étudiées	178

Table de symboles

S	Solubilité du gaz dans le polymère en cm^3/g
H	Constante de la loi de Henry en $cm^3/g.Pa$
P_s	Pression de saturation en Pa
T	Température en K
H_o	Constante de coefficient de solubilité en $cm^3/g.Pa$
ΔH_s	Chaleur molaire de sorption en J
D	Diffusivité du gaz en cm^2/s
D_0	Coefficient de diffusivité en cm^2/s
E_d	Energie d'activation pour la diffusion du gaz en J
R	Constante des gaz parfait en J/K
r_{nuc}	Rayon de nucléation des bulles en m
γ	Coefficient de tension de surface en $Pa.m^{-1}$
ρ_{gaz}	Densité du gaz en g/cm^3
T_g	Température de transition vitreuse en K
T_c	Température de cristallisation en K
ρ_m	Masse volumique de la mousse en kg/m^3
ρ_p	Masse volumique du matériau en kg/m^3
ρ_r	Densité relative en %
P	Porosité en %
Δp	Variation de pression à travers une mousse (écoulement de gaz) en Pa
V_{ec}	Vitesse d'écoulement en m/s
η_{air}	Viscosité de l'air en $Pa.s$
K_m	Perméabilité de la mousse en Darcy (D)
B	Coefficient d'inertie d'écoulement
f	Fraction de cellules fermées
E_s	Module de Young du matériau solide de la mousse en Pa

E_m	Module de Young de la mousse en Pa
F_{lim}	Force critique de flambage en N
σ_{el}	Contrainte limite de flambage en Pa
M_{pl}	Moment de flexion plastique
σ_{ys}	Contrainte à la limite élastique en Pa
σ_{pl}	Contrainte d'effondrement plastique en Pa
σ_{MOR}	Contrainte à la rupture d'une arête en Pa
Φ	Fraction solide
N_i	Nombre de photons incidents
N_t	Nombre de photons transmis
μ	Coefficient d'atténuation
η_T	Viscosité du mélange polymère en $Pa.s$
η_0	Viscosité à la température T_0 en $Pa.s$
T_0	Température initiale de moussage en $^{\circ}C$
E_A	Energie d'activation en J
T_f	Température de fusion en K
E_T	Module d'Young du mélange polymère en Pa
E_0	Module d'Young à la température initiale de moussage T_0 en Pa
N_c	Nombre de cellules nucléés dans le temps
ρ	Masse volumique du mélange polymère en kg/m^3
P	Pression du mélange polymère en Pa
$\bar{\sigma}$	Tenseur des contraintes viscoélastiques
\vec{T}_{sup}	Forces de tension superficielles en N
P_{gaz}	Pression interne du gaz en Pa
P_{in}	Pression interne initiale à la nucléation en Pa
V_{in}	Volume initial en m^3
K_T	module d'élasticité isostatique en Pa
ν	Coefficient de Poisson
$\bar{\epsilon}$	Tenseur des déformations

$\bar{\varepsilon}$	Tenseur des taux de déformations
\vec{v}	Champ de vitesse dans le mélange polymère
\vec{u}	Champ de déplacement dans le mélange polymère
τ	Temps caractéristique de propagation de la perturbation en s
C	Vitesse de propagation de la perturbation dans le mélange en m/s
D_e	Facteur d'atténuation de l'amortissement spatiale en m
Δt_i	Intervalle de temps entre deux itérations en s
D_{IVA}	Distance d'influence de chaque cellule en m
Mat_Γ	Matrice donnant la distance algébrique d'un point M à l'interface Γ de la cellule
$\vec{\sigma}_{tot}$	Champ de contrainte totale générée par toutes les bulles dans le mélange polymère
$\vec{\sigma}_{eq}$	Champ de contrainte équivalente à l'interface dans le mélange polymère
$\vec{D}(M)$	Déplacement d'un point M à l'interface
C_{vol}	Coefficient de dispersion ou de variation des volumes des cellules
α	Coefficient de répartition spatiale des cellules
μ_{sph}	Sphéricité moyenne
C_{sph}	Coefficient variation de la sphéricité des cellules
REACH	Règlement sur l'enregistrement, l'évaluation, l'autorisation et les restrictions des substances chimiques
MEB	Microscopie électronique à balayage
VER	Volume élémentaire représentatif
OBSH	Benzenesulfonyl hydrazide
DNPT	Dinitro pentaméthylène tétramine
PE	Polyéthylène
PP	Polypropène
PS	Polystyrène
PVC	Polychlorure de vinyle
CFC	chlorofluorocarbones
CBA	Agents gonflants chimiques

PBA Agents gonflants physiques
ESRF European Synchrotron Radiation Facility

Introduction

Depuis le début du XXe siècle, les matériaux cellulaires se sont imposés dans l'industrie et se retrouvent dans la vie de tous les jours, que ce soit au niveau de l'habitation (isolation phonique/thermique), du transport (rembourrage des sièges, absorption des vibrations) ou encore de l'habillement (casque de protection, chaussures, blouson). Parmi ces matériaux cellulaires, les mousses polymères occupent une position très privilégiée. Initialement adoptées pour l'allégement des structures afin de minimiser la consommation d'énergie tout en optimisant les propriétés mécaniques et la durabilité, elles ont vu leur utilisation se diversifier au fur et à mesure de l'évolution des technologies de plastification et de moussage permettant des applications de plus en plus sophistiquées (tissus artificiels, prothèses). Aussi, utilisées comme âme dans les panneaux sandwich, elles permettent des applications nécessitant à la fois légèreté et rigidité. Au regard du nouveau potentiel industriel et économique généré, la fabrication de mousses polymères s'est exponentiellement développée et cette tendance ne devrait pas s'infléchir, tant les mousses sont omniprésentes dans notre quotidien.

Une mousse polymère est un matériau à structure cellulaire poreuse. Dans le cas des mousses à cellules fermées, sujet d'étude de ce document, les cellules sont remplies d'une phase gazeuse et sont entourées par de la matière dense polymère, qui constitue les parois. Pour les mousses à cellules ouvertes, l'arrangement de ces dernières forme un réseau interconnecté dans un milieu environnant gazeux (air ambiant par exemple). Les différences fondamentales de nature entre le gaz contenu dans les cellules ou les entourant et le matériau solide des parois font que les mousses polymères forment une combinaison solide – gaz unique qui confèrent à ces matériaux des propriétés particulières attractives pour beaucoup d'applications d'ingénierie [1],[2].

Parmi ces propriétés, on peut citer :

- L'amortissement: les mousses à faible résistance mécanique fabriquées à partir de matières polymères élastomères sont utilisées dans des applications d'amortissement, par exemple dans les casques, les intérieurs d'automobiles, les sièges, meubles, chaussures, etc. Leur flexibilité et leur caractère élastomère est utile dans la répartition des charges à travers tout le matériau.
- La compressibilité élevée à contrainte constante : de nombreux types de mousse peuvent être très fortement comprimés sous une contrainte à peu près constante. De ce fait, une grande quantité d'énergie peut être absorbée sans générer de contraintes importantes. Ces types de mousses sont utilisés par exemple dans l'emballage des produits électroniques et fragiles.

- La flottabilité : une des caractéristiques physiques les plus importantes des mousses à cellules fermées est leur grande imperméabilité aux liquides. Cette propriété dépend de la proportion de cellules fermées-ouvertes dans la mousse. Combiné à leur faible densité ce comportement rend les mousses à cellules fermées très attractives pour les applications de flottaison telles que les gilets de sauvetage, les bateaux, les jouets, etc.
- L'isolation thermique: la faible conductivité thermique des mousses polymères est très utile pour les applications d'isolation thermique, par exemple en isolant les aliments surgelés, les bâtiments modernes...
- La grande porosité de mousses à cellules ouvertes : grâce à leur très grande surface spécifique, la microstructure de mousses à cellules ouvertes offre de nombreuses applications dans le filtrage de fluides. On les retrouve dans les filtres à air, les filtres à eau...

Les mousses polymères peuvent être répertoriées selon trois différentes catégories pratiques [3]:

- Le type de produits dépendant principalement de la morphologie de la microstructure.
- La technologie donnant le mécanisme de moussage adopté.
- La nature du matériau constituant les (constitutif des) parois de la mousse.

Les produits peuvent être classés par dimension, densité, taille des cellules, densité cellulaire, morphologie et/ou propriétés de la structure. Par exemple on peut comparer les mousses hautes densités aux mousses faible densité, les mousses à cellules ouvertes aux mousses à cellules fermées, les mousses rigides aux mousses molles... La technologie peut être classée essentiellement par le type de moussage. Là aussi nous pouvons comparer par exemple le moussage soluble au moussage réactif ou le moussage physique comparé au moussage chimique. La mousse peut également être classée en fonction du type de matériau polymère. Il y a alors les mousses thermoplastiques et thermodurcissables. La Figure 1 présente un organigramme illustrant les différents types de mousses que l'on peut obtenir en fonction de ces trois catégories.

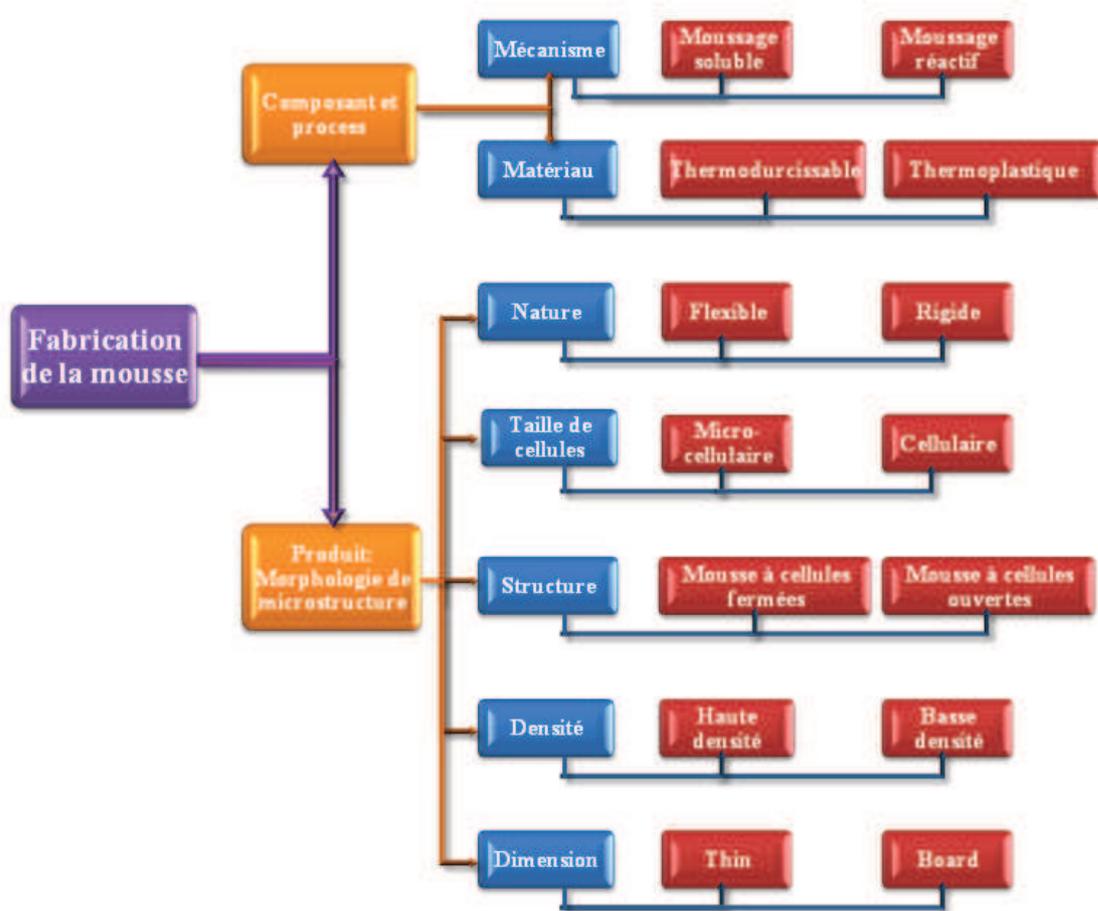


Figure 1 : Différents types de mousses obtenues en fonction de la nature du matériau, du procédé de fabrication et de la morphologie de la microstructure

Bien que les matériaux cellulaires soient largement utilisés, pour diversifier leurs applications et les rendre toujours plus performants dans les domaines de la santé, du transport ou encore du bâtiment, une recherche de la compréhension fine des relations qui lient les procédés de fabrication à la microstructure générée et aux propriétés qui en découlent, doit être menée. Plusieurs technologies et procédés permettent la réalisation de structures alvéolaires plastiques ou composites. Certaines, conventionnelles, utilisent les combinaisons d'agents d'expansion physiques et chimiques et d'agents de nucléation. D'autres très spécifiques utilisent des injections de gaz ou de microparticules de glace. Les mécanismes à l'échelle microstructurale de la nucléation et de la croissance des cellules pendant la phase de fabrication restent mal connus et très souvent les industriels utilisent des méthodes de fabrication empiriques, basées sur des essais en laboratoire interne qui sont ensuite transposés à une échelle industrielle. Avec les nouvelles réglementations sur l'enregistrement, l'évaluation, l'autorisation et les restrictions des substances chimiques (REACH), plusieurs composés chimiques utilisés comme agents gonflants sont en passe d'être interdits à terme, et les industriels sont donc confrontés à la nécessité de modifier les process et des innovations doivent être réalisées pour pérenniser leurs activités.

La compréhension du comportement mécanique des mousses polymères nécessite une bonne connaissance des propriétés mécaniques du matériau constitutif des parois couplée à une fidèle description de la morphologie de leur microstructure cellulaire caractérisée par la connectivité des cellules, la porosité ainsi que les paramètres architecturaux tels que la distribution des phases solides et gazeuses (orientation, distribution et taille des pores, épaisseur des parois). Il est donc crucial de pouvoir quantifier et mesurer ces paramètres pour tendre vers une compréhension fine des propriétés mécaniques et définir des modèles capables de relier le comportement macroscopique du matériau cellulaire vis-à-vis de son « équivalent » massif et de la microstructure. Dans cette optique, plusieurs modèles ont été élaborés et sont capables de reproduire globalement les mécanismes de déformations observés dans les matériaux cellulaires. Toutefois, ces lois revenant finalement à tenir uniquement compte de la densité relative permettent de donner des tendances générales sans être capable de rendre compte de la dispersion des résultats expérimentaux pourtant observés sur des mousses de même densité relative. Ainsi certaines questions fondamentales ont été soulevées : Comment rendre compte des impacts de la distribution de tailles ou de formes des cellules ainsi que de leur répartition spatiale pour une même porosité ? Comment décrire une microstructure de mousse lorsque la porosité (faible) ne permet pas de prendre par exemple une cellule élémentaire de type Kelvin tout en restant représentative d'une vraie morphologie de microstructure de mousse (qui n'est pas un empilement de sphère ou de polygones) ?

Le travail de thèse présenté ici s'inscrit dans le cadre d'une collaboration entre l'Institut Charles Sadron de Strasbourg (ICS – UPR CNRS) et la société INTEREP leader européen de la fabrication de caoutchouc cellulaire étanche. Les mousses étudiées durant ce projet de thèse sont principalement des mousses thermoplastiques à cellules fermées. Nous avons porté une étude approfondie de la relation entre la structure cellulaire et les propriétés mécaniques locales/globales pour une large variété de densité de mousses (de 20 à 90% de porosité). L'objectif de la thèse est de développer une analyse des propriétés mécaniques des mousses à partir de simulations éléments finis basées sur des modélisations numériques élaborées sur des microstructures reconstruites. Cette modélisation de microstructures est effectuée soit à partir d'observations expérimentales 2D grâce à des images obtenues en microscopie électronique à balayage (MEB), soit en 3D grâce à des micro-tomographies RX. En parallèle, des microstructures irrégulières générées à partir d'une description physique du processus de fabrication sont élaborées numériquement. Les simulations EF ont permis de reproduire les mécanismes de déformations en régime non linéaire observés expérimentalement sur des mousses polymères mais surtout elles ont permis d'étudier l'influence de la densité, de la distribution de taille et de forme des cellules, de leurs répartitions spatiales et même de la présence de gaz dans ces dernières.

Ce document est divisé en cinq parties que sont :

- Un premier chapitre qui recense les études bibliographiques menées sur les mousses polymères en particulier sur leur processus de fabrication, les relations entre la structure et les propriétés mécaniques ainsi que quelques modèles théoriques

permettant de comprendre les mécanismes de déformation des mousses. Cette partie permet de décrire la problématique scientifique et la stratégie de travail adoptée.

- Le deuxième chapitre concerne la caractérisation expérimentale du comportement mécanique de mousses de différentes natures polymériques et de différentes topologies. A partir de ces essais accompagnés d'observations au MEB et en microtomographie X, une analyse statistique des microstructures observées ainsi qu'une étude des relations microstructures-propriétés ont été menées et confrontées aux modèles de la littérature. Aussi, dans une perspective de modélisation numérique de ces matériaux cellulaires, une caractérisation spécifique du matériau constitutif des parois a été menée.
- Le troisième chapitre est principalement consacré sur l'élaboration d'un générateur de microstructures cellulaires polymériques 2D et 3D basé sur une représentation physique du processus de fabrication via le développement d'un algorithme implémenté sous MATLAB. Ce générateur permet une représentation numérique fidèle des microstructures observées. De ce fait, il constitue un outil performant pour produire des structures variées de matériaux cellulaires et fournit une base de microstructures susceptibles d'éclairer les liens microstructures-propriétés.
- Le quatrième et dernier chapitre décrit les séries de simulations numériques effectuées en 2D et 3D sur les deux types de modèles microstructuraux, c'est-à-dire d'abord sur les microstructures de mousses obtenues expérimentalement puis sur les microstructures générées numériquement. Ces simulations EF s'appuient sur les lois de comportements des matières polymères (en volume) précédemment déterminés et permet d'identifier par exemple les influences des paramètres matériaux (module de Young, coefficient de Poisson...) et de la morphologie de la microstructure.

1.Chapitre 1: Contexte-état de l'art

Nous présentons dans ce chapitre les concepts et idées généraux relatifs aux mousses polymères et à leurs propriétés physiques et mécaniques. Nous exposerons et analyserons les différentes approches de modélisation existant pour décrire les comportements mécaniques de mousses polymères. En conclusion, on illustrera le besoin d'un modèle réaliste qui permette de rendre compte du comportement macroscopique des mousses tout en fournissant les informations nécessaires à l'identification des mécanismes locaux de déformation.

1.1. Le matériau et le processus de fabrication

La nature du matériau des parois ainsi que les mécanismes du processus de fabrication sont les variables premières ayant une incidence directe sur la formation de la structure cellulaire et ses propriétés. Une meilleure compréhension des propriétés des mousses polymères passe donc par une meilleure analyse des matériaux polymères adoptés, des composants chimiques ou des phénomènes physiques nécessaires à la germination des cellules et à leur expansion, mais aussi par la connaissance des méthodes de synthèses et de leurs différentes étapes.

1.1.1. Le composant polymère

Il existe deux grandes familles de polymères utilisées dans les mousses: les thermoplastiques et les thermodurcissables. Les polymères thermoplastiques sont caractérisés par leur nature viscoélastique, ce qui leur confère des propriétés « process » uniques. Presque tous les thermoplastiques peuvent être expansés en mousses. Beaucoup des mousses vendues dans le commerce sont principalement basées sur des matières premières plastiques telles que : le polyéthylène (PE), le polypropène (PP), le polystyrène (PS), ou le polychlorure de vinyle (PVC). Ces polymères se prêtent bien à la fabrication des mousses. En effet, ils possèdent intrinsèquement des dispositions structurales uniques qui leur permettent de combiner des liaisons chimiques intramoléculaires pour former des points de fusion et de cristallisation différents, offrant ainsi un large spectre de propriétés spécifiques [4]. Aussi le choix du polymère pour la fabrication de la mousse doit être bien réfléchi car c'est le premier facteur influençant les propriétés de la matière solide. Il faut par exemple considérer la compatibilité avec les gaz, le processus de fabrication, la capacité à supporter le moussage en dynamique et sa stabilité. Le composant polymère dans le mélange avant le processus de fabrication de la mousse est presque toujours différent de celui après le processus de moussage et la solidification et il n'est pas rare que la composition chimique finale de l'ébauche expansible comprenne pas moins de 10 à 15 composants différents. De ce fait il est extrêmement difficile, voire impossible de déterminer les propriétés mécaniques du matériau de base constitutif de l'architecture de la mousse. Il est alors important de recourir à des tests

expérimentaux spécifiques pour bien caractériser les propriétés mécaniques du matériau de la mousse (nano indentation) ou bien de reproduire le matériau des parois sous une forme suffisamment massive capable de supporter des tests expérimentaux. Un point négatif d'avoir recours à des tests expérimentaux de type nano indentation est que seul le module de Young est précisément mesuré et que la démarche n'est pas simple à mettre en œuvre du fait de la présence du gaz dans les cellules fermées.

1.1.2. Les agents gonflants

L'agent gonflant permet la germination de cellules gazeuses dans le mélange polymère. Il peut être un solide ou un liquide qui dégage un gaz lorsqu'il est chauffé ou lorsqu'il se décompose. Ce peut être aussi un gaz incorporé par un malaxage rapide du mélange, ou un gaz introduit en surpression pendant la phase de cuisson. Les agents gonflants sont classés en deux catégories : les agents gonflants chimiques (CBA) et les agents gonflants physiques (PBA).

Les CBA sont des substances chimiques qui prennent part à une réaction chimique ou qui se décomposent à partir d'une certaine température en créant un dégagement gazeux de CO₂ et/ou de N₂. Les CBA sont eux même divisés par leur enthalpie de réaction en deux groupes : les agents gonflant endothermiques et exothermiques. La réaction chimique qui génère le dégagement gazeux peut soit absorber l'énergie (endothermique) ou libérer de l'énergie (exothermique). Le plus souvent, des substances comme l'azodicarbonamide, l'OBSH (Benzenesulfonyl hydrazide), le DNPT (Dinitro pentaméthylène tétramine) ou le bicarbonate de sodium sont utilisées comme CBA. L'azodicarbonamide est une poudre cristalline jaune-orangée de formule chimique C₂H₄O₂N₄. Elle est souvent utilisée pour le moulage par injection de mousse, de PVC, des PE... L'OBSH est aussi souvent utilisé. C'est une poudre de couleur blanche non polluante et est adopté comme agent gonflant dans le moussage de produits thermoplastique (PVC, PE, PS...) ou élastomériques (SBR, néoprène, élastomère naturelle...)

Les PBA ne réagissent pas chimiquement dans le procédé de moussage et sont donc inertes pour le polymère formant la matrice. Certains PBA tels que le pentane ou l'alcool isopropylique ont un point d'ébullition bas et restent dans un état liquide dans le polymère fondu sous la pression. Lorsque la pression est relâchée, le changement de phase de l'agent gonflant de liquide à vapeur se produit immédiatement et la vapeur sort de la solution avec le polymère, expansant le mélange polymère. D'autres types de PBA sont des gaz inertes tels que le CO₂ ou le N₂ [5].

Les chlorofluorocarbones (CFC) utilisés dans le passé sont des agents d'expansion idéaux d'un point de vue technique [6]. Ils ne sont pas inflammables, ont des points d'ébullition adéquats et sont non toxiques. Ils ont également de bonnes propriétés d'isolation thermique donnant au final des structures cellulaires stables et faciles à réaliser. Cependant avec les

importantes préoccupations environnementales qui leur sont associées, l'utilisation des CFC est interdite par le Protocole de Montréal [7] signé par 24 pays depuis 1987.

1.1.3. Synthèse des mousses polymères

Le Moussage dans les polymères implique des mécanismes scientifiques délicats et des techniques de fabrication subtiles. La fabrication des mousses polymère combine la connaissance de méthodologies de fabrication souvent très peu répandues et essentiellement empiriques, la connaissance de techniques ingénieuses de conceptions et la caractérisation des propriétés matériaux. Actuellement le moussage par extrusion, par injection, les moussages réticulés, le moussage réactif et la gélification sont des procédés de fabrication très bien maîtrisés de mousses polymères. Tous ces procédés de fabrication partagent les mêmes mécanismes de création de la structure cellulaire : une première étape pour dissoudre complètement une grande quantité soluble d'agent gonflant dans le mélange polymère sous haute pression, une phase destinée à induire une instabilité thermodynamique dans la solution homogène de polymère/gaz formé plus tôt et un mécanisme de contrôle de la croissance et de la stabilisation des bulles [3]. Les différents aspects de ces mécanismes de moussage sont:

- Les cinétiques de réaction de décomposition de l'agent moussant.
- Les phénomènes de germination et de propagation des cellules de gaz dans le mélange polymère ainsi que la diffusion du gaz dans le polymère.
- Les phénomènes de coalescence et de dilatation thermique.
- La stabilisation de la mousse polymère.

1.1.3.1. La cinétique de réaction

La solubilité de l'agent gonflant et la diffusivité du gaz dans le mélange sont des paramètres impactant très fortement la nucléation et la croissance des cellules. Afin d'obtenir un mélange homogène et une dissolution complète du gaz dans le mélange polymère la quantité d'agent gonflant injectée doit être inférieure à la limite de solubilité à la pression et à la température du procédé (de fabrication). Un excès d'agent gonflant non dissout peut engendrer la formation de trop grandes cellules. Il est donc essentiel de déterminer la solubilité de l'agent gonflant ou la quantité qui peut être absorbée et dissoute dans le mélange. La solubilité maximale du gaz dans le mélange peut varier en fonction de la pression et de la température et peut être estimée par la loi de Henry [5] et la loi de Van't Hoff:

$$S = Hp_s \quad (\text{eq. 1.1})$$

$$H = H_0 \exp\left(-\frac{\Delta H_s}{RT}\right) \quad (\text{eq. 1.2})$$

Où S est la solubilité du gaz dans le polymère en cm^3/g , H est la constante de la loi de Henry $cm^3/g.Pa$, et P_s est la pression de saturation en Pa. R est la constante des gaz parfait en J / K, T est la température en K, H_0 est une constante de coefficient de solubilité ($cm^3/g.Pa$), ΔH_s

est la chaleur molaire de sorption en J. Les équations ci-dessus peuvent être utilisées pour estimer la solubilité d'un agent d'expansion dans le mélange à une certaine pression et température.

Utilisant le modèle classique de diffusion de la loi de Fick, la diffusivité D du gaz dans le mélange en fonction de la température T est donnée par [8], [9]:

$$D = D_0 \exp\left(-\frac{E_d}{RT}\right) \quad (\text{eq. 1.3})$$

D_0 est le coefficient de diffusivité en cm^2/s , et E_d est l'énergie d'activation pour la diffusion en J.

1.1.3.2. Nucléation et expansion des cellules

Pour qu'il y ait une nucléation de cellules, l'énergie libre du système doit dépasser le travail mécanique nécessaire [3], [10]. Ceci est traduit par l'équation :

$$\Delta G \geq \frac{3\gamma}{\rho_{\text{gaz}} r_{\text{nuc}}} \quad (\text{eq. 1.4})$$

Où γ est la tension de surface, r_{nuc} est le rayon de nucléation des bulles, et ρ_{gaz} est la densité du gaz. La taille initiale des cellules est très petite, de l'ordre du nanomètre ou de l'angström. Deux types de mécanismes de nucléation peuvent alors être observés : une nucléation homogène où les cellules nucléées sont réparties de manière aléatoire tout au long de la matrice polymère et une nucléation hétérogène. La nucléation hétérogène est définie comme une nucléation à certains sites préférentiels, tels que la limite de phase ou des sites donnés par les agents de nucléation. Après la nucléation de cellules se produisant en une fraction de seconde, les cellules grossissent en raison de la diffusion du gaz en excès dans le polymère. La différence de pression entre le gaz dans les cellules et le système est la principale force motrice de l'expansion cellulaire. Les cellules continuent de croître jusqu'à ce que le système polymère - gaz atteigne l'équilibre. La viscosité du polymère, la concentration du gaz, la température de synthèse et le nombre de cellules nucléées sont autant de variables qui commandent le processus de croissance de la mousse [11]. Il existe plusieurs modèles de croissance de structures cellulaires pour décrire la dynamique très complexe d'expansion des mousses polymères durant leur processus de fabrication. Ces modèles de croissance peuvent être classés en trois catégories :

- Le modèle unicellulaire de croissance (une bulle unique)
- Le modèle multicellulaire (essaim de plusieurs bulles sans interaction)
- La combinaison du modèle multicellulaire à la nucléation de nouvelles bulles

Modèle unicellulaire

Entre 1917 et 1984 les modèles étudiés portaient exclusivement sur la croissance ou l'effondrement d'une bulle unique entouré par un milieu infini de fluide et avec une quantité

infinie de gaz disponible pour la croissance. Rayleigh [12], Epstein et Plesset [13] et Scriven [14] ont été parmi les premiers chercheurs à avoir développé ces modèles de base pour mener des études théoriques ou expérimentales sur la croissance des bulles.

Plus récemment Shafi et al. (1996) [15] ont élaboré des modèles de nucléation et de croissance d'une cellule dans un mélange polymère fluide considéré comme newtonien. La Figure 2 illustre la croissance d'une bulle sphérique isolée dans un mélange polymère. Dans leur modèle, Shafi et al. supposent qu'il existe une symétrie sphérique des flux :

- Le flux de chaleur radial
- La diffusion de gaz radiale du mélange à la bulle

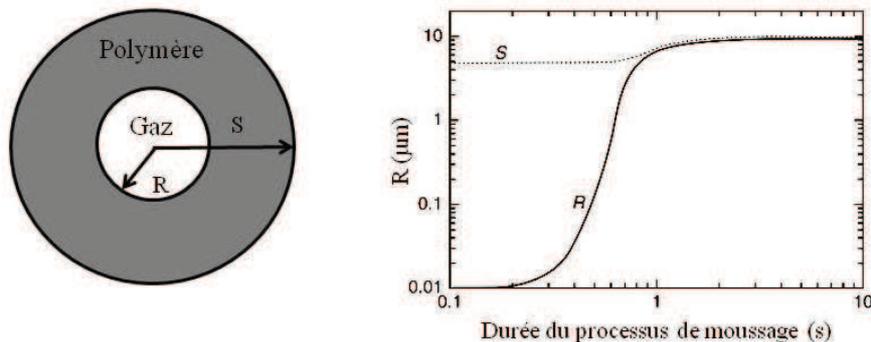


Figure 2 : Modélisation de la croissance d'une bulle sphérique isolée dans un mélange de PE et courbe d'évolution du rayon de la bulle dans le temps [15]

Bien que ces modèles aient donné plusieurs indications sur les phénomènes de croissance des bulles, leur application pratique dans l'industrie est sévèrement limitée parce que le procédé de moussage implique la croissance de nombreuses bulles avec une expansion à proximité étroite les unes des autres et une quantité de gaz limitée.

Modèle multicellulaire

Le concept de modèle multicellulaire a été introduit par Amon et Denson en 1984 [16]. Leur étude a porté sur la croissance d'une grande quantité de bulles de gaz à proximité immédiate les unes des autres dans une solution polymère - gaz. La mousse est divisée en cellules unitaires microscopiques sphériques de masse égales et constantes, chaque bulle étant entourée d'une enveloppe liquide. Le gaz disponible pour la croissance est donc limité. Ce modèle présente une évolution importante, permettant de décrire de manière plus réaliste le processus de moussage.

Un modèle encore plus réaliste doit intégrer la nucléation et la croissance de bulles simultanément. Les nouvelles bulles apparaissent au fur et à mesure dans la structure déjà en expansion. C'est sur ces bases que Shafi et al. (1996) (1997) puis Joshi et al. (1998) [17] ont développé de nouveaux modèles. Shafi et al, en introduisant une zone d'influence du gaz pour chaque cellule, ont prédit une distribution finale de taille de cellules dépendant principalement de la vitesse de nucléation, sachant que toutes les bulles ont la même cinétique de croissance

et le même rayon initial à la nucléation (Figure 3). Plus tard, James J. Feng et al. [18] ont proposé un modèle multicellulaire où la nucléation des bulles est hétérogène. Dans leur modèle, les bulles grossissent avec la diffusion du gaz du mélange polymère viscoélastique vers les cellules. La diminution de la concentration des agents gonflants engendre simultanément la réduction du taux de nucléation alors que les cellules plus anciennes continuent de croître. Au final ils ont intégré simultanément la nucléation et la croissance de bulles et prédit la distribution finale de la taille des cellules en assez bon accord avec des mesures expérimentales.

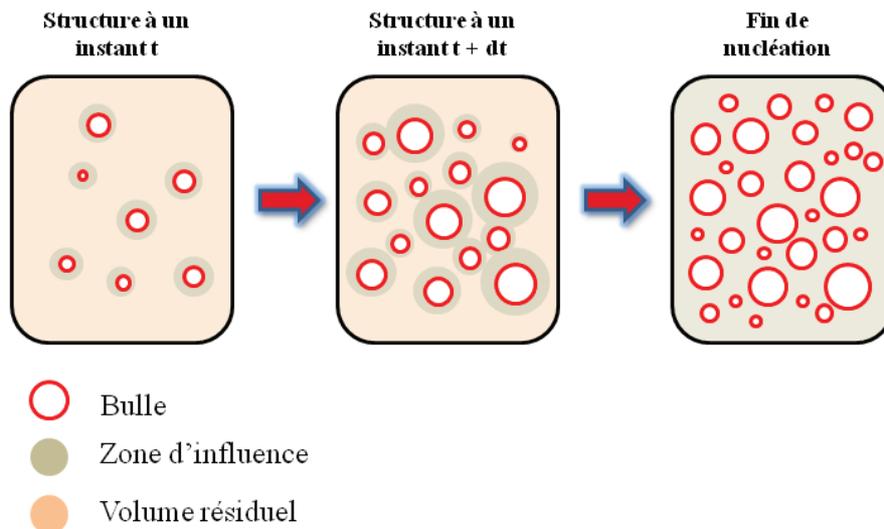


Figure 3 Illustration de la de la zone d'influence dans la nucléation et la croissance simultanée de bulles

1.1.3.3. Stabilisation et phénomènes de coalescences

Les cellules se rapprochent les unes des autres à mesure qu'elles grandissent, les phases gazeuses étant séparées par une paroi solide du mélange polymère. La pression accrue à l'intérieur des bulles étire les parois des cellules les rendant de plus en plus minces. Quand la pression à l'intérieur d'une cellule est suffisamment élevée, elle rompt la paroi cellulaire et les deux bulles adjacentes fusionnent en une seule grosse bulle [19]. La force motrice engendrant cette coalescence correspond à la tendance thermodynamique du système à réduire la surface inter faciale de la cellule nouvellement formée pour minimiser l'énergie libre. Ces phénomènes de coalescence ont une incidence défavorable sur les tailles de cellules finales et devraient donc être évités. La diminution de la flexibilité du polymère par refroidissement est une méthode pratique pour empêcher les cellules de coalescer. Une baisse de la température au-dessous de la température de transition vitreuse (T_g) ou de la température de cristallisation (T_c) entraîne la stabilisation et fixe la morphologie de la mousse.

Ces différents aspects des mécanismes de créations de structures cellulaires seront aussi adaptés à notre modèle de génération de microstructures. Nous y reviendrons alors plus en détails dans le chapitre 3.

1.1.4. Morphologie de la microstructure

Les matériaux cellulaires présentent trois niveaux d'échelles hiérarchiques dans leur morphologie: l'échelle microscopique, mésoscopique et macroscopique. L'échelle microscopique correspond à celle du matériau constitutif des parois. Selon Gibson et Ashby, (1997), c'est le comportement intrinsèque de cette matrice solide qui conditionne le comportement mécanique des mousses. L'échelle mésoscopique est celle de l'arrangement des cellules au sein de la mousse. Les paramètres morphologiques sont la connectivité des cellules (cellules ouvertes ou fermées) ainsi que la géométrie de la structure (taille, forme et répartition spatiale des cellules, épaisseurs des parois...). A l'échelle macroscopique le matériau est souvent considéré comme homogène, et est essentiellement décrit par sa densité relative. Ainsi les plus importantes caractéristiques structurelles des mousses sont :

- La densité relative
- Le caractère ouvert ou fermé des cellules.
- La taille, la forme et la distribution des cellules
- L'anisotropie géométrique de la structure

1.1.4.1. La densité relative

La densité relative est le plus important paramètre pouvant caractériser la structure d'une mousse solide et des matériaux à structures cellulaires de manière générale [1]. Elle est donnée par :

$$\rho_r = \frac{\rho_m}{\rho_p} \quad (\text{eq. 1.5})$$

Où ρ_m représente la masse volumique de la mousse et ρ_p la masse volumique du matériau dont la mousse est constituée. On parle aussi souvent de porosité P qui est :

$$P = 1 - \rho_r \quad (\text{eq. 1.6})$$

La densité d'un matériau cellulaire affecte profondément ses propriétés. Des mousses de haute densité sont par exemple utilisés dans les fils et câbles et à des fins structurelles. Les mousses à faible densité sont principalement utilisés pour l'absorption d'énergie ou l'isolation thermique.

1.1.4.2. Mousses à cellules fermées ou mousses à cellules ouvertes

D'une manière générale, les mousses à cellules fermées sont constituées de bulles de gaz formées au cours de l'expansion et piégées lors du durcissement de la mousse. Les mousses à cellules ouvertes cependant sont de nature différente (Figure 4). Les cellules de la mousse montrent des «trous» dans leurs murs, formant un réseau de cellules interconnectées. Le gaz issu du processus de fabrication n'est plus piégé par les cellules et est libéré dans

l'atmosphère, laissant les espaces dans les cellules remplies d'air. Ces mousses sont généralement de basse densité et très flexibles. La proportion de cellules ouvertes-fermées peut être estimée avec des mesures d'absorption ou de perméabilité.

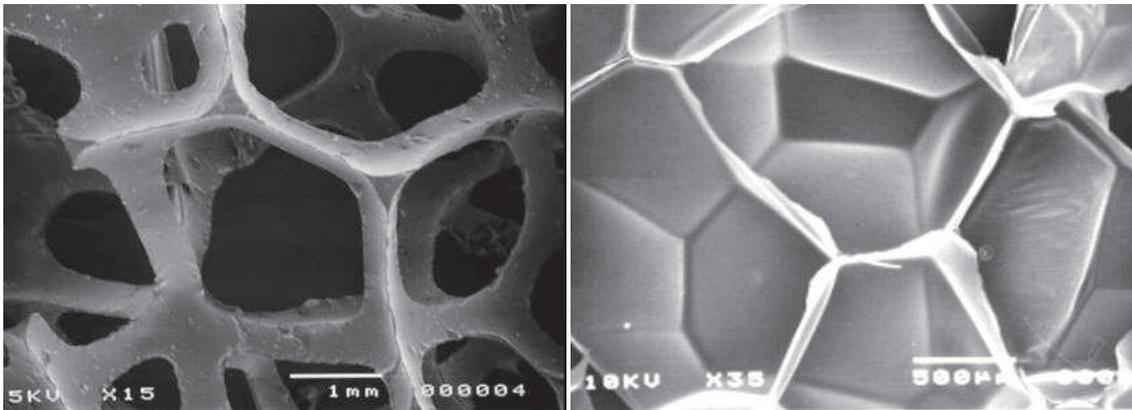


Figure 4 : Mousse à cellules ouvertes (gauche) et mousse à cellules fermées (droite) [1]

1.1.4.3. Taille, forme et distribution des cellules

La taille et la forme sont variables d'une structure cellulaire à une autre mais aussi au sein d'une même mousse polymère. On peut distinguer quatre stages dans l'évolution de la structure des mousses polymères. Pour chacune des phases, les cellules adoptent une taille et une forme typique en fonction de la porosité (Figure 5).

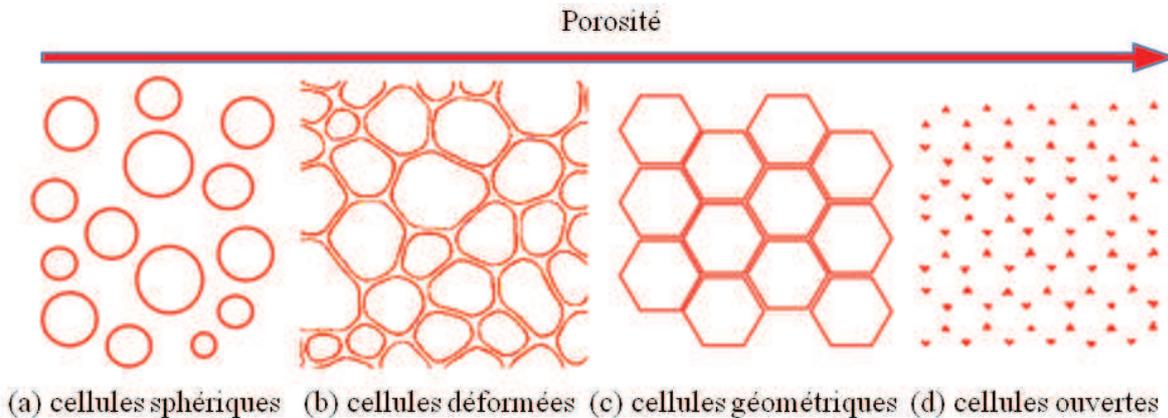


Figure 5 Evolution de la forme des cellules en fonction de la porosité

Au début de la synthèse, les bulles sphériques isolées se développent dans le mélange polymère. A ce stade le type de structure obtenu donne souvent de petites tailles de cellules relativement sphériques et correspond souvent à des mousses de très haute densité ou de très faible porosité (Figure 5.a) [20]. Au-delà d'une certaine densité seuil dépendant de la distribution de tailles des cellules et de leur répartition dans la matrice polymère, les formes des cellules sont déformées à cause des interactions engendrées. Plus la sphéricité diminue et plus on observe des structures similaires aux écumes de bulles de savon (« wet closed cell »)

(Figure 5.b) [21]. Quand la densité relative tend vers 0 (limite théorique), les cellules adoptent une forme plus géométrique avec moins d'arrondis sur les angles, d'où le nom de « dry closed cell » [22]. On atteint alors de très fortes porosités (>90%). La figure fig.5c donne un exemple de structure en nid d'abeille avec une taille unique de cellule. Quand les bulles continuent de croître, une mousse à cellule ouverte est formée lorsque les faces se rompent [21]. La polymérisation et la réticulation permet la stabilisation des cellules ouvertes, formant les arêtes et les sommets. La Figure 5 Evolution de la forme des cellules en fonction de la porosité illustre une vue en coupe d'une mousse à cellules ouvertes. Il n'y a plus de faces, seules subsistent les arêtes des cellules.

Pour un échantillon de mousse donnée, la distribution de taille des cellules ou de leur forme peut être mesurée de différentes façons : une analyse statistique à partir d'images 2D (MEB), une reconstruction volumique à partir d'images 3D (voxels), des mesures avec un porosimètre à mercure ou bien en utilisant la technique d'immersion de mercure.

1.1.4.4. Anisotropie géométrique

Une mousse idéale doit être isotrope : la structure et les propriétés ne sont portées sur aucune direction privilégiée. Cependant la plupart des mousses polymères présente une certaine anisotropie avec des cellules allongées/étirées dans la direction d'extrusion lors du processus de moussage. Par conséquent, la réponse en contrainte-déformation de la mousse est fonction de la direction de la contrainte appliquée par rapport aux directions d'extrusions, ce point sera discuté ci-après au paragraphe 1.3.1.6.. Une forte contrainte appliquée à une mousse initialement isotrope peut aussi causer une anisotropie mécanique; en effet les cellules peuvent être aplaties lors de la sollicitation dans un plan particulier, de sorte que la mousse devient anisotrope [1], ceci est surtout vrai dans le cas de mousse à comportement plastique.

1.2. Modélisation de la microstructure

La complexité de la morphologie de certaines microstructures rend délicate toute étude de ses propriétés mécaniques. Il est alors nécessaire de simplifier la géométrie de ces structures en imposant un certain nombre d'hypothèses sur la microstructure et sur ses mécanismes de déformation. Ainsi plusieurs modèles de structures ont été créés visant à approcher un modèle de mousse idéal. Ces modèles de microstructures peuvent être soit une approximation de la microstructure ou une représentation fidèle d'une véritable structure de mousse.

1.2.1. Modèle de mousse idéale

Dès le XIX^{ème} siècle, des recherches ont été effectuées sur des morphologies de structures cellulaires très stables observées dans la nature. Le physicien Joseph Plateau en 1873 a formulé à partir de tests expérimentaux un ensemble de conditions décrivant la structure en mousse des films de savon. Ces conditions ont été démontrées et validées plus tard par Jean

E. Taylor en 1976 [23]. Un modèle de mousse idéale respectant les conditions de Plateau a les caractéristiques suivantes :

- La mousse a une densité relative très faible. C'est une structure de type « dry closed cell ». Les arêtes sont droites et les faces sont planes dans l'état non déformé.
- La courbure moyenne de chaque face d'une bulle est constante.
- Trois bulles se rejoignent en une jonction dite « bord de Plateau » sous un angle de 120° .
- Un sommet correspond à l'intersection de 4 arêtes sous un angle de 109.47° (l'angle du tétraèdre régulier).

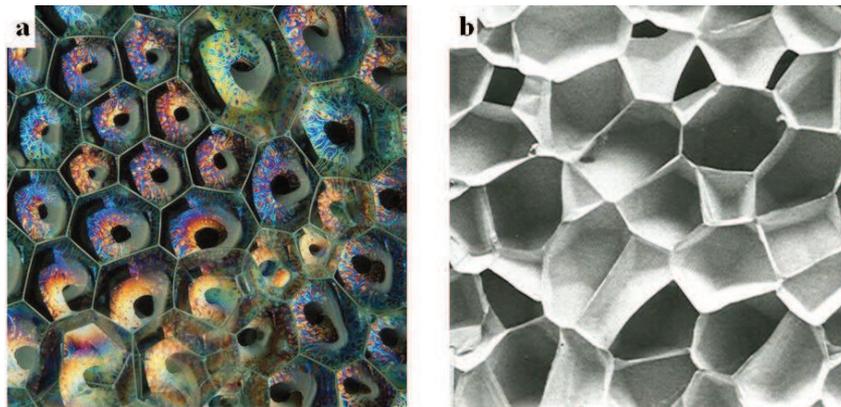


Figure 6 : Structure de bulle de savon (a) et une mousse polyéthylène (b) [1]

La structure peut être modélisée sous la forme d'un réseau continu de surfaces interconnectées. L'épaisseur des parois séparant les bulles est supposée nulle et la tension de surface uniforme vaut 2σ (chaque paroi étant faite de deux surfaces). Les conditions de Plateau bien que basées sur les films de savon et les interfaces air-liquide ont souvent servi de support physique pour la création de modèles de mousses polymères à très grande porosité. Williams en 1968 [24] a examiné les géométries des cellules dans des bulles de savon, des cellules végétales, et d'autres structures cellulaires. Après des mesures statistiques Il a observé quelques règles pouvant être appliquées aux modèles de mousses:

- Le nombre moyen de faces par cellule est de 14
- Le nombre moyen de côtés par face est de 5,14
- Quatre faces se rejoignent par sommet avec des angles de $109^\circ 28'$.

D'autres études ont été menées plus particulièrement sur certaines mousses polymères pour décrire la cellule moyenne. Grace à l'usage de la micro-tomographie à rayons X à haute résolution ($8 \mu\text{m}$) permettant de révéler la structure intérieure d'une mousse, une analyse statistique après un traitement spécifique (squelettisation) des images en coupes transversales ou de l'image 3d reconstruite donne alors la taille moyenne des cellules, le nombre moyen de faces par cellule, la longueur moyenne d'arêtes et leurs angles... Ainsi Elliott et al. en 2002 [25] puis Montminy et al. en 2001 et 2004 [26] ont pu donner certaines caractéristiques

moyennes de la forme des cellules de mousses de polyuréthane (PU), différentes de ce qu'a pu observer Williams auparavant (Tableau 1, Tableau 2).

Auteur	Mousse	N. de cellules	Triangles	Quadrilatères	Pentagones	Hexagones	Heptagones
Williams	Bulles de savon	600	0	11	67	22	<1
Montminy	PU	106	1	24	55	19	1

Tableau 1 : Pourcentages observés de faces de différentes formes géométriques [27]

Auteur	Mousse	N. faces moyen	N. cotés/face moyen	Angle des faces moyen
Williams	Bulles de savon	14	5.1	109.28°
Montminy	PU	13	4.95	107±0.5°

Tableau 2 : Nombre moyen de faces, de côtés par face et d'angles entre faces par cellule [27]

1.2.2. Modèles de structures régulières

Dans le cas de structures régulières les mousses sont construites à partir de la répétition périodique d'un modèle de cellule élémentaire. En deux dimensions il n'y a que 11 possibilités de paver l'espace avec des polygones réguliers. Parmi elles, trois correspondent aux pavages réguliers du plan de Kepler. Les cellules élémentaires sont alors le triangle, le parallélogramme et l'hexagone. Ce dernier donne une structure « nid d'abeille » très adoptée dans la modélisation de structures cellulaires car elle présente une densité minimale de matériau et de très bonnes propriétés mécaniques en compression et en cisaillement. En trois dimensions la cellule élémentaire est généralement représentée par un polyèdre. Un polyèdre est un motif géométrique tridimensionnel formé par l'assemblage de polygones dans l'espace. La cellule élémentaire est alors un assemblage de poutres représentant les arêtes de la cellule avec des faces représentant les parois si la cellule est fermée. En 1885, le mathématicien russe Evgraf Fiodorov a identifié seulement cinq familles de polyèdres capables de paver l'espace à l'aide de translations : le cube, l'octaèdre tronqué, le dodécaèdre rhombique, le dodécaèdre rhombique allongé et le prisme hexagonal (Figure 7). Le pavage peut se faire avec un seul et même polyèdre ou une combinaison entre les cinq familles.

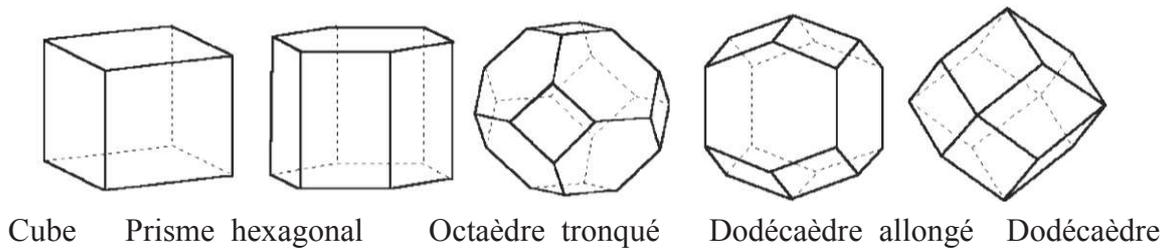


Figure 7 : Les polyèdres réguliers ou semi réguliers pour paver l'espace

Le tétrakaidécaèdre satisfait les règles géométriques établies par Williams et peut paver l'espace. Un tétrakaidécaèdre est un octaèdre tronqué disposant de 14 faces dont 8 surfaces hexagonales non planes et 6 surfaces planes quadrangulaires, toutes avec des bords incurvés, tandis que les angles entre les bords aux sommets sont de $109,5^\circ$. Thomson (Lord Kelvin) a proposé en 1887, un réseau de tétrakaidecaèdres comme la meilleure structure permettant de paver l'espace avec des cellules de même volume et telles que l'aire totale des interfaces entre les cellules soit minimale (Figure 8.a). Cette structure respectant aussi les conditions de Plateau a largement été adoptée pour la modélisation de structures de mousses polymères. Kraynik et Warren l'ont par exemple utilisé pour effectuer une analyse micromécanique du comportement linéaire élastique d'une mousse à cellules ouvertes et à faible densité [28]. Williams (1968) a proposé une structure β – tétrakaidécaèdre, avec 2 faces carrées, 8 faces pentagonales, et quatre faces hexagonales. Cependant, ce modèle de cellules malgré une distribution statistique encore plus proche de celles observées dans la nature a été très peu utilisé.

Denis Weaire and Robert Phelan en 1993 [29] ont élaboré une structure faite de deux différents types de cellules de volume égal : un dodécaèdre irrégulier avec des faces pentagonales et un tétrakaidécaèdre (Figure 8.b). Cette structure présente une surface de 0,3% plus petite que la structure de Kelvin. Il n'a cependant pas été prouvé que la structure Weaire - Phelan soit optimale. Plusieurs autres études ont démontré l'existence de structures présentant une moindre surface. Parmi elles nous pouvons citer les travaux de John Sullivan ou de Ruggero Gabbrielli [30].

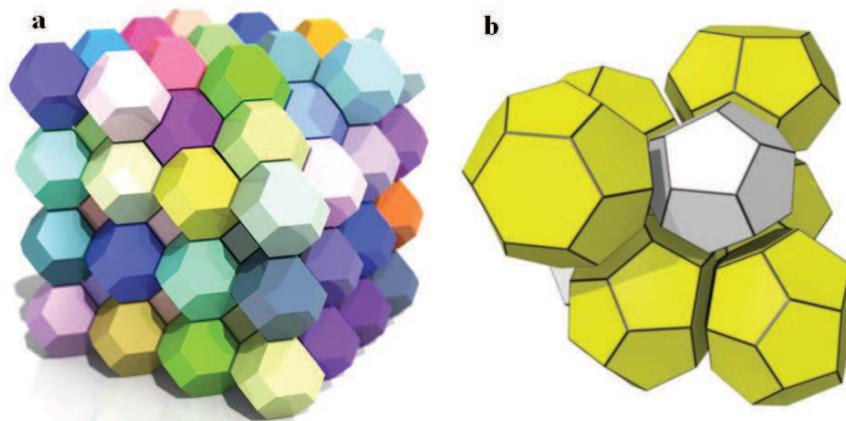


Figure 8 : Structure de Kelvin (a) [31] et le modèle de Weaire – Phelan (b) [30]

Un inconvénient majeur de ces modèles de structures régulières est qu'ils ne tiennent compte que de la densité relative de la mousse. De ce fait ils ne peuvent pas rendre compte de la dispersion dans la répartition de la taille, la forme ou la position des cellules pour des structures de même porosité. D'autres modèles basés sur des descriptions géométriques plus réalistes de l'architecture de la mousse ont alors été proposés.

1.2.3. Modèles de structures irrégulières

Il y a deux méthodes pour créer des modèles de structures irrégulières. La première méthode consiste à générer numériquement des structures alvéolaires aléatoires en contrôlant des paramètres comme la forme des cellules, la dispersion de leur taille et la distribution spatiale. Il s'agit ensuite de vérifier si les paramètres statistiques donnés correspondent à ceux de vraies mousses. Pour la deuxième méthode les paramètres sont obtenus à partir des analyses statistiques effectuées sur des échantillons de mousses de polymères (voir 1.2.4 Approche microstructurale).

Le diagramme de Voronoï est souvent utilisé pour la génération de structures cellulaires aléatoires. Un diagramme de Voronoï est une partition de l'espace à partir d'un ensemble discret de points ou germes. Pour chaque germe il y a une région correspondante constituée de tous les points plus proches de ce germe que pour tout autre. Ces régions sont appelées cellules de Voronoï (Figure 9).

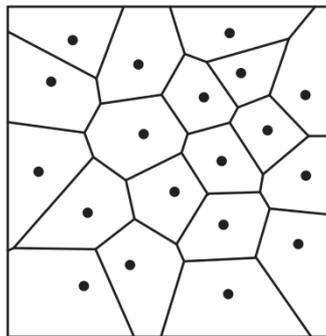
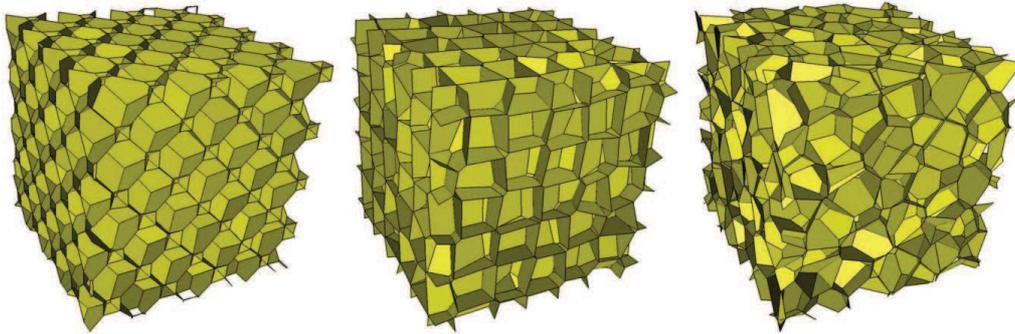


Figure 9 : Diagramme de Voronoï 2D

Valuyskikh en 1990 [32] a pu extraire des modèles irréguliers par la déviation stochastique des centres de cellules d'un réseau régulier de tétrakaidécaèdres. Cependant en générant une structure aléatoire à partir de la structure initialement régulière sans aucune contrainte sur la morphologie des cellules, la structure résultante manque de caractéristiques géométriques très importantes d'une vraie mousse (nombre moyen de faces par cellules, nombre moyen d'arêtes par face...). Krainik et Reinelt [22] ont pu générer des structures cellulaires irrégulières dont la dispersion des cellules et leur géométrie ont pu être contrôlées. A partir de la distribution aléatoire de sphères de taille unique, ils ont assoupli et relaxé la géométrie des structures de Voronoï obtenues pour satisfaire les conditions de Plateau et minimiser la surface des cellules. Roberts et Garboczi (2002) [33] ont créé des modèles 3D de Voronoï de mousses à cellules

fermées et ouvertes. Grâce à des analyses par éléments finis de leurs modèles de Voronoï, ils ont démontré l'influence de la dispersion aléatoire des cellules et de l'isotropie sur les propriétés de matériaux à cellules fermées.



(a) Structure initiale (b) Structure faiblement irrégulière (c) Structure très irrégulière

Figure 10 : Modèles 3D de structures Voronoï à partir d'un réseau ordonné de points [34]

La Figure 10 montre des modèles de structures 3D de Voronoï. Les structures irrégulières (Figure 10.b et c) sont obtenues en contrôlant le déplacement aléatoire d'une distribution initialement ordonnée de points dans l'espace [34] (Figure 10.a). Le comportement de la structure géométrique est finalement étudié numériquement par une analyse éléments finis du modèle.

Cependant il y a quelques inconvénients majeurs dans les structures de Voronoï : la distribution initiale des centres de cellules fixe entièrement la morphologie de la structure aléatoire finale. De plus le modèle de Voronoï suppose que :

- Les centres de bulles ne se déplacent pas lors du processus d'expansion
- Ces centres apparaissent tous à l'instant initial de nucléation sur des positions aléatoires
- Les bulles grossissent à une vitesse constante jusqu'à ce qu'elles se touchent et se figent

Toutefois, les deux dernières hypothèses ne sont pas applicables à une mousse polymère. Le changement de volume à mesure que la mousse est expansée provoque le déplacement des centres de cellules. Il existe alors une dernière approche de modélisation de la structure de mousse encore plus réaliste: l'approche microstructurale.

1.2.4. Approche microstructurale

L'approche microstructurale est une méthode pour reconstruire la microstructure des mousses consistant à exploiter directement une observation 2D ou 3D réelle de la mousse. Il existe plusieurs techniques expérimentales qui peuvent être utilisées pour examiner les mousses en trois dimensions. Les principales techniques sont la microscopie confocale, l'imagerie par résonance magnétique (IRM) et la tomographie X [25]. La tomographie X est une technique

non destructive qui donne une représentation exacte de la morphologie de la mousse. Grâce à elle l'analyse et l'exploitation de la géométrie de structures réelles permettent d'aller plus loin dans l'étude de l'influence de la microstructure des mousses sur leur comportement mécanique.

Il existe deux types d'approches microstructurales: la première consiste à exploiter les données statistiques obtenues à partir des images tomographiques (centre des cellules, distribution de tailles...) comme paramètres d'entrée des modèles de structures aléatoires comme présenté au paragraphe précédant 1.2.3 structures irrégulières. Les centres des bulles par exemple ne sont plus générés de manière aléatoire mais sont extraits après un ensemble de traitements d'images sur les structures réelles. Les cellules de Voronoï sont alors générées autour de ces germes.

La deuxième approche, la plus représentative d'une structure de mousse, consiste à extraire directement un modèle géométrique à partir des observations 2D et 3D. J. A. Elliott et al (2002) ont ainsi étudié les mécanismes de déformation d'une mousse de polyuréthane à cellules ouvertes à partir d'observations en micro-tomographie à rayons X. La compression en temps réel de l'échantillon de mousse est observée dans tout le volume de la microstructure irrégulière et montre des changements soudains dans le module élastique accompagnés par des augmentations localisées de densité. La capacité de faire de l'imagerie micro-tomographique a permis d'observer très finement et sans ambiguïté l'intérieur de la microstructure démontrant ainsi un des avantages de l'approche microstructurale [25]. Cependant les moyens techniques et financiers mis en œuvre pour l'acquisition, les traitements de ces images et la reconstruction finale de la microstructure font que cette approche n'est que très peu adoptée, d'autant plus qu'une analyse éléments finis est systématiquement adoptée pour décrire le comportement mécanique de la structure reconstruite. Les travaux de thèse de Souhail Youssef (2004) [35] et plus récemment de Tao Zhang (2013) [36] ont montré le grand potentiel technique et analytique de la combinaison entre la modélisation basée sur une reconstruction d'images de tomographie X et la méthode des éléments finis pour étudier le comportement mécanique des mousses.

1.3. Mécanique des mousses polymères

Comme abordé précédemment, les mousses polymères ont une large gamme d'applications mécaniques, et sont souvent utilisées dans des conditions impliquant une charge de compression en raison de leur capacité d'amortissement. Leurs propriétés dépendent de leur microstructure et des matériaux solides dont elles sont constituées. Dans cette partie, les principales caractéristiques du comportement mécanique seront présentées en se focalisant plus particulièrement sur le comportement en compression uniaxiale, ainsi que sur les mécanismes qui lui sont associés. L'importance et l'influence des paramètres structuraux pertinents tels que la densité relative, la mesure dans laquelle les cellules sont ouvertes ou fermées, la distribution de la taille des cellules et les propriétés du solide constitutif telles que

la densité, le module de Young ou le coefficient de Poisson seront également étudiées. Enfin on s'intéressera au comportement mécanique de deux modèles de structures régulières : la cellule élémentaire cubique et la cellule élémentaire tétrakaidécaédrique.

1.3.1. Mécanismes de déformations des mousses polymères

La réponse à une sollicitation de compression est souvent utilisée pour classer la réponse générique des mousses polymères. La Figure 11 donne les comportements de trois types de mousses les plus souvent observées en compression : les mousses faites avec un matériau élastomère (élastique), les mousses élasto-plastiques et les mousses élastiques fragiles.

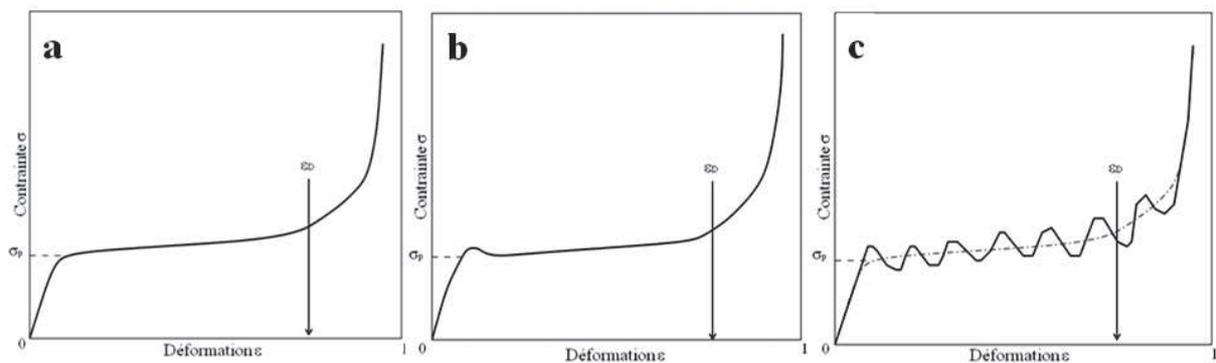
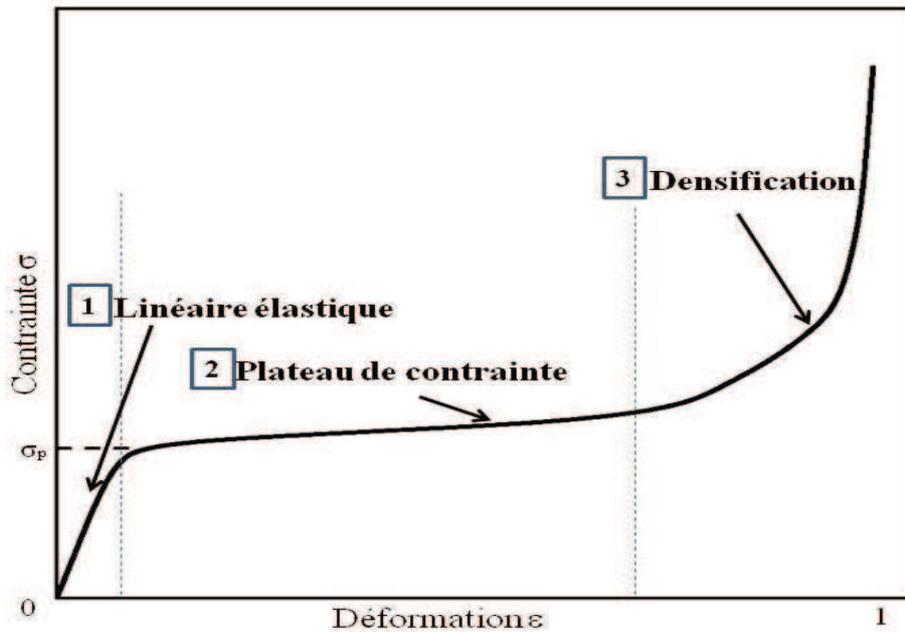


Figure 11 : Allure des courbes contrainte-déformation de mousses en compression uni axiale: (a) mousse élastomère ; (b) mousse élasto-plastique ; (c) mousse élastique fragile

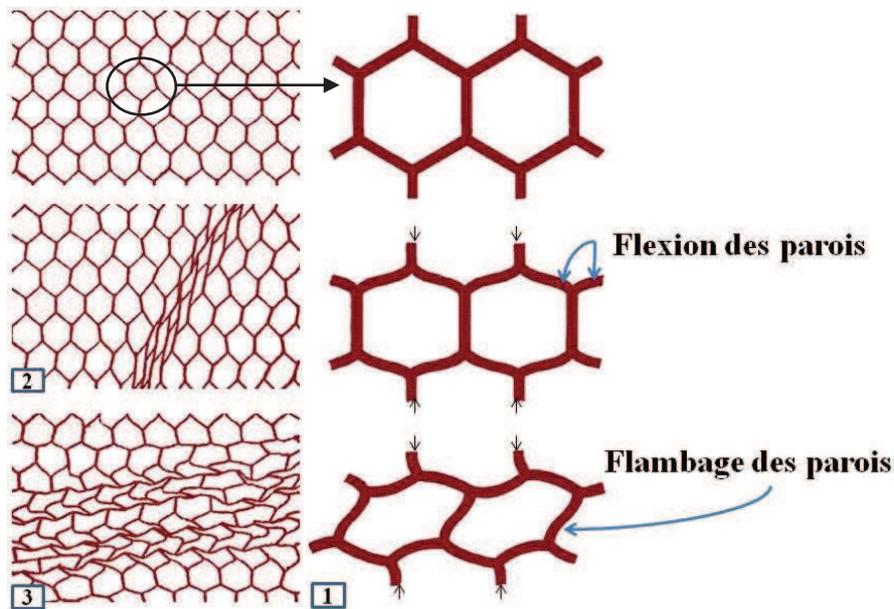
Sur chacune de ces courbes on peut identifier trois régions qui correspondent chacune à des mécanismes spécifiques (Figure 12.a):

- L'élasticité linéaire
- Le plateau de contrainte correspondant à un effondrement élastique et plastique
- La densification

Sur la Figure 12.b, les étapes de déformation en compression d'une structure en nid d'abeilles permettent de bien illustrer ces mécanismes de déformation.



(a) Etapes de déformations d'une mousse élastomère



(b) Déformation d'une structure de type nid d'abeilles

Figure 12 : (a) Réponse en compression selon trois étapes d'une mousse élastomère ; (b) Etapes de déformations d'une structure nid d'abeilles.

1.3.1.1. L'élasticité linéaire

La région 1, de faible déformation (<5%) est dite d'élasticité linéaire. D'après Gibson et Ashby (1997) [1], le mécanisme de déformation prédominant pour les cellules ouvertes est la flexion des arêtes. Quant aux mousses à cellules fermées, le mécanisme de déformation prédominant est la flexion des arêtes et l'étirement des parois (Figure 12.b-1). Les mousses

qu'elles soient isotropes ou anisotropes suivent généralement un comportement linéaire élastique aux faibles déformations. La réponse élastique linéaire représentée peut être caractérisée en utilisant deux paramètres élastiques : le module d'élasticité et le coefficient de Poisson [37].

1.3.1.2. Effondrement élastique et plastique

La région 2 est caractérisée par un plateau où les contraintes varient très peu. Pour des mousses à cellules ouvertes le plateau est constant alors que pour les cellules fermées la courbe n'est plus horizontale mais augmente légèrement (contribution du gaz emprisonné dans les cellules). Elle correspond au flambement élastique des parois dans le cas des mousses élastomères, à un affaissement plastique et une diminution initiale de la contrainte dans le cas des mousses élasto-plastiques et à un écrasement fragile dans le cas des mousses élastiques fragiles (Figure 12.b-2). Physiquement, l'effondrement des mousses est causé par la très grande compressibilité des parois des cellules. Le plateau de contrainte permet d'exercer de très grandes déformations pour une contrainte presque constante. Cette caractéristique est importante pour la conception d'applications de protection et de rembourrage. Lors d'un choc ou d'un impact, la région du plateau offre une protection en absorbant l'énergie cinétique sans transmettre de contraintes et d'accélération élevées. En application automobile, les mousses adoptées pour les sièges fournissent un bon amortissement des vibrations et permettent de contribuer à un confort de roulements.

1.3.1.3. Densification

La région 3 correspond à la densification de la structure (Figure 12.b-3). Quand la contrainte est importante, les parois opposées des cellules rentrent en contact. L'augmentation de la densité relative de la mousse augmente le module de Young et le plateau de contrainte. La structure initialement poreuse tend alors vers un matériau dense lui-même compressé. La cinétique de déformation devient plus lente quand la phase de densification débute.

1.3.1.4. Effet du gaz dans les cellules

Ici la taille des cellules influence fortement les propriétés d'écoulement de l'air. Quand une mousse à cellules ouvertes est comprimée, l'air qu'elle contient est expulsé. La viscosité de l'air génère un travail avec l'écoulement de l'air dans les cellules interconnectées de la mousse. L'écoulement de l'air est alors fortement dépendant de la vitesse de déformation. Gent et Rusch en 1966 [38], puis Hilyard et Collier en 1987 [39] ont relié le changement de pression Δp à travers une mousse de longueur L à la vitesse d'écoulement V_{ec} :

$$\frac{\Delta p}{L} = \frac{\eta_{air}}{K_m} V_{ec} + \frac{\rho}{B} V_{ec} \quad (\text{eq. 1.7})$$

où η_{air} est la viscosité de l'air, ρ sa densité. K_m la perméabilité de la mousse et B le coefficient d'inertie d'écoulement. Ils ont montré l'influence de la vitesse de déformation sur

l'écoulement de l'air. On peut citer en particulier les travaux de Mills et al. (2002) qui ont étudié la résistance à l'écoulement de l'air de mousses en polyuréthane (PU) ainsi que la réponse aux chocs en compression [40]. Grâce à la méthode des éléments finis, ils ont montré les effets de la vitesse de déformation sur la perméabilité de la mousse et l'influence de l'écoulement de l'air sur le comportement mécanique en simulant un impact à grande vitesse ($>3\text{m/s}$) de blocs de mousses de diamètre supérieur à 0.5m. D'autres études adoptant la mécanique des fluides numériques ont aussi permis de montrer la corrélation entre la perméabilité de la mousse et les distributions de taille de cellules et de trous dans les parois [41].

Concernant les mousses à cellules fermées, Skochdopole et Ruben en 1965 [42] ont proposé un modèle dans lequel l'air emprisonné dans les cellules et la structure du matériau solide agissent en parallèle lorsque la mousse est comprimée puisque le gaz et le polymère subissent la même compression. Ainsi le modèle ajoute la contrainte due à la structure du polymère σ_p à la contrainte σ_g générée par la compression de l'air dans les cellules. Rusch (1970) a exprimé σ_g en fonction de la pression atmosphérique P_a (en supposant le gaz dans les cellules à la pression atmosphérique à l'état initial non déformé), de la déformation subie ε , de la fraction de cellules fermées f et de la densité relative ρ_m de la mousse [27] :

$$\sigma_g = \frac{P_a \varepsilon f}{1 - \varepsilon - \rho_m} \quad (\text{eq. 1.8})$$

Son modèle suppose cependant une compression du gaz isotherme et pas de déformation latérale de la mousse. L'effet du gaz dans les cellules est souvent négligé dans les modèles théoriques d'étude du comportement mécanique. A défaut une analyse élément finis est souvent adoptée pour décrire l'influence du gaz dans les cellules fermées. La phase gazeuse est alors modélisée intégralement et indépendamment de la phase solide.

1.3.1.5. Viscosité et vitesse de déformation

La plupart des mousses polymères montre un certain degré de comportement viscoélastique. Une mousse viscoélastique combine un comportement mécanique visqueux et élastique. Elle présente une réponse d'hystérésis lors de déchargements comme le montre la Figure 13. La courbe contrainte-déformation en déchargement, plus basse, indique une énergie absorbée durant le cycle de chargement-déchargement. La réponse viscoélastique peut être linéaire ou non - linéaire. La réponse viscoélastique linéaire peut être modélisée en utilisant des équations linéaires avec une analyse mécanique basée sur des ressorts linéaires et des amortisseurs visqueux newtoniens. D'autres facteurs comme la vitesse de déformation peuvent aussi affecter le comportement mécanique des mousses. Celle-ci peut avoir d'importants effets sur la réponse en contrainte-déformation. Elle est principalement attribuable à la nature viscoélastique du constituant du matériau. Pour des tests de compression uni axiales, Song et al. [43] ont montré, la contrainte à la rupture augmente linéairement avec le logarithme de la vitesse de déformation.

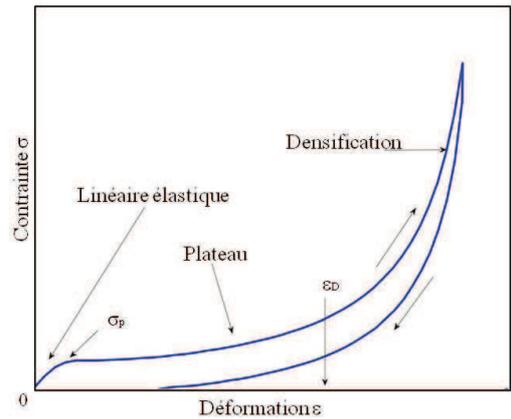


Figure 13 : Chargement et déchargement viscoélastique

1.3.1.6. Impact de l'anisotropie

Comme indiqué précédemment, la plupart des procédés de moussage engendrent un allongement des cellules dans la direction d'extrusion. Le comportement contrainte-déformation est alors une fonction de la direction de la contrainte appliquée. La Figure 14 donne l'allure des courbes contrainte-déformation en compression pour une mousse transversalement isotrope en fonction des directions de chargement. De tels matériaux nécessitent plus de paramètres élastiques pour décrire leurs réponses mécaniques que pour les matériaux isotropes. Les matériaux avec une isotropie transversale ont cinq constantes élastiques indépendantes en régime élastique linéaire : deux coefficients de Poisson, deux modules d'élasticité et un module de cisaillement. Par exemple le modèle transversalement isotrope linéaire a été utilisé par Isaac et Ori [44] pour modéliser le comportement des matériaux composites et Tagarielli et al. [45] ont proposé un modèle pour des matériaux plastiques transversalement isotropes.

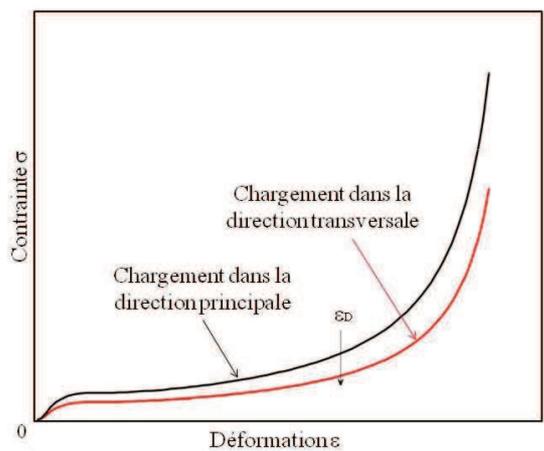


Figure 14 : Compression dans deux directions d'une mousse transversalement isotrope.

1.3.2. Comportement mécanique de modèles de structures régulières

De nombreuses équations empiriques ont été établies pour décrire les propriétés mécaniques des mousses avec plus ou moins de succès. Dans ces approches, le module de Young est fonction de la densité relative et d'autres paramètres géométriques. Les modèles irréguliers bien que plus représentatifs de la géométrie des structures réelles de mousse nécessitent généralement une analyse par éléments finis tandis que la plupart des études théoriques sur les mécanismes de déformations ont été développées à partir de modèles réguliers. Dans ce paragraphe nous étudions le comportement mécanique en compression de deux types de modèles de structures régulières les plus souvent observées : le modèle cubique et le modèle tétrakaidécaédrique. Pour chaque modèle le cas de mousses à cellules ouvertes ou fermées est spécialement étudié.

1.3.2.1. Modèle cubique

Le modèle cubique est le modèle régulier le plus simple pour paver l'espace. Ses 12 arêtes sont toutes identiques et se rejoignent sous le même angle de 90° . C'est donc tout naturellement qu'il a été adopté pour modéliser le comportement mécanique de structures cellulaires. Gent et Thomas (1959) [46] puis Gent et Rush (1966) [38] furent les premiers à construire un modèle cubique et à étudier le comportement mécanique en compression uniaxiale. Par la suite Gibson et Ashby ont développé et perfectionné ce modèle (Figure 15).

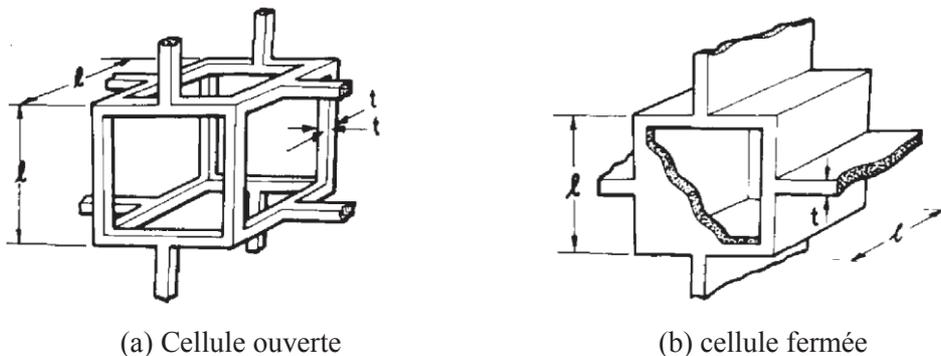


Figure 15 : Modèles cubiques proposés par Gibson and M. F. Ashby [1].

Mousse à cellules ouvertes

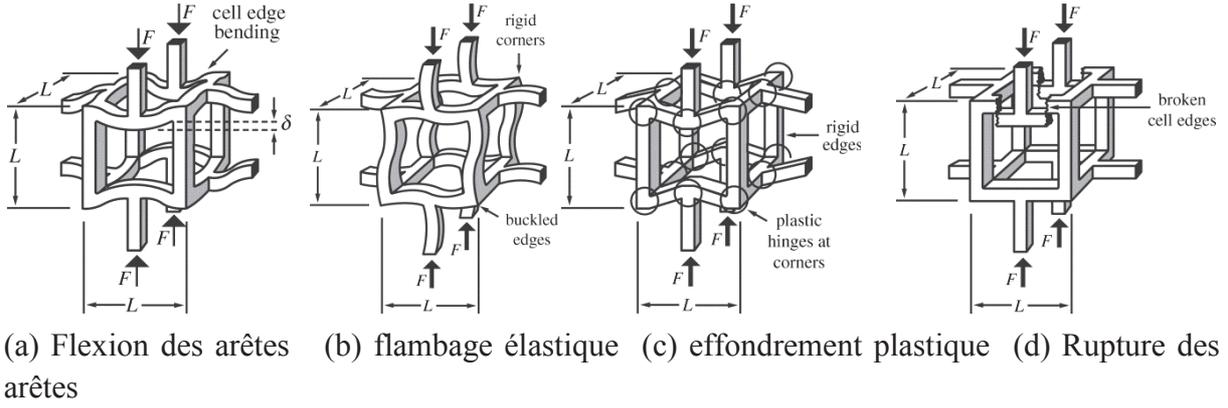


Figure 16 : Régimes de déformations du modèle cubique ouvert [Gibson and Ashby 1997]

En régime linéaire ils ont identifié la flexion des arêtes comme étant le principal mécanisme de déformation (Figure 16.a). Afin de déterminer le module de Young E_m , ils ont relié la densité de la mousse ρ_m et du matériau solide ρ_s aux caractéristiques géométriques du modèle de cellule élémentaire selon :

$$\frac{\rho_m}{\rho_s} \propto \left(\frac{t}{l}\right)^2 \quad (\text{eq. 1.9})$$

l est la longueur d'une arête et t la largeur d'un côté de la section (Figure 15.a). La contrainte globale σ est proportionnelle à $\frac{F}{l^2}$, où F est la charge en compression uni-axiale. La déflexion Δ des arêtes due à la flexion est proportionnelle à :

$$\Delta \propto \epsilon l \propto \frac{Fl^3}{E_s I} \quad (\text{eq. 1.10})$$

E_s est le module de Young du matériau solide dans les parois. I est le moment d'inertie des arêtes, proportionnel à t^4 . Le module de Young de la mousse est alors donné par :

$$E_m = \frac{\sigma}{\epsilon} \propto \frac{F/l^2}{Fl^2/E_s I} \propto \frac{1}{l^2} \frac{E_s t^4}{l^2} \quad (\text{eq. 1.11})$$

$$\frac{E_m}{E_s} = \alpha \frac{t^4}{l^4} \propto \left(\frac{\rho_m}{\rho_s}\right)^2 \quad (\text{eq. 1.12})$$

Enfin, le module de Young de la mousse à cellules ouvertes est donné par :

$$\frac{E_m}{E_s} = C_1 \left(\frac{\rho_m}{\rho_s}\right)^2 \quad (\text{eq. 1.13})$$

C_1 est un coefficient de proportionnalité permettant de corréler l'équation aux données expérimentales. En choisissant ce coefficient égal à 1, Gibson et Ashby (1988) ont pu déterminer les constantes élastiques du modèle cubique de mousse à cellules ouvertes. G_m est le module de cisaillement et V_m le coefficient de Poisson de la mousse.

$$\frac{E_m}{E_s} = \left(\frac{\rho_m}{\rho_s}\right)^2 ; \frac{G_m}{E_s} = \frac{3}{8} \left(\frac{\rho_m}{\rho_s}\right)^2 ; V_m = 0.3 \quad (\text{eq. 1.14})$$

En régime non linéaire, Gibson et Ashby ont identifié trois types de déformations : l'effondrement élastique dû au flambage des arêtes (Figure 16.b), l'effondrement plastique dû à l'apparition de déformations plastiques aux jonctions des arêtes (Figure 16.c) et la rupture des arêtes (Figure 16.d). Ces mécanismes de déformations dépendent du type de mousse rencontrée.

Pour les mousses élastomère le régime non linéaire est caractérisé principalement par le flambement élastique des arêtes. La force critique au-delà de laquelle une arête flambe est donnée par la formule d'Euler :

$$F_{lim} = \frac{n\pi^2 E_s I}{l^2} \quad (\text{eq. 1.15})$$

l est la longueur de l'arête, E_s le module de Young et I le moment d'inertie. Et la contrainte limite de flambage σ_{el} au-delà de laquelle ce phénomène se produit est donnée par :

$$\sigma_{el} \propto \frac{F_{lim}}{l^2} \propto \frac{E_s I}{l^4} \quad (\text{eq. 1.16})$$

$$\frac{\sigma_{el}}{E_s} = 0.05 \left(\frac{\rho_m}{\rho_s} \right)^2 \quad (\text{eq. 1.17})$$

En utilisant les équations (eq. 1.7) et (eq. 1.8), l'équation (eq. 1.15) donne la contrainte σ_{el} en fonction du module de Young E_s et des densités de la mousse ρ_m et du matériau ρ_s . Le coefficient de proportionnalité a été estimé à partir de données expérimentales à 0,05.

Les mousses faites de matériaux ductiles se déforment par la flexion plastique des arêtes. Pour une arête de section carrée de côté t , le moment de flexion plastique s'écrit :

$$M_{pl} \approx \sigma_{ys} t^3 \quad (\text{eq. 1.18})$$

σ_{ys} est la contrainte à la limite élastique de la matière solide dont la mousse est constituée. De plus la force F s'applique normalement à l'arête de longueur l et exerce un moment de flexion maximum proportionnel à Fl .

$$M_{pl} \approx F.l \quad (\text{eq. 1.19})$$

Ainsi la contrainte d'effondrement plastique σ_{pl} est donnée par :

$$\sigma_{pl} \approx \frac{F_{pl}}{l^2} \approx \frac{M_{pl}}{l^3} \approx \frac{\sigma_{ys} t^3}{l^3} \quad (\text{eq. 1.20})$$

$$\frac{\sigma_{pl}}{\sigma_{ys}} = 0.3 \left(\frac{\rho_m}{\rho_s} \right)^{3/2} \quad (\text{eq. 1.21})$$

Le coefficient de proportionnalité est estimé à 0,3. Des améliorations du modèle sont possibles mais n'ont pas une influence significative sur le résultat (eq. 1.22).

$$\frac{\sigma_{pl}}{\sigma_{ys}} = C1 \left(\frac{\rho_m}{\rho_s} \right)^{3/2} \left(1 + \left(\frac{\rho_m}{\rho_s} \right)^{1/2} \right) \quad (\text{eq. 1.22})$$

Enfin les mousses élastiques fragiles se déforment par la rupture successive des bords des cellules (eq. 1.23). σ_{MOR} représente la contrainte à la rupture d'une arête et le coefficient de proportionnalité vaut 0,65 [47].

$$\frac{\sigma_{pl}}{\sigma_{MOR}} = 0.65 \left(\frac{\rho_m}{\rho_s} \right)^{3/2} \quad (\text{eq. 1.23})$$

Mousse à cellules fermées

Dans le modèle cubique fermé, 6 faces sont jointes sur les 12 arêtes de la cellule (Figure 15.b). Gibson et Ashby ont modélisé le comportement de la cellule fermée en combinant les différents modes de déformation des arêtes et des faces pondérées par leurs proportions dans la cellule. Les principaux mécanismes de déformations en régime linéaire sont la flexion, le flambage des arêtes et l'étirement des faces dans la direction transversale à la charge uni axiale. Ils ont obtenu ainsi l'expression du module de Young E_s de la mousse:

$$\frac{E_m}{E_s} = C_1 \Phi^2 \left(\frac{\rho_m}{\rho_s} \right)^2 + C_2 (1 - \Phi) \left(\frac{\rho_m}{\rho_s} \right) + \frac{p_0(1-2V_f)}{(1-\rho_m/\rho_s)} \quad (\text{eq. 1.24})$$

Φ est la fraction solide des arêtes dans la cellule et $1 - \Phi$ la proportion de faces dans la masse. C_1 et C_2 sont les coefficients de proportionnalité estimés à partir de données expérimentales. Le troisième terme rend compte des effets de la compression du gaz à l'intérieur des cellules, en supposant une pression initiale p_0 . V_f est le coefficient de Poisson de la mousse. Ce terme de pression peut souvent être négligé.

En régime non linéaire, Gibson et Ashby (1997) ont exprimé l'effondrement plastique de la mousse en fonction de la densité relative. Les mécanismes de déformations sont principalement l'apparition d'effondrements plastiques dans les jonctions des arêtes et l'étirement des faces dans la direction transversale à la charge uniaxiale. La contrainte d'effondrement plastique de la mousse est alors donnée par l'équation (eq. 1.25), avec les coefficients de proportionnalité déjà déterminés.

$$\frac{\sigma_{pl}}{\sigma_{y,s}} = 0.3 \left(\Phi \frac{\rho_m}{\rho_s} \right)^{3/2} + 0.4(1 - \Phi) \left(\frac{\rho_m}{\rho_s} \right) + \frac{p_0 - p_{atm}}{\sigma_{y,s}} \quad (\text{eq. 1.25})$$

1.3.2.2. Modèle tétrakaidécaédrique

La structure tétrakaidécaédrique est beaucoup plus réaliste dans la modélisation de structures de mousses à faible densité. Elle est composée de 14 faces dont 6 faces carrées et 8 faces hexagonales (1.2.2 Modèles de structures régulières, Figure 17).

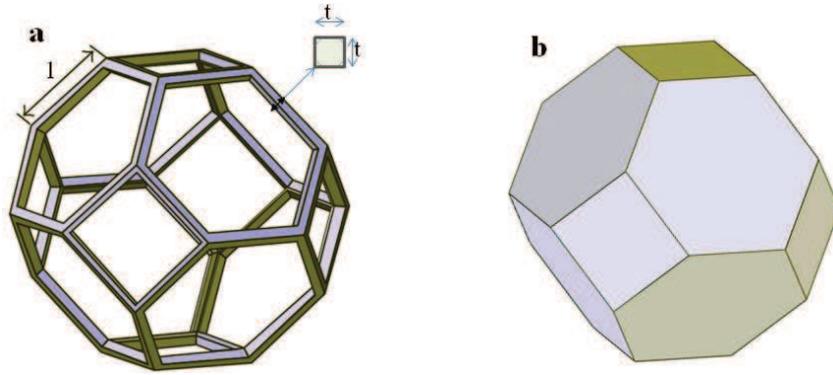


Figure 17 : Modèle tétrakaidécaédrique : (a) cellule ouverte : (b) cellule fermée

Mousses à cellules ouvertes

Dementijev et Tarakanov [48] sont parmi les premiers à avoir étudié le comportement élastique de structures tétrakaidécaédriques à cellules ouvertes. Zhu et al [49] et Warren et Kraynik [28] ont estimé les propriétés mécaniques pour le modèle tétrakaidécaédrique à cellules ouvertes. Dans tous ces modèles le choix de la forme de la section d'une arête de la cellule est très important dans la détermination de la fraction solide et donc du comportement mécanique. En effet, le matériau solide dans les mousses à faible densité peut être considéré comme étant distribué entre trois types de géométrie : les parois (faces), les barres (arêtes) et les sommets. La phase solide est alors supposée se concentrer dans les parois et les barres pour les mousses à cellules fermées, et dans les barres (arêtes) pour les mousses à cellules ouvertes. Zhu et al. ont déterminé le module de Young et le coefficient de Poisson :

$$\frac{E_m}{E_s} = \frac{2}{3} C_z \left(\frac{\rho_m}{\rho_s} \right)^2 \left(1 + C_z \frac{\rho_m}{\rho_s} \right)^{-1} \quad (\text{eq. 1.26})$$

$$V_{dir} = \frac{1}{2} \left(\frac{1 - C_z (\rho_m / \rho_s)}{1 + C_z (\rho_m / \rho_s)} \right) \quad (\text{eq. 1.27})$$

$$C_z = 8 \sqrt{\frac{2I}{A^2}} \quad (\text{eq. 1.28})$$

C_z dépend de l'aire A de la section constante de la cellule et de son moment quadratique I . Pour des sections d'arêtes triangulaires équilatérales C_z vaut 1.09 (Zhu et al. 1997). Pour des poutres cylindriques $C_z = 0.900$. V_{dir} est le coefficient de Poisson dépendant de l'orientation des cellules.

Mousses à cellules fermées

Il y a pas eu beaucoup d'études théoriques concernant le modèle tétrakaidécaédrique à cellules fermées. Ce modèle composé de 8 surfaces hexagonales non planes et 6 surfaces planes quadrangulaires est plus complexe et a contraint la plupart des études à une analyse par éléments finis. Ici aussi la fraction solide Φ est le paramètre important influant sur les propriétés mécaniques. On peut citer en particulier les travaux de Simone et Gibson (1998) [50] qui ont d'abord déterminé la valeur de la fraction solide pour une cellule

tétrakaidécaédrique avec une longueur d'arête l et une épaisseur uniforme t (Figure 17 : Modèle tétrakaidécaédrique : (a) cellule ouverte : (b) cellule fermée.a):

$$\Phi = \frac{3}{11.31} \frac{t^2}{l^2} \frac{\rho_m}{\rho_s} \left(\frac{1}{1.932} + \sqrt{\frac{3}{2}} \right) \left(\frac{\rho_m}{\rho_s} \right)^{-1} \quad (\text{eq. 1.29})$$

Ils ont ensuite donné le module de Young en adoptant une équation similaire à celle de Gibson et Ashby sur les mousses cubiques à cellules fermées :

$$\frac{E_m}{E_s} = 0.2089 \left(\Phi \frac{\rho_m}{\rho_s} \right)^2 + 0.3159(1 - \Phi) \left(\frac{\rho_m}{\rho_s} \right) \quad (\text{eq. 1.30})$$

Dans leur modèle, la déformation des faces prime devant celle des arêtes.

En régime non linéaire ils ont décrit l'effondrement plastique des cellules constituées uniquement de faces :

$$\frac{\sigma_{pl}}{\sigma_{y,s}} = 0.3211 \left(\Phi \frac{\rho_m}{\rho_s} \right)^{3/2} + 0.4459(1 - \Phi) \left(\frac{\rho_m}{\rho_s} \right) \quad (\text{eq. 1.31})$$

1.4. Conclusion

Cette étude bibliographique met en revue les caractéristiques des mousses polymères allant du processus de moussage à l'obtention de la structure cellulaire finale ainsi que la relation entre leurs morphologies et leurs propriétés mécaniques. Leur comportement mécanique macroscopique dépend étroitement du comportement intrinsèque du matériau solide dont elles sont faites et de la morphologie de leur microstructure. En outre, il y a beaucoup de conditions externes qui peuvent influencer le comportement du matériau d'une mousse, comme la température et la pression.

L'échelle de la microstructure considérée est d'une importance fondamentale dans l'étude du comportement local et/ou global des mousses. Les propriétés du matériau solide de la mousse à l'échelle microscopique, la distribution de la taille des cellules, leur forme et leur répartition spatiale à l'échelle mésoscopique ainsi que la densité relative à l'échelle microscopique sont autant de caractéristiques déterminants dans la description de la morphologie de la microstructure. Plusieurs types de mécanismes de déformation comme la flexion, la compression, la traction élastique des arêtes et des parois mais aussi des phénomènes d'instabilité élastique et plastique ont pu être observés à l'échelle mésoscopique. Les études théoriques du comportement mécanique de matériaux cellulaires référencées ont démontré l'importance de paramètres tels que la densité relative ou les propriétés du matériau constitutif mais elles concernent principalement des modèles réguliers qui ne rendent pas compte des hétérogénéités dans les déformations dues à la géométrie intrinsèque de la microstructure. En particulier les modèles de structures régulières comme ceux de Gibson et d'Ashby donnent le module d'Young uniquement en fonction de la densité relative et/ou de la fraction solide mais

ne prévoient aucune influence des autres caractéristiques citées. Et de manière générale, il y a assez peu d'études reportant le comportement mécanique de mousses en fonction de la distribution de taille des cellules ou de leur répartition spatiale, indépendamment de la porosité.

L'objectif de cette thèse est de découpler et d'analyser les effets de chacun de ces paramètres sur les propriétés mécaniques. Notre stratégie de modélisation est la combinaison d'une description plus fidèle et plus réaliste de la structure des matériaux cellulaires en créant des modèles reconstruits à partir d'observations 2D et 3D d'échantillons de mousses via l'utilisation la microscopie électronique à balayage ou de la micro-tomographie X sur synchrotron pour ensuite déboucher sur des simulations numériques par éléments finis. Toutefois, ces analyses se font sur des structures figées. Ainsi, pour étudier l'influence de la dispersion et de la distribution de taille et de forme des cellules indépendamment de la porosité, un générateur paramétrable de microstructures 2D et 3D aléatoires est élaboré. Ce générateur de microstructure repose sur une description et une mise en équation de la thermophysique du processus de fabrication de mousses polymères. L'apport des modèles reconstruits 2D et 3D et des modèles générés nous permet de rendre compte des divers mécanismes liés aux comportements mécaniques des mousses polymères au niveau local et global.

2.Chapitre 2: Caractérisations expérimentales

Ce deuxième chapitre concerne la caractérisation expérimentale du comportement mécanique de mousses de différentes natures polymériques et de différentes topologies. Elle est subdivisée en deux parties : la caractérisation mécanique et la caractérisation microstructurale. Des essais mécaniques sont d'abord réalisés sur plusieurs modèles de mousses polymères et sur les matériaux (solides) constitutifs de leurs parois. Cette caractérisation expérimentale des mousses servira pour la validation des analyses éléments finis présentées plus loin dans ce manuscrit. En outre, afin d'étudier les morphologies des microstructures de mousses, des observations au microscope électronique à balayage et en micro-tomographie X sont traitées et analysées donnant des statistiques de la distribution et de la répartition des cellules. Par ailleurs, une étude particulière est présentée pour l'analyse des déformations locales d'un échantillon de mousse en compression in situ en tomographie X.

La caractérisation expérimentale s'est portée principalement sur cinq natures de mousses différentes. Ces mousses fournies par l'entreprise INTEREP sont fabriquées à partir de différents matériaux polymères et sont obtenues sous différentes conditions de fabrication. Le choix varié de ces mousses a pour objectif d'étudier d'une part l'impact de différentes morphologies de microstructures pour un matériau constitutif globalement identique et d'autre part l'influence de différents paramètres « process » sur la morphologie de la mousse obtenue et sur son comportement mécanique. Les techniques expérimentales développées et utilisées durant ce travail sont décrites au début de chaque partie.

Pour des raisons de confidentialité les différentes mousses élastomères seront désignées par les lettres *A*, *B*, *C*, *D* et *E* qui présentent des densités que nous définirons respectivement par *a*, *b*, *c*, *d*, *e*, de la plus grande à la plus faible.

2.1. Caractérisation morphologique

Dans cette partie nous présentons d'abord quelques observations 2D de la microstructure des différentes natures de mousses étudiées pour mieux pouvoir identifier leur morphologie de structure. Ensuite nous abordons les essais mécaniques réalisés sur les échantillons de mousses mais aussi sur leur équivalent massif représentant fidèlement les matériaux constitutifs de leurs parois.

2.1.1. Microscopie électronique à balayage

Le microscope électronique (MEB) à balayage a été adopté pour observer finement la microstructure des mousses polymères en 2D. Nous avons eu l'opportunité d'utiliser le MEB de l'Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg (IPCMS).

2.1.1.1. Description du MEB

Le MEB utilise un faisceau focalisé d'électrons à haute énergie pour produire une image 2D de la surface d'un échantillon de matière. Les signaux qui découlent des interactions électrons-échantillon révèlent des informations sur l'échantillon dont la morphologie externe (texture), la composition chimique, la structure cristalline et l'orientation des matériaux constituant l'échantillon. La technique de détection la plus courante est la détection des électrons secondaires émis par les atomes excités par le faisceau d'électrons et renvoyés par l'échantillon. Le nombre d'électrons secondaires dépend de l'angle sous lequel le faisceau rencontre la surface et donc de la topographie de la structure. En balayant l'échantillon et en collectant les électrons secondaires par un détecteur spécial, une image 2D est générée. Les spécimens sont en général observés sous un vide plus ou moins poussé, en fonction de leur nature conductrice ou pas, et sur une large gamme de températures possibles. La zone d'observation généralement comprise entre 1cm à 5 microns de largeur est imagée avec un grossissement allant de 20X à 30,000X et une résolution spatiale de 50 à 100 nm [51], [52].

2.1.1.2. Observations des microstructures

Plusieurs types de mousses polymères, ou plus précisément de mousses élastomères à cellules fermées fournies par la société INTEREP ont été imagés au MEB. Il s'agit de mousses réalisées à partir de caoutchouc naturel et de styrène-butadiène (NR/SBR) pour les modèles types *A* et *B*, de butadiène-acrylonitrile (NBR) pour les modèles types *D* et *D4* ou encore d'éthylène-propylène-diène-monomère (EPDM) pour le modèle de type *C*. Ces mousses ont été soigneusement sélectionnées du fait de leurs caractéristiques très différentes, avec pour les mousses *A* et *B* une nature ferme, et de bonnes propriétés antivibratoires, pour les mousses *D/D4*, une excellente absorption des chocs même à basse température et enfin pour les mousses *C*, une excellente déformation rémanente.

Les échantillons des mousses ont été découpés minutieusement en fines parcelles d'environ 1cm³. Ci-dessous nous avons sommairement décrit les différentes morphologies de microstructures observées pour les différents types de mousses suivant trois échelles d'observation entre 10 et 100µm.

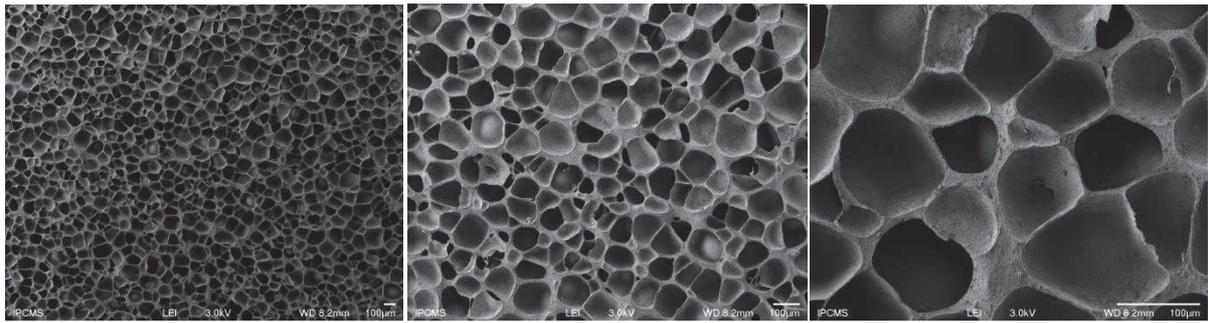


Figure 18 : Microstructure à différentes échelles de la mousse NR/SBR (*B*)

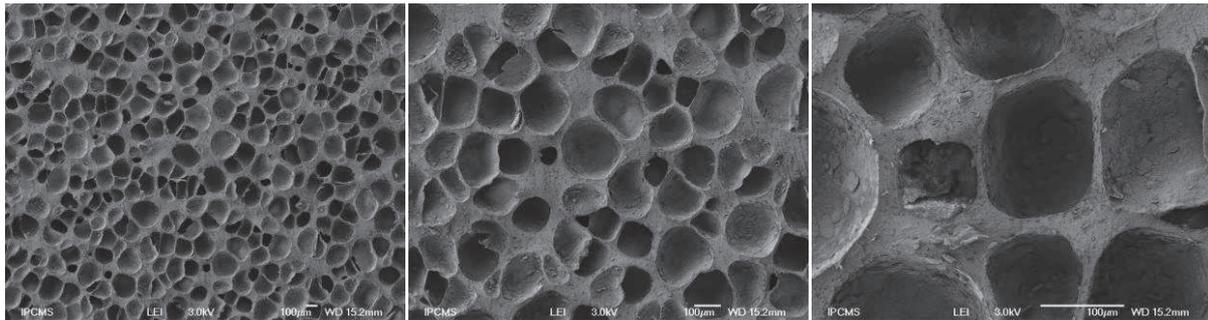


Figure 19 : Microstructure à différentes échelles de la mousse NR/SBR (*A*)

Les Figure 18 et 19 donnent des images MEB de la microstructure des mousses NR/SBR *A* et *B*. Ces deux mousses sont fabriquées à partir du même matériau polymère de base. La structure cellulaire de la mousse *B* est faite de parois très fines et de parois plus denses où la matière solide semble se concentrer. Les cellules adoptent une forme globale assez géométrique. La mousse *A* est issue du même processus de fabrication que la première citée mais avec une concentration en agent gonflant deux fois moins importante. On peut ainsi noter que le diamètre apparent des cellules est plus important pour la *A* que pour la *B*. La densité de cette mousse plus grande que celle du *B*. A l'échelle de la microstructure nous observons une taille moyenne de parois plus épaisse pour la mousse *A* que pour la mousse *B*. Les cellules adoptent aussi une forme globalement plus sphérique.

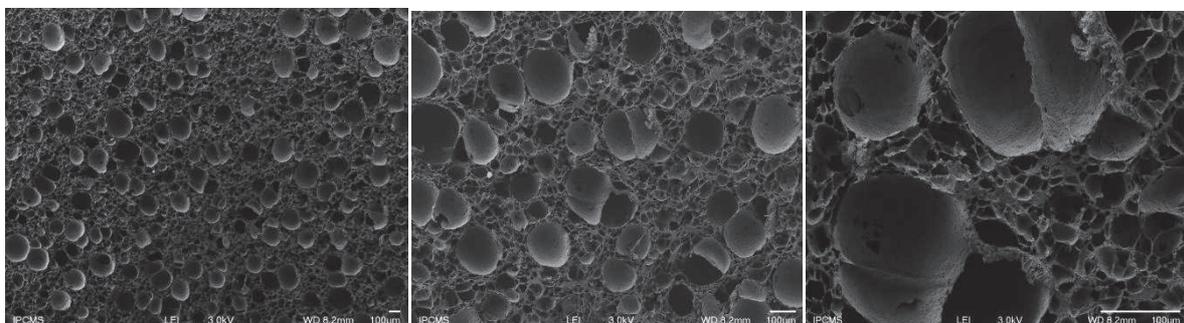


Figure 20 Microstructure à différentes échelles de la mousse *D4*

Les mousses *D4* (ou *D*) sont élaborées avec un copolymère non saturé, le styrène-butadiène (SBR) ou un copolymère de butadiène et d'acrylonitrile (NBR). Ce copolymère est très utilisé dans la fabrication des pneumatiques et possède une grande résistance à l'abrasion, au vieillissement et à l'ozone [53]. Nous observons deux échelles de microstructures. D'abord une microstructure relativement homogène (Figure 20.a) pour une observation à une échelle de 100 μm . Les cellules sont uniformément réparties dans la matrice et se présentent sous des formes quasi polyédriques aux dimensions assez semblables. L'utilisation d'un plus fort grossissement fait apparaître des trous aux niveaux des parois. Au vu de ces observations, il est évident que la microstructure de cette mousse présente un caractère très complexe et qu'une schématisation (simplification) de cette microstructure via l'utilisation de formes géométriques classiques reste un problème entier. Il serait par conséquent difficile d'interpréter son comportement mécanique à partir d'une modélisation de type cellule cubique [1], de type Voronoï [54], ou encore basée sur une forme tétrakaidécaédrale.

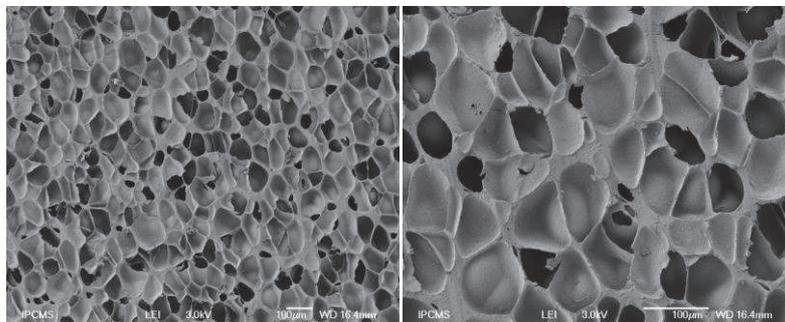


Figure 21 : Microstructure à différentes échelles de la mousse NBR (*E*)

Cette mousse est aussi élaborée à partir du NBR. La structure finale obtenue est cependant différente des mousses précédentes. Il n'y a qu'une seule échelle de microstructure. Nous pouvons remarquer une certaine anisotropie dans la forme des cellules très étirée suivant la verticale. Cela se traduit par des comportements mécaniques différents suivant les directions de charges.

Ces différentes microstructures observées sont constituées de différents matériaux qui ont un impact considérable sur les propriétés mécaniques statiques et dynamiques des mousses. Il est alors très important de pouvoir isoler et obtenir des échantillons de matériaux constitutifs des parois afin de les caractériser.

2.1.2. Matériaux des parois

Le matériau solide dont une mousse est faite diffère généralement fortement du polymère constitutif de base. En effet, durant le processus de fabrication de la mousse, les conditions de température et de pression du système, les multiples réactions (chimiques) en chaînes entre le composant polymère et les autres réactifs (les charges, les agents de nucléation et les agents gonflants entre autres) ainsi que la phase de polymérisation et de réticulation du mélange durant la stabilisation changent intrinsèquement la nature et les propriétés de la matière de la

mousse finale obtenue [55]. Même dans le cadre des mousses métalliques une hétérogénéité apparaît lors du mélange de composants non réactifs, ou à partir des réactions chimiques qui surviennent après le mélange. Notamment, les propriétés du matériau des parois sont affectées par l'ajout de divers stabilisants, d'agents moussants et d'épaississants qui augmentent la viscosité. Il en ressort que le comportement global de la mousse est directement dépendant de la formation des phases individuelles et de leurs microstructures [56].

Les mesures mécaniques conventionnelles font obstacles lorsqu'elles doivent être réalisées sur les parois des cellules du fait de leurs petites dimensions, de leurs faibles capacités de résistance et des fléchissements possibles. Aussi, très peu d'études ont été menées dans la littérature visant à développer une méthodologie de caractérisation fiable du matériau des parois, à cause de la très grande difficulté à obtenir des échantillons sous forme massive.

On peut toutefois remarquer quelques études [57], [58] qui se sont intéressées à la détermination des propriétés mécaniques de parois de mousses par une technique de nanoindentation. On notera cependant que ces études se limitent à la détermination de la dureté et du module d'Young et qu'elles sont essentiellement menées sur des mousses de nature métalliques. En outre, elles sont possibles car l'épaisseur des parois est supérieure à la taille typique d'une indentation et elles ont nécessité une méthodologie particulière requérant l'utilisation de différentes géométries de pointes d'indenteur et des techniques de déconvolution statistiques. Ici, la nature polymérique de nos mousses engendre des difficultés supplémentaires et les tailles des parois sont incompatibles avec la mise en œuvre d'une telle technique de nanoindentation. A cela s'ajoute une difficulté à révéler les hétérogénéités de la microstructure, qui est bien plus aisée dans le cas des mousses métalliques par simple attaque chimique.

Grace à une collaboration étroite avec l'entreprise INTEREP, nous avons pu élaborer un processus de fabrication spécifique pour obtenir finalement les équivalents massifs des matériaux des mousses. Le processus retenu est proche de celui nécessaire à l'obtention d'une mousse à ceci prêt que les agents gonflants sont supprimés du mélange. Ainsi il peut y avoir une nucléation de cellules mais l'absence de dégagement gazeux annule toute expansion de la matrice. Pour les modèles de mousse étudiés, l'entreprise INTEREP utilise des agents gonflants exothermiques qui participent à la vulcanisation de l'élastomère. Il a donc fallu mener un réajustement des paramètres du procédé pour combler l'absence d'agents gonflants et obtenir une matière des parois semblable d'un point de vue taux de réticulation. Ce réajustement a été réalisé à partir d'études de rhéométrie au sein du laboratoire interne de l'entreprise. Au final, pour chaque modèle de mousse un nouveau processus de fabrication est élaboré pour donner un équivalent massif du matériau de la mousse (Figure 22).

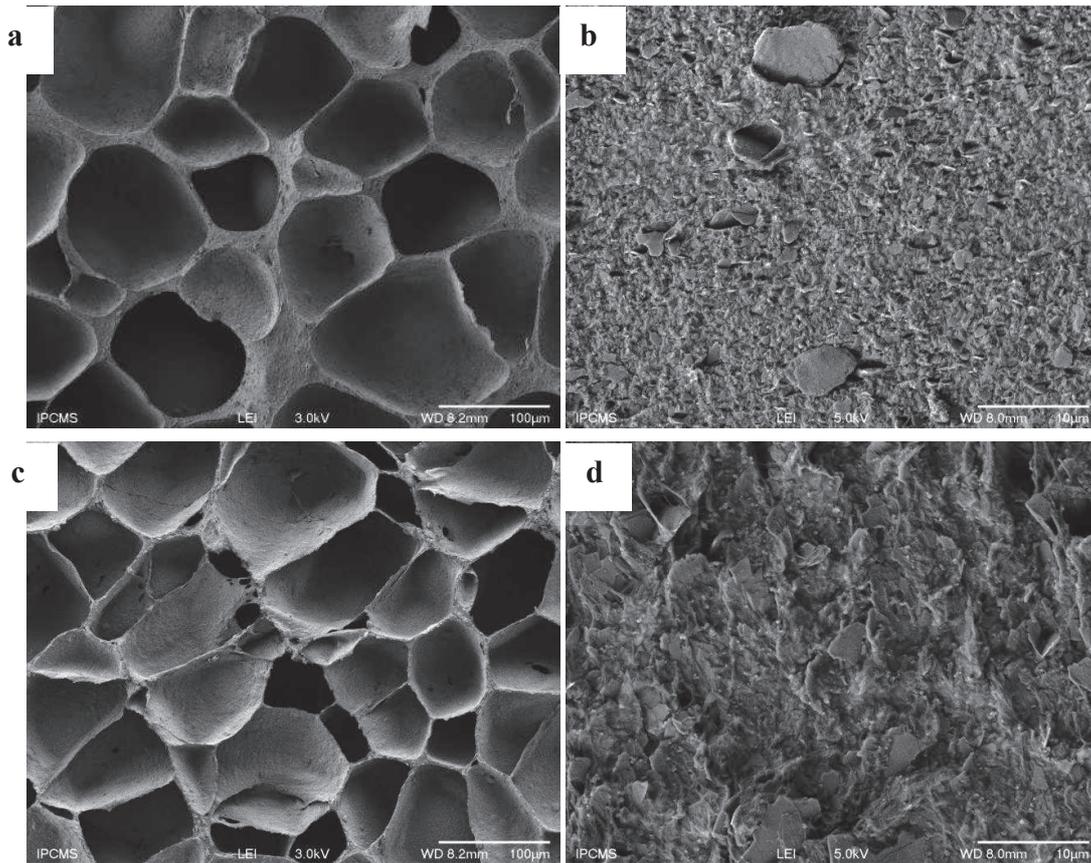


Figure 22 : Exemples de mousses avec les équivalents massifs des matériaux correspondants : (a) Mousse EPDM B, (b) Ebauche Matériau EPDM A et B, (c) Mousse C, (d) Ebauche Matériau C

2.1.3. Résultat expérimentaux

Nous avons réalisé des essais de traction, compression et cisaillement ainsi que des analyses mécaniques dynamiques sur des échantillons des mousses et sur les ébauches des matériaux constitutifs des parois.

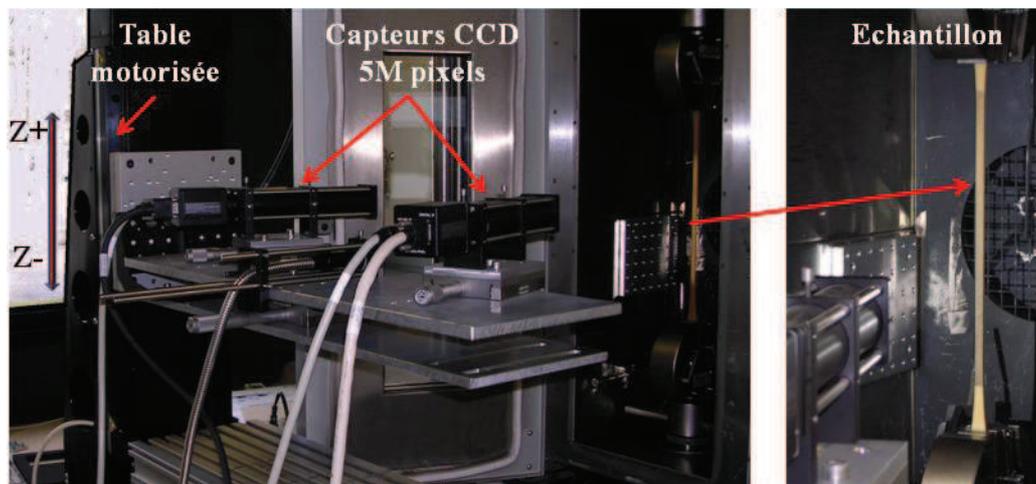


Figure 23 : Banc de test expérimental

2.1.3.1. Analyse des déformations par corrélation d'images digitales

La technique de corrélation d'images digitale est un excellent moyen pour mesurer les déplacements et par suite les déformations d'un échantillon soumis à une sollicitation. Simple de mise en œuvre, rapide et dotée d'une grande résolution spatiale, elle est de plus non intrusive et sans contact [59] [60].

Dans le cadre de notre étude, cette technique de mesure de champs de déformations s'est imposée tout naturellement car les déplacements des échantillons, qu'ils soient sous formes massives ou bien cellulaires sont, en général, très importants et les sollicitations imposées sont parfois multi-axiales. De plus, cette technique basée sur des calculs via l'utilisation d'un maillage de la surface présente des similitudes dans son mode de fonctionnement compatibles avec un maillage EF et offre une bonne base pour l'identification des propriétés matériaux en lien avec une simulation numérique EF

Dans son principe, une texture de surface un minimum contrastée est requise et doit permettre une distinction en niveaux gris de zones de l'ordre de quelques pixels à une centaine de pixels carrés. Cette texture peut être d'origine naturelle avec un contraste obtenu après révélation de la microstructure d'un matériau polycristallin, hétérogène ou multiphasé par exemple, ou bien ce contraste peut être d'origine artificielle avec l'utilisation d'un mouchetis de peinture par exemple. La distinction de ces zones permet un repérage de leurs positions à un instant t comparativement à un instant $t+dt$ et se faisant un vecteur déplacement peut leur être attribué entre deux états. Par dérivation, on peut alors remonter aux déformations locales. Dans notre étude, l'algorithme utilisé est celui implémenté dans le logiciel commercial de corrélation d'images digitales CorreliSTC, développé par le CRITT HOLO3 [61].

L'intérêt de la méthode réside aussi dans son efficacité à calculer des champs de déformations à une échelle très fine, à l'échelle de la microstructure. Pour ce faire, une grande résolution des moyens d'observation couplée à un fort grossissement de la surface à observer sont nécessaires. Les limites à cela sont liées à la qualité et à la grosseur de la texture, pour nous, le mouchetis. En effet, dans notre démarche, un point crucial pour une convergence des calculs de déplacements et de déformations à une échelle très fine à été l'utilisation d'un mouchetis de peinture suffisamment fin. Pour le dépôt de ce mouchetis, deux techniques ont été utilisées : la bombe de peinture en spray classique et l'aérogaphe monté avec des buses aux sorties micrométriques. Dans une perspective de développement d'une méthode d'identification inverse pour l'établissement des lois de comportement matériaux à partir de modèle EF, un post traitement Matlab a été développé de manière à suivre des seuils de déformation et de les localiser précisément sur les microstructures des matériaux testés. La Figure 24 montre par exemple le suivi de zones de déformation localisées du début du test de traction jusqu'à l'endommagement ou la rupture des parois. Si le mouchetis est bien appliqué et les conditions expérimentales optimales, cet outil peut permettre de mesurer

l'hétérogénéité des déformations dans la structure ou de prédire les lignes de fissures et de ruptures des parois de l'échantillon.

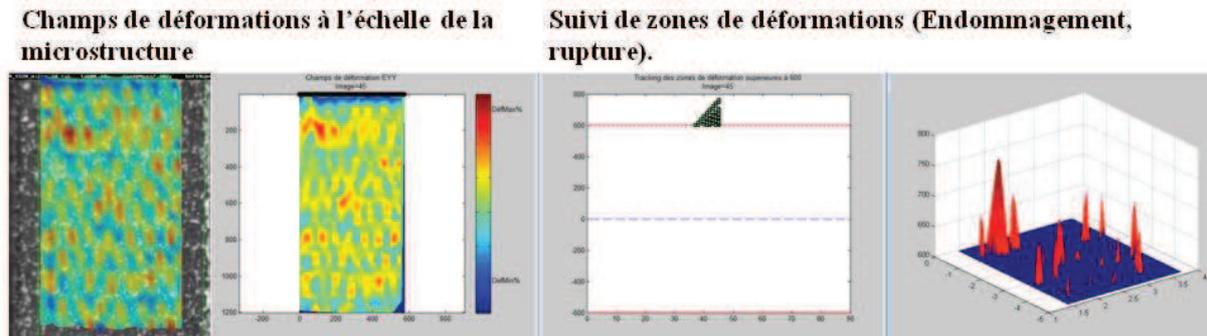


Figure 24 : Analyse des déformations par CID : Détection d'un seuil de déformation et suivi par rapport à la microstructure (gauche, détection – milieu, suivi de l'évolution des déf.– droite, lien sur la position)

Notre équipement se compose de deux caméras permettant une vision stéréoscopique de la surface (Figure 23). Ces caméras sont montées sur une table motorisée selon les trois dimensions de l'espace permettant un suivi des déformations sur une large gamme de déplacement, nécessaire pour l'étude des élastomères.. Le déplacement des caméras est régulé par la vitesse de déplacement de la traverse. La résolution maximale est de $2,4 \mu\text{m}/\text{pixel}$.

Dans la suite de ce chapitre des résultats d'essais de cisaillement et surtout de compression seront présentés. Sur les essais de compression la CID n'a pas été réalisée.

2.1.3.2. Compression uni axiale

Des essais de compression charge/décharge ont été réalisés sur les échantillons de mousse *A*, *B*, *C* et *D* ainsi que sur les ébauches des matériaux constitutifs correspondants. A titre comparatif, des essais de compression ont également été réalisés sur du caoutchouc naturel NR/SBR « pur », premier constituant des mousses *A* et *B*. Dans la littérature, les matériaux constitutifs des parois des mousses polymères ou métalliques sont très souvent supposés se comporter comme le polymère ou le métal constitutif de base. La difficulté expérimentale à tester directement le comportement mécanique des parois ou bien à les reproduire sous une forme massive peut expliquer cette tendance.

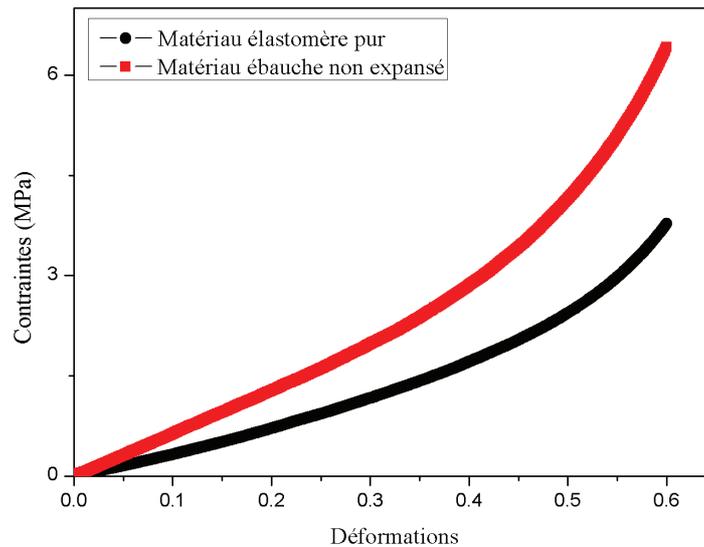


Figure 25 : Différences entre le matériau élastomère pur et le matériau ébauche non expansé

Notre démarche ici a été de mettre en évidence l'effet des autres constituants de la mousse sur le comportement effectif du matériau des parois. Par comparaison des courbes de compression de l'élastomère de base de la mousse *A / B* (NR/SBR) et de l'équivalent massif des parois, on peut nettement noter une différence (Figure 25). Cette comparaison met en exergue les limites des approximations réalisées : de toute évidence, les nombreux composés chimiques présents dans l'ébauche expansible participent à la transformation du polymère de base jusqu'à modifier son comportement mécanique. Une approximation du matériau des parois par son polymère de base entraînerait donc des erreurs. Les différences observées entre ces deux matériaux denses confirment toute l'importance d'inclure la nature et les vraies propriétés de la matière réelle de la mousse dans l'étude de son comportement mécanique.

La Figure 26 donne les courbes contrainte-déformation des échantillons de mousses en compression uni-axiale. La mousse *A* de plus grande densité que la mousse *B* présente une grande résistance. A 50% de déformation, elle supporte pratiquement deux fois plus de charges. De plus, elle est sensiblement plus viscoélastique. Les mousses *A* et *B* sont fabriquées à partir du même mélange polymère et du même procédé. Nous pouvons alors supposer que la différence de comportement provient essentiellement de la différence de morphologie entre les deux microstructures. Les mousses *C* et *D* sont nettement plus poreuses et sont donc moins résistantes, comme en atteste la figure suivante donnant les courbes contrainte-déformation des mousses *A, B, C* et *D*.

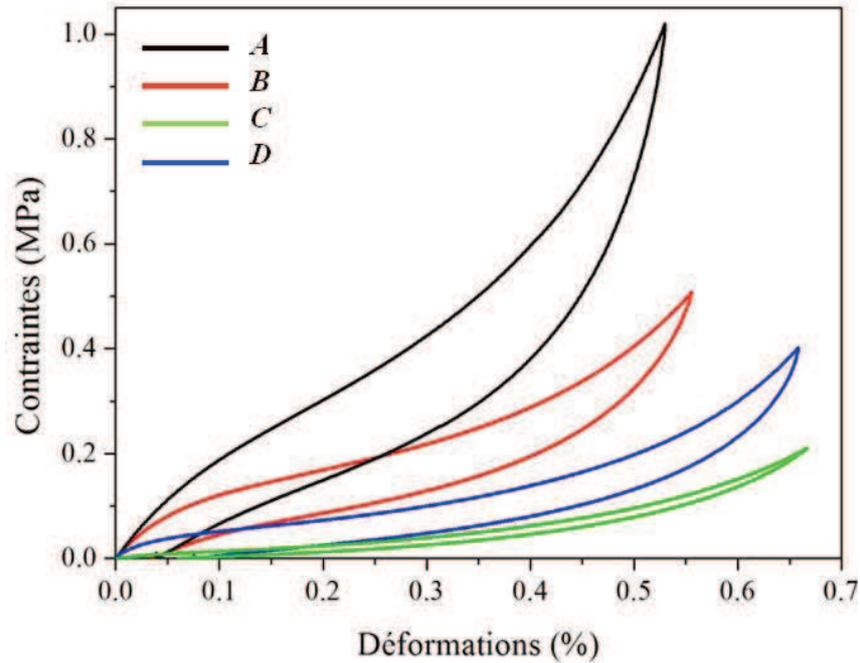


Figure 26 : Courbes contrainte-déformation de différentes mousses avec différentes porosités

2.1.3.3. Essais de Cisaillement

La réponse mécanique des mousses a été étudiée pour différents états des contraintes. En particulier, la réponse bi-axiale de ces matériaux a été analysée à partir d'une série d'essais allant de la traction simple au cisaillement pur en passant par plusieurs phases de traction-cisaillement. Pour ce faire, un montage Arcan spécifique a été dessiné et fabriqué (Figure 27). Ce montage est fortement inspiré de celui proposé par Arcan et al. (1978) pour l'étude de la fissuration bi-axiale de composites renforcés par des fibres unidirectionnelles. La figure 13 montre le montage expérimental. Celui-ci est composé de deux plaques trouées semi-circulaires avec des ouvertures (entailles) antisymétriques orientées à 45° et reliées à la traverse d'une machine de traction conventionnelle. Les désalignements et toute rotation sont empêchés via un guidage avec des arrêts en rotation. Cette configuration est nécessaire pour prévenir les risques de déplacements hors-plans.

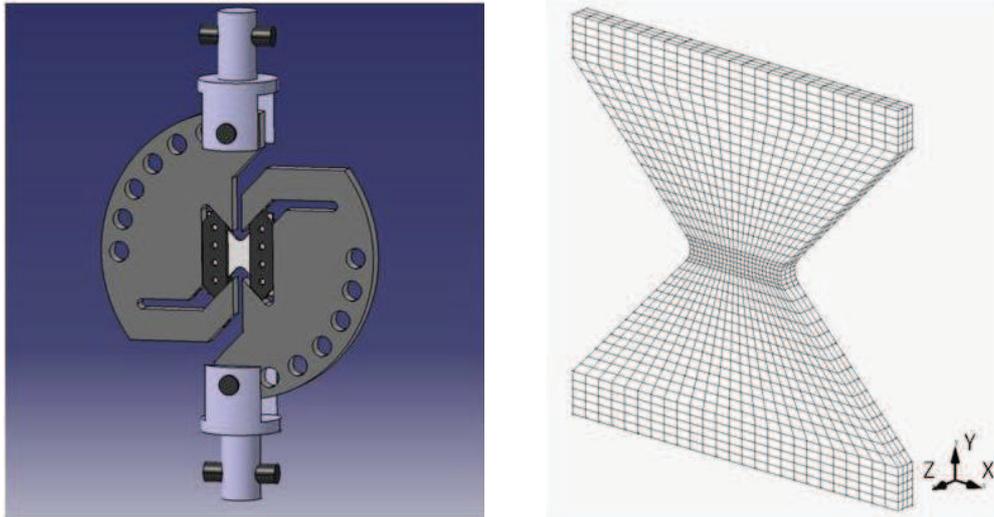


Figure 27 : Montage Arcan et éprouvette papillon associée (géométrie et maillage)

Pour les essais bi-axiaux, des éprouvettes en forme de papillon ont été préparées. La forme de ces éprouvettes est donnée par la Figure 28. Les paramètres géométriques ont été choisis dans le but de garantir un état des contraintes et des déformations uniformes dans la partie centrale de l'éprouvette, au moins jusqu'à l'apparition des instabilités « plastiques ». Pour assurer un état de contraintes planes, l'épaisseur de la partie centrale est de quelques millimètres.

Du fait de la forme de l'éprouvette, les contraintes et les déformations moyennes sont différentes de celles réellement impliqués dans la zone centrale. Des mesures locales des champs de déplacements et ensuite des calculs de champs de déformations, via l'utilisation de mesures par corrélation d'images digitales sont indispensables. Pour cela, une texture artificielle a été générée à l'aide d'un mouchetis de peinture obtenu à la bombe.

Nous avons développé et réalisé un montage spécial pour tester le comportement mécanique de nos mousses en cisaillement. Ce montage ARCAN permet différents positions de 0 à 90° (Figure 28). Un mouchetis est appliqué sur chaque éprouvette à tester et la corrélation d'images digitale est adoptée pour mesurer les champs de déformations.

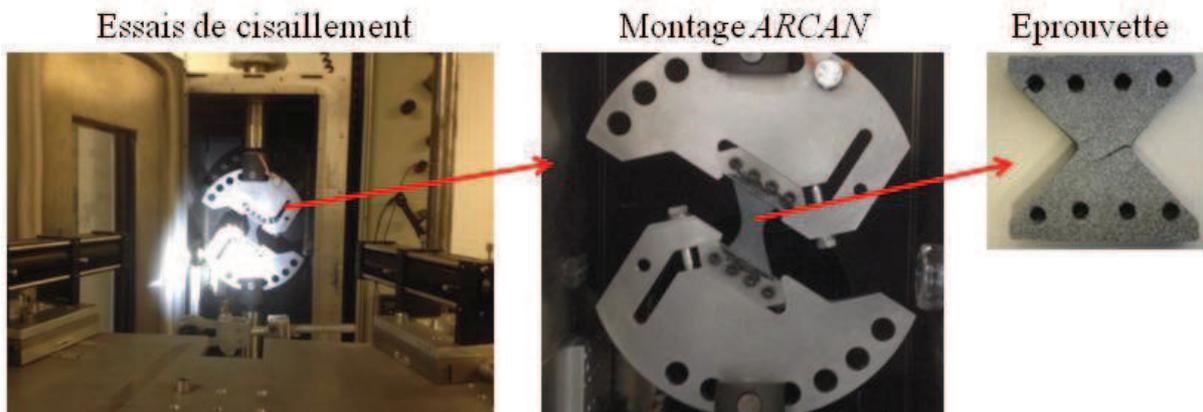


Figure 28 : Banc de test essais de cisaillement

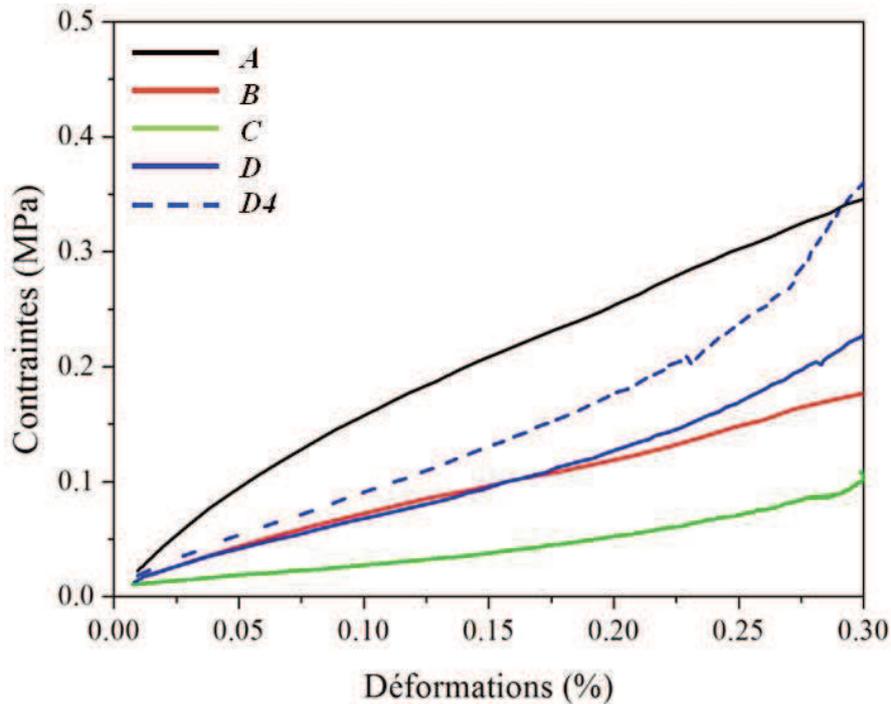


Figure 29 : Courbes de contrainte-déformation de mousses en cisaillement ($\alpha=90^\circ$)

La Figure 29 donne les courbes contrainte-déformation des échantillons de mousses en cisaillement. Ici la résistance ne diminue pas forcément en fonction de la porosité. Il semblerait qu'à partir de 20% de déformation, le comportement de la mousse *D* et *D4* (de même nature) devienne plus raide. Ce phénomène peut être lié à un effet de la géométrie de l'éprouvette combinée au caractère souple de notre matériau. La mousse *D* est plus poreuse que la mousse *B*, cependant celle-ci est significativement plus résistante dès 20% de déformation. Une explication peut être donnée par le degré d'anisotropie dans la structure suivant certains axes de déformations. En effet comme vu précédemment dans le premier chapitre, l'anisotropie influe fortement sur le comportement mécanique des mousses en fonction des directions de charges. Ainsi la mousse *B* serait plus anisotrope que les autres mousses testées. Un moyen de mesurer cette anisotropie est d'effectuer une analyse statistique de la distribution de la forme des cellules ainsi que de la répartition spatiale de leur centre (voir le paragraphe Caractérisation en 3D).

2.1.3.4. Analyse mécanique dynamique

Au regard de la Figure 26, il est difficile d'établir précisément le module d'Young pour les différentes mousses, les parties linéaires étant très réduites. Nous avons donc eu recours à l'analyse mécanique dynamique. Cette technique d'analyse permet d'étudier la réponse mécanique d'un matériau viscoélastique soumis à une sollicitation dynamique en fonction de la température et de la fréquence. Elle est réalisée à un très faible niveau de contrainte ou de déformation de façon à rester dans le domaine élastique (linéaire) du matériau.

Lors de la mesure dynamique une sollicitation (contrainte ou déformation) sinusoïdale est imposée à une fréquence f , et peut s'écrire sous la forme :

$$s(t) = s_o \sin(\omega t) \quad (\text{eq. 2.1})$$

Avec s_o l'amplitude de la sollicitation et $\omega=2\pi f$ la pulsation en rad/sec. Le signal de réponse du matériau viscoélastique est déphasé (car ce dernier dissipe une partie de l'énergie en se déformant) soit :

$$R(t) = R_o \sin(\omega t + \delta) \quad (\text{eq. 2.2})$$

Avec R_o l'amplitude et δ le déphasage.

Dans notre étude, un déplacement est imposé, on mesure la force (donc la contrainte σ), ainsi que la déformation (ε). Ces deux grandeurs sont reliées par une relation du type :

$$\sigma^* = E^* \varepsilon^* \quad (\text{eq. 2.3})$$

avec E^* module complexe tel que :

$$E^* = E' + iE'' \quad (\text{eq. 2.4})$$

Il représente la somme vectorielle d'une composante élastique (en phase avec la contrainte) et d'une composante d'amortissement visqueux soit : $E^* = E'(1 + i \tan \delta)$ avec $\tan \delta = \frac{E''}{E'}$. Ce terme est dénommé facteur de perte, il représente une mesure du rapport de l'énergie dissipée par amortissement à l'énergie élastique conservée puis restituée durant un cycle de déformation sinusoïdale. D'une manière générale, la température de transition vitreuse correspond à la température pour laquelle la valeur de ce facteur de perte est maximale.

Pour nos études, des éprouvettes cylindriques respectant un rapport de hauteur sur diamètre d'au moins deux sont utilisées. Les essais sont effectués à des températures allant de -60°C à 90°C . Pour rester dans le domaine élastique, les sollicitations de type traction-compression ne dépassent pas 1% de déformation.

Les variations du module élastique et du facteur de perte, sur la gamme de température étudiée, sont représentées sur la Figure 30 pour la mousse D , $D4$, A et B . Pour les mousses D et $D4$ de même nature mais de topologie différente, on peut remarquer un comportement vitreux entre -60°C et -20°C , où le module élastique est constant et présente une valeur importante ($>100\text{MPa}$). A partir de 0°C , on observe un écroulement important du module élastique. Un maximum situé à 10°C pour la tangente δ indique la passage de la transition vitreuse. Cette simple analyse dynamique est riche en information, puisqu'elle montre qu'à même densité et même nature de matériau des parois, nous avons le même module d'élasticité, confirmant ainsi la théorie d'Ashby [1] selon laquelle, le module élastique, serait indépendant de la topologie de la mousse. De plus, le caractère absorbant des chocs, constaté avec cette mousse est vraisemblablement lié, en partie du moins, à la présence d'une T_g proche de la température ambiante.

Pour les mousses *A* et *B*, beaucoup plus élastomériques et présentant un caractère rebondissant, l'inflexion de la courbe de E' et la courbure de la tangente δ aux alentours de -60°C semble annoncer une T_g proche, voir en deçà de cette température. Là encore, cette température de T_g , peut en partie expliquer le caractère rebondissant de ces mousses. Aussi, la mousse *A* fabriquée à partir de la même nature d'ébauche expansible que la mousse *B* mais avec deux fois moins d'agents gonflants présente une densité globalement deux fois plus importante, ce qui se traduit par un module élastique supérieur sur toute la gamme de température testée. Ces données sont en accord avec la théorie d'Ashby [1].

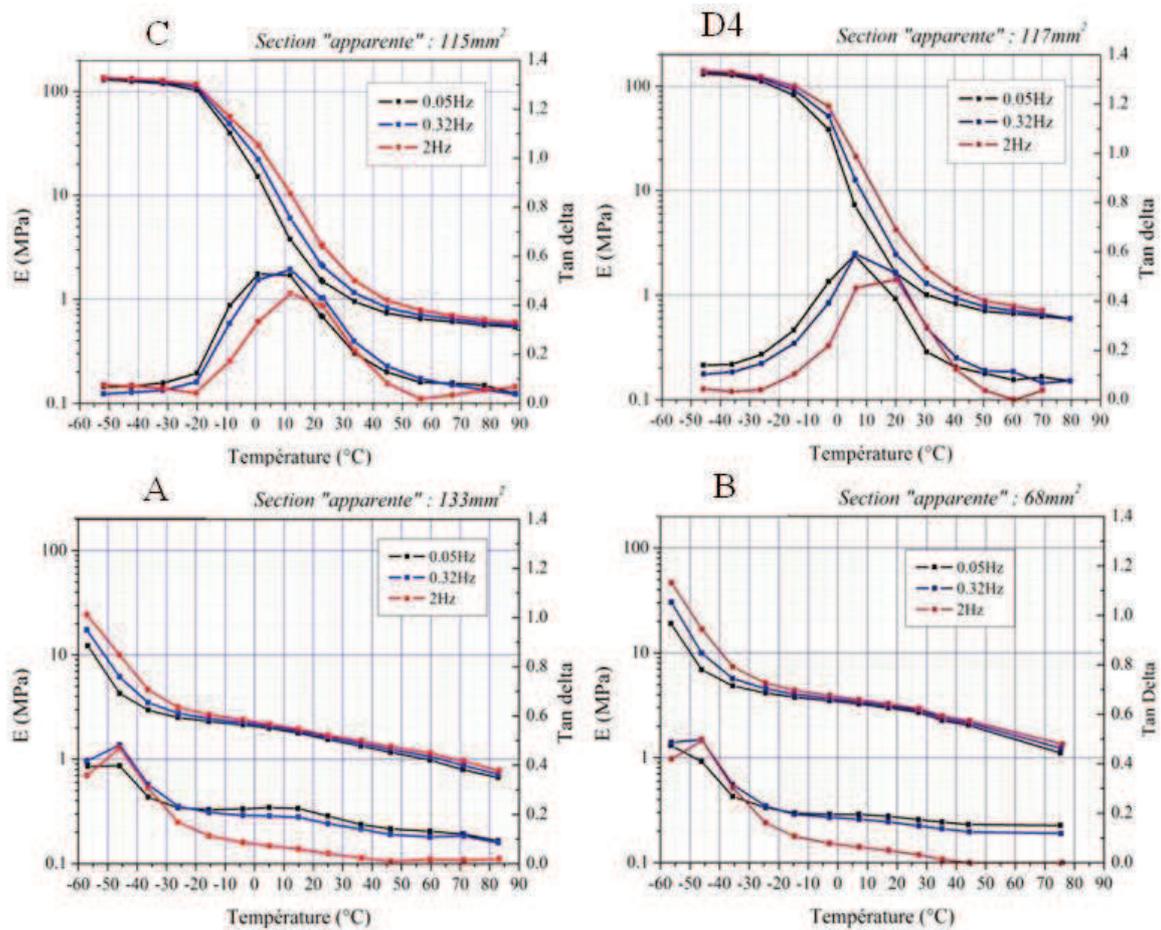


Figure 30 : Analyse mécanique dynamique de différentes mousses pour une plage de température comprise entre -60°C et 90°C

2.2. Caractérisations microstructurales

2.2.1. Caractérisation en 2D

2.2.1.1. Traitement numérique des images MEB

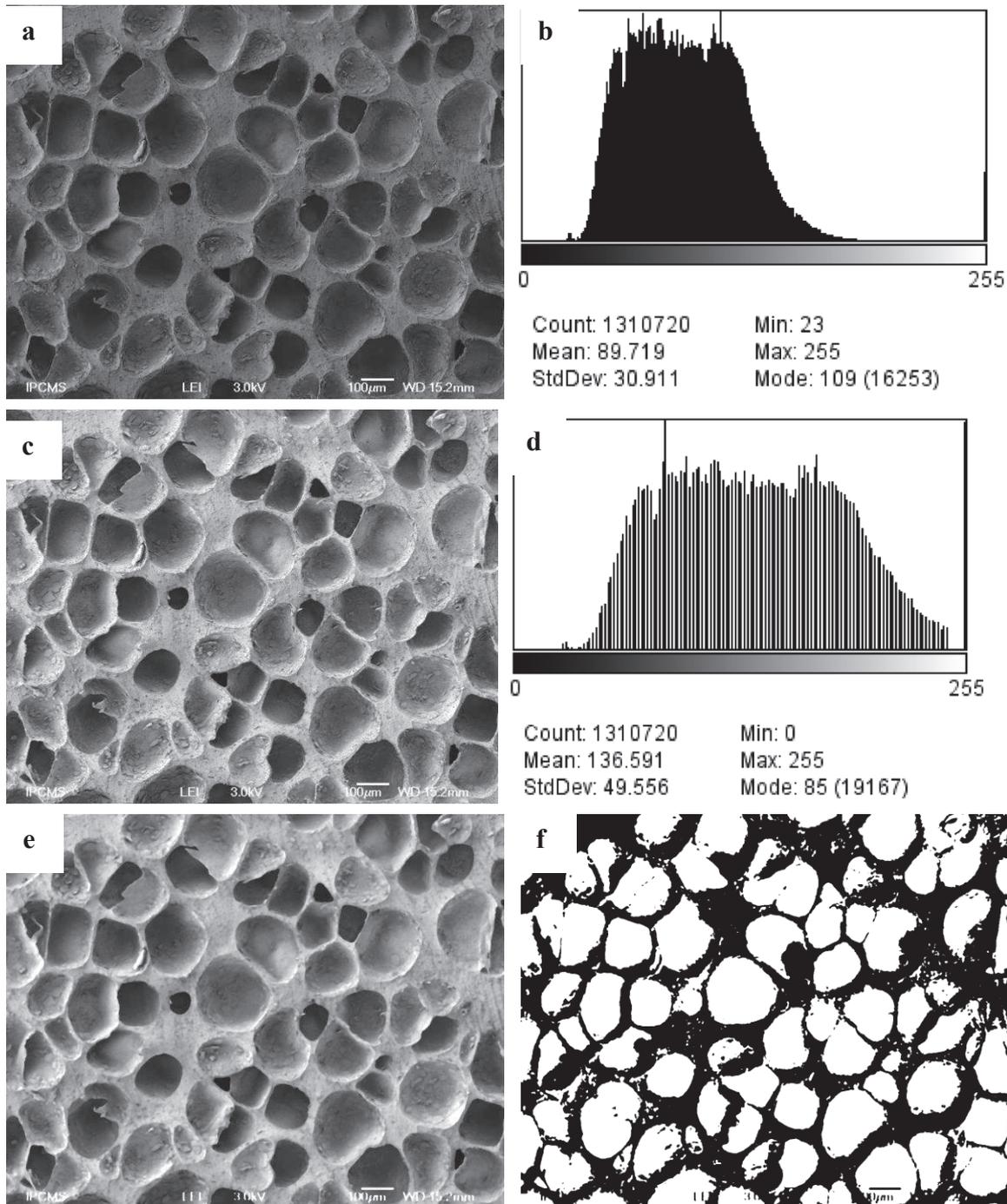
Afin de procéder à des analyses statistiques de la morphologie de la microstructure et par la suite à des analyses éléments finis, des traitements spécifiques sur ces images MEB sont réalisés dans le but d'isoler la matière solide de la mousse et de délimiter les contours des cellules alvéolaires de la structure. Cette opération de binarisation particulière correspond à une segmentation d'image. Au final cette opération nous permet de distinguer numériquement les deux phases de la structure en fixant tous les pixels appartenant aux cellules à 1 (blanc) et tous les pixels appartenant à la matrice à 0 (noir). Pas simple à réaliser, cette binarisation ne peut pas se faire instantanément du fait de la présence de divers bruits sur l'image.

Les images brutes MEB ne sont pas directement exploitables, les conditions d'acquisitions des images affectant profondément sa qualité. Ainsi une mise au point inappropriée et/ou un éclairage non homogène de la mousse, engendrent une netteté, une luminosité et un contraste non uniformes complexifiant le niveau de traitement requis pour obtenir des modèles fidèles et exploitables. Ce paragraphe permettra aussi d'introduire les outils numériques nécessaires aux traitements et à la reconstruction des images.

Les images sont définies en niveau de gris avec une résolution de 8 à 16 bit. Il existe plusieurs techniques pouvant être adoptées ou combinées pour segmenter une image et délimiter les contours des cellules [62], [63], [64], mais à cause de la complexité de la texture des images la plupart des ces techniques de segmentation ou de détection de contours ne permettent pas d'obtenir directement un modèle, une représentation fidèle de la microstructure. Un ensemble d'opérations spécifiques est alors méthodiquement appliqué nous permettant d'intervenir manuellement si nécessaire à chaque étape du processus de traitement. Ces opérations de traitement d'image sont :

- Le calcul de l'histogramme de l'image représentant la distribution des intensités de l'image en niveau de gris (Figure 31.b)
- Le réajustement des intensités de l'image sur tout le niveau de couleur. Par exemple pour une image avec une résolution de 8 bit, il est préférable de recentrer l'image dans la zone d'intérêt en fonction de l'histogramme obtenue. Cela permet d'optimiser le contraste et la luminosité (Figure 31.c et Figure 31.d).
- Le filtrage de l'image : l'application d'un filtre non linéaire comme le filtre gaussien (qui lisse l'image) ou le filtre médian permet de garder la netteté de l'image en éliminant les détails fins et réduit ainsi l'impact des irrégularités dans la texture du matériau solide des parois (assimilées au bruit de l'image) (Figure 31.e).
- Le seuillage est l'opération finale segmentant l'image filtrée et permet ainsi de délimiter les contours des cellules alvéolaires (Figure 31.f). Un premier traitement

donne un résultat bruité. Ici l'éclairage de l'échantillon durant l'acquisition des images MEB n'est pas totalement « centré », ce qui génère des effets d'ombrages sur les cellules et les parois vers le bas de l'image en sont trop éclairées. Le niveau de gris des cellules n'est plus homogène. Le problème de traitement peut être résolu en effectuant en parallèle une autre opération de seuillage sur l'image filtrée qui va cibler la matière « omise » durant le premier traitement. La combinaison des deux images seuillées donne la microstructure finale reconstruite (Figure 31.g).



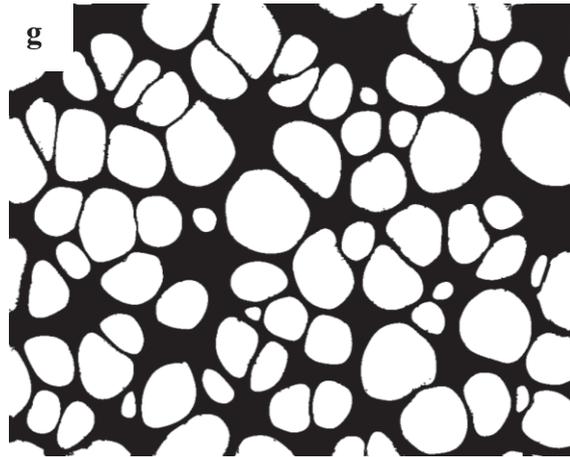


Figure 31 : Processus de segmentation de l'image de la microstructure (mousse *A*)

Les logiciels principalement utilisés pour le traitement numérique des images sont MATLAB et IMAGEJ, un logiciel multiplateforme et open source souvent mise à jour par l'ajout de nouvelles fonctionnalités via des plugins et macros, [65] et [66].

Après l'opération de seuillage, il peut apparaître de petites particules hétérogènement réparties dans toute l'image. Ces particules sont le résultat des traitements effectués sur les irrégularités de la texture du matériau solide. L'outil « **Analyse particle** » présent dans le logiciel IMAGEJ, permet de détecter et d'éliminer ces objets. Malheureusement une intervention manuelle visant à redessiner la forme de certaines cellules et à enlever certains artefacts de la structure reste souvent nécessaire. Dans ces cas de figure les outils de dessin (crayon et gomme) permettent de réajuster les contours très mal détectés ou d'éliminer les objets mal filtrés par le processus automatique. L'outil **érosion** et **dilatation** permettent de réduire ou d'augmenter la forme des objets dans l'image suivant leur courbure en fonction d'une forme initiale prédéfinie (cube). Ces outils sont utilisés en dernier recours pour réajuster la porosité de la structure. En effet, les deux opérations de filtrage et de seuillage engendrent irrémédiablement des erreurs dans la détection exacte des contours des cellules. La mesure de la porosité à la fin du processus de segmentation qui est obtenue en calculant la proportion de pixels noirs (modélisant la matière) par rapport à la proportion de pixels blancs des trous alvéolaires est comparée à la porosité globale connue de la mousse. Même si on compare des données 2D à une mesure de la porosité globale en 3D, celle-ci est un paramètre de consigne important donnant un aperçu de la fidélité de la reconstruction de la géométrie de la microstructure. Ces opérations de filtrages peuvent être réinitialisées et réitérées autant de fois que nécessaire afin d'avoir les contours finement délimités (Figure 31.g).

2.2.1.2. Analyse Statistique

Pour décrire la morphologie de la microstructure d'une mousse polymère on peut raisonner suivant deux points de vue complémentaires : les cellules ou la matière. Sur le modèle de mousse NR/SBR *A*, une première analyse du modèle reconstruit donne 61 cellules isolées (Figure 32.a). Une identification de chaque cellule (**labelling**) donne leur aire de surface ainsi

que leur centre de masse (Figure 32.b). Le labelling est une opération d'étiquetage permettant de trouver les groupes de pixels interconnectés appelés composantes connexes ou blobs en partant de l'image binarisée. On obtient alors une image dans laquelle chaque « objet » est identifié de manière unique.

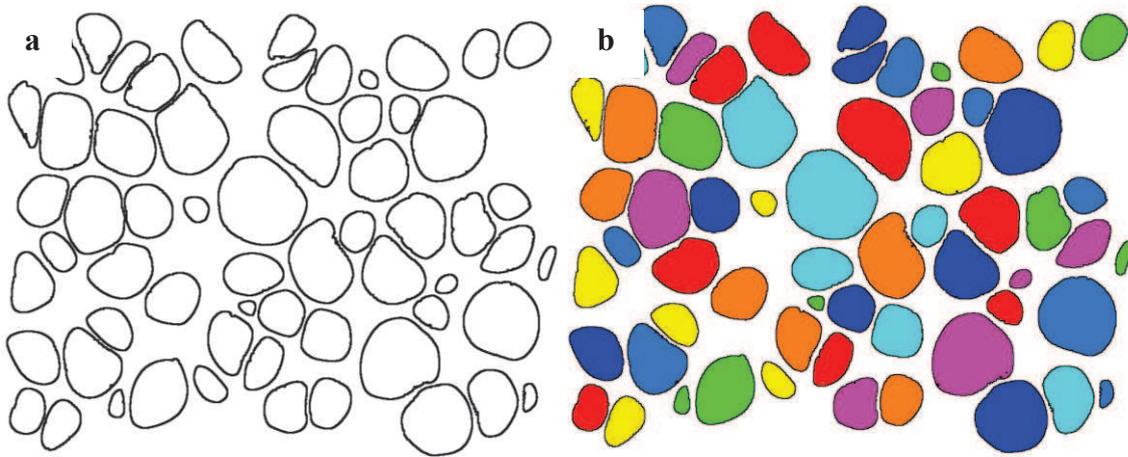


Figure 32 : labelling du modèle reconstruit

La caractérisation de la morphologie des cellules est basée sur l'étude particulière de trois facteurs essentiels : leur taille, leur forme et leur position. La distribution de l'aire des cellules et la distribution du diamètre moyen donnent les principales informations sur leur taille. Ces distributions peuvent être décrites par une loi normale de la forme :

$$f(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left[-0.5\left(\frac{x-A_m}{\sigma}\right)^2\right] \quad (\text{eq. 2.5})$$

où A_m représente la moyenne de la distribution analysée et σ son écart type. Ce type de loi de distribution permet de bien représenter la répartition des cellules. Le diamètre équivalent d'une cellule est donnée par :

$$D_{moy} = \sqrt[3]{\frac{6 \times V_c}{\pi}} \quad (\text{eq. 2.6})$$

V_c est le volume de la cellule. Après calculs, ici les cellules ont une aire moyenne de $4800 \mu\text{m}^2$ et un diamètre équivalent moyen de $67 \mu\text{m}$ (Figure 32). Les distributions des aires (Figure 33.a) et des diamètres (Figure 33.b) sont des gaussiennes confirmant une structure de type poly disperse.

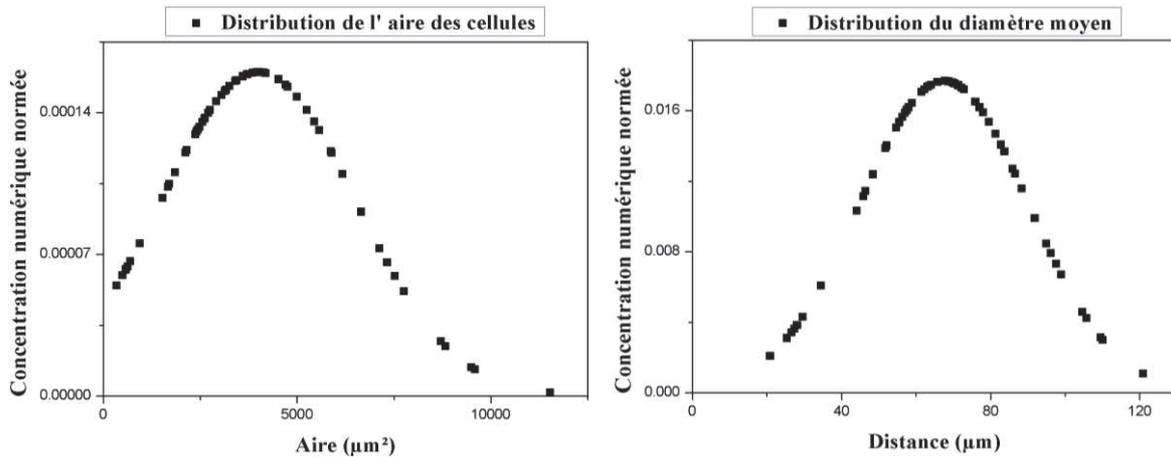


Figure 33 : Distribution de l'aire à gauche (a) et du diamètre moyen à droite (b) des cellules

La caractérisation de la forme des cellules peut être effectuée en analysant la distribution de la sphéricité des cellules. Cette étude sera uniquement possible en trois dimensions. Enfin la répartition spatiale donne les positions des centres des cellules. Le calcul de la position de chaque centre de cellule vis-à-vis de celui de la cellule voisine la plus proche est un bon indicateur de la distribution spatiale. La distance moyenne d'une cellule à une autre est de 63 μm et l'écart type de 12 μm (Figure 34).

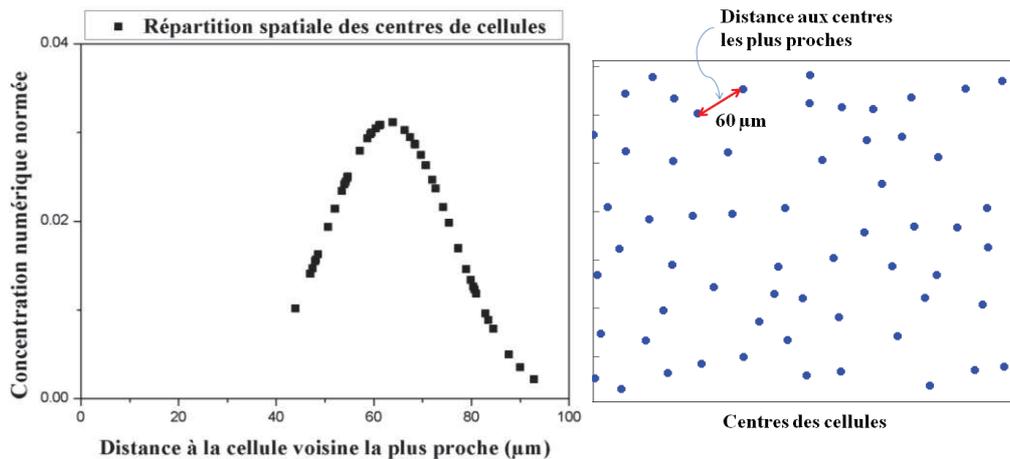


Figure 34 : Répartition spatiale des cellules

Par ailleurs ni la taille, ni la forme ou la distribution spatiale des cellules ne décrivent la répartition de matière dans la structure. La connaissance du diamètre moyen d'une cellule ainsi que de la distance moyenne entre deux cellules voisines peuvent donner une information sur l'épaisseur moyenne des parois mais il est nécessaire de développer un outil pour déterminer précisément la distribution de la matière dans la structure. En 2D, la granulométrie par morphologie mathématique est une technique d'analyse de la microstructure qui peut être utilisée pour calculer la distribution des épaisseurs des parois [67]. Cependant, à cause d'un certain nombre d'inconvénients inhérents au MEB et à la caractérisation bidimensionnelle,

nous développerons plus en détail l'étude de la distribution de matière dans la mousse à partir d'une caractérisation tridimensionnelle détaillée à la suite.

2.2.1.3. Inconvénients de la caractérisation en 2D

L'étude en 2D admet quelques inconvénients majeurs qui limitent son utilisation. Premièrement, la méthode de caractérisation 2D basée sur la microscopie électronique à balayage est destructive. La découpe de l'échantillon peut altérer la topologie de la microstructure de surface. Des observations ont montré la rupture de certaines parois très fines de mousses à grande porosité (90%) sous les contraintes locales imposées par les lames lors de la découpe. Dans ce cas, la surface de découpe ne représente plus réellement la structure locale de la mousse. Deuxièmement, les conditions d'acquisition des images MEB ne sont pas adaptées à tous les types de nature de mousses. Sachant que les échantillons sont recouverts par métallisation d'un dépôt d'une fine couche conducteur (carbone, or...) et sont soumis à un vide assez poussé, certaines natures de mousses observées au MEB n'ont pas supporté cet environnement et les échantillons se sont résorbés durant l'analyse (Figure 35). D'autre part la surface de découpe n'admet pas localement la même porosité que pour tout l'échantillon. Or les traitements d'images effectués ne sont consignés que par la densité relative globale de la mousse et non celle de la surface de découpe qui est totalement inconnue, ce qui rajoute des incertitudes de mesures. Finalement, on peut noter que les observations au MEB sont souvent inadéquates à l'analyse d'états déformés sachant que l'état des contraintes en surface est différent de celui à l'intérieur du matériau.

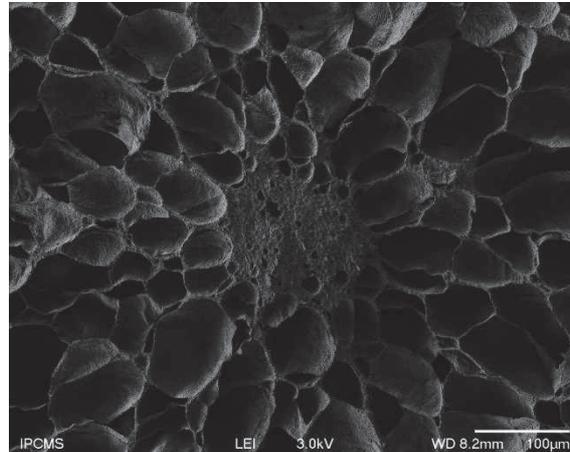


Figure 35 : Altération de la microstructure lors de prise d'image MEB (artefacts, effet du vide)

2.2.2. Caractérisation en 3D

Face à tous les inconvénients de l'imagerie MEB pour la caractérisation microstructurale des mousses polymères, il est alors nécessaire de se tourner vers d'autres moyens techniques non destructifs et pouvant rendre compte de la distribution des cellules, de la connectivité des parois ainsi que de la géométrie de la microstructure dans tout le volume de la mousse.

Développée durant les années 70 initialement dans un but médical, la tomographie à rayons X est une technique d'imagerie 3D idéale pour observer la structure interne volumique des mousses et permettre l'élaboration de modèles numériques basés sur la géométrie 3D réelle.

2.2.2.1. Principe de la tomographie X

La tomographie X utilise un faisceau de rayons X interagissant avec la matière de l'échantillon pour créer des images en coupes transversales. Un faisceau monochromatique de rayons X traversant un objet matériel subit une variation d'énergie. C'est le phénomène d'atténuation. La loi d'absorption de Beer-Lambert donne le nombre de photons transmis N_t par une tranche de matière traversée par un faisceau d'énergie E en fonction du nombre de photons incidents N_i et du coefficient d'atténuation μ de la tranche de matière traversée s :

$$N_t(E) = N_i(E) \exp \left[- \int_s \mu(s) ds \right] \quad (\text{eq. 2.7})$$

Le coefficient d'atténuation μ dépend du trajet s et peut varier en fonction des propriétés de la matière traversée. L'atténuation du faisceau incident est ainsi principalement fonction de l'énergie E du faisceau, de la densité et de la composition du matériau traversé. La détection et l'analyse du faisceau transmis permet de remonter à la structure interne du matériau et à la morphologie de l'échantillon analysé. Une représentation visuelle des données brutes obtenues après une détection est appelée radiographie. C'est une projection de l'échantillon en cours de numérisation contenant l'information de toute sa structure mais pour une incidence angulaire unique. Une seule projection ne suffit pas pour une interprétation correcte de la structure. L'idée est alors de déplacer l'échantillon à numériser par rapport au faisceau de rayon X incident pour avoir plusieurs projections, en général, pour cela, une rotation de l'échantillon est utilisé [68].

La Figure 36 illustre le principe de fonctionnement d'une micro tomographie X. Les composants d'un appareil de tomographie X sont une source génératrice de rayons X, un détecteur pour mesurer l'intensité du faisceau de rayons X transmis, et une plate-forme permettant la rotation de l'échantillon à imager. L'échantillon est placé entre la source de rayons X et le détecteur et tourne séquentiellement sous de faibles angles de rotations. Le détecteur peut être un capteur CCD qui retranscrit, proportionnellement en niveau de gris, les intensités variables des photons transmis $N_t(E)$ à chaque position angulaire.

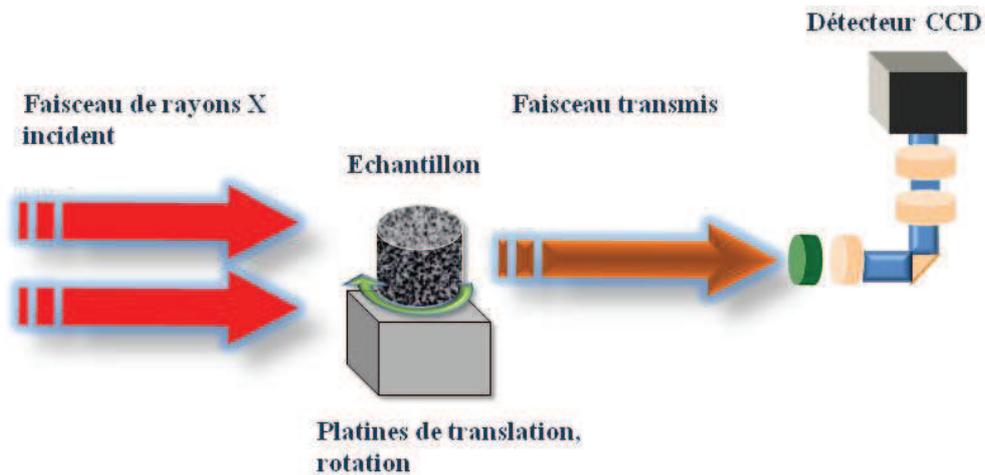


Figure 36 Principe de la tomographie X

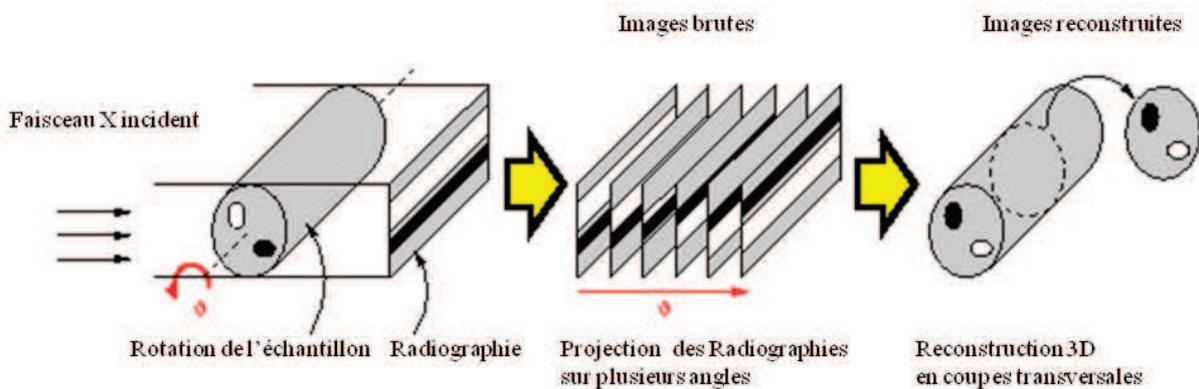


Figure 37 : Principe d'acquisition des radiographies

Plusieurs radiographies sont enregistrées sous différentes incidences du faisceau de rayon X en tournant l'échantillon de 0° à 360° . Une fois toutes les projections acquises, les données brutes doivent être traitées en utilisant un algorithme de reconstruction tomographique qui produit in fine une série d'images en coupe transversale (Figure 37). En termes mathématiques les projections sont la transformation de Radon de la structure de l'objet. La reconstruction consiste alors essentiellement à résoudre la transformation inverse de Radon.

2.2.2.2. Reconstruction tomographique

L'un des algorithmes de reconstruction les plus utilisés est la rétroprojection filtrée. C'est une méthode rapide et disponible sur la plupart des tomographes commercialisés. Dans cet algorithme les images $f(x,y,z)$ à reconstruire sont une rétroprojection des projections filtrées. La projection p d'un objet sous un angle θ est constituée d'un ensemble de lignes. L'intégrale d'une ligne représente l'atténuation totale du faisceau de rayons X entrant depuis une position donnée (r,θ) et qui se déplace en ligne droite à travers l'objet. Pour une projection parallèle, l'atténuation $p(r,\theta)$ est donnée par :

$$p(r, \theta) = \ln \left[\frac{N_t(E)}{N_i(E)} \right] = - \int_v \mu(x, y, z) dv \quad (\text{eq. 2.8})$$

Cette opération est répétée pour différents angles donnant plusieurs projections. L' image de la structure est donnée par $f(x, y, z)$ qui représente le coefficient d' atténuation $\mu(x, y, z)$:

$$p(r, \theta) = - \int_v f(x, y, z) dv \quad (\text{eq. 2.9})$$

$$P(\rho, \theta) = - \int_{-\infty}^{+\infty} p(u, \theta) e^{-i2\pi\rho u} du \quad (\text{eq. 2.10})$$

$$p'(u, \theta) = \int_{-\infty}^{+\infty} P(\rho, \theta) |\rho| e^{i2\pi\rho u} d\rho \quad (\text{eq. 2.11})$$

$$f(x, y, z) = - \int_0^\pi p'(u, \theta) d\theta \quad (\text{eq. 2.12})$$

L'équation (eq. 2.9) est la transformation de Radon. La méthode de rétroprojection filtrée est constituée de 4 étapes (Figure 38) : On calcule la transformée de Fourier de chaque projection (eq. 2.10). Ensuite une transformée de Fourier inverse est effectuée sur la fonction filtrée $P(\rho, \theta)|\rho|$). La rétroprojection donne finalement les coupes tomographiques $f(x,y,z)$ (eq. 2.12), [69]. Ainsi, le volume 3D résultant est constitué d'une série d'images en coupe transversale. Ces images sont en niveaux de gris correspondant à l'atténuation des rayons X, ce qui reflète la proportion de rayons X dispersés ou absorbés lorsqu'ils traversent chaque élément de la structure. Une image tomographique est composée de voxels qui sont les plus petits éléments tridimensionnels discernables. Chaque coupe transversale correspond à une tranche d'une certaine épaisseur de l'échantillon définie par la dimension en z du voxel.

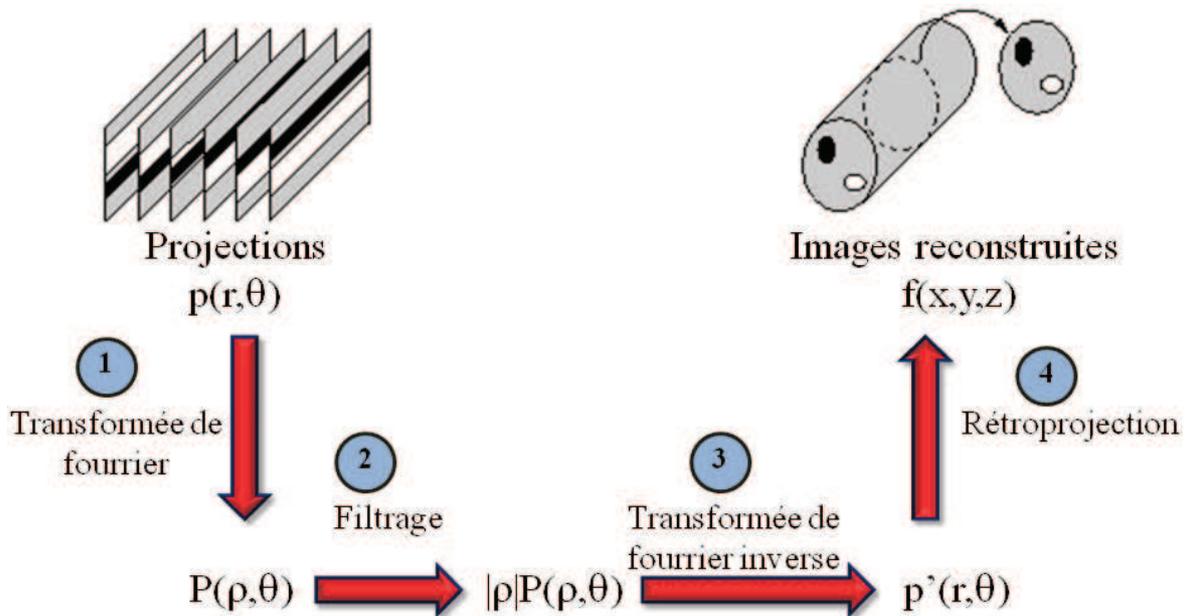


Figure 38 : Algorithme de rétroprojection filtré

2.2.2.3. Synchrotron ESRF et SOLEIL

La résolution spatiale, la vitesse d'acquisition des images ou le mode de contraste sont des paramètres importants à prendre en compte dans le choix d'un tomographe. À l'heure actuelle les tomographes médicaux (IRM, scanner, échographie, tube X) possèdent des résolutions qui sont limitées entre 5 et 10 μm avec des temps d'acquisition assez importants (>1h). La résolution des tomographes industriels (tube X) peut aller de 0.5 μm à plusieurs centaines de microns. D'autre part la durée de scan est en moyenne d'une heure mais peut aussi descendre jusqu'à 30 min dans certaines conditions.

Dans le but de caractériser différentes microstructures de mousses polymères de différentes densités, il est nécessaire de s'orienter vers des appareils ayant de très grandes profondeurs de pénétration et de grandes vitesses d'acquisitions. Nous avons eu l'opportunité de mener des mesures au synchrotron ESRF (European Synchrotron Radiation Facility) de 3ème génération basé à Grenoble et celui de SOLEIL à Saint-Aubin, sur le plateau de Saclay. Les synchrotrons produisent un faisceau X parallèle et poly chromatique qui est rendu monochromatique par un monochromateur pour pouvoir sélectionner l'énergie d'émission adéquat. Des faisceaux incidents d'énergie dans la gamme de 19 à 60 keV sur la ligne de lumière ID19 à l'ESRF et entre 25 et 29 keV sur la ligne de lumière PSICHE à SOLEIL ont été utilisés. Les résolutions spatiales étaient de : 0.280 μm à 19 keV, 0.325 μm à 25 keV, 3 μm à 29 keV, 3.5 μm à 35 keV et 0.56 μm à 60 keV. En plus des très hautes résolutions spatiales accessibles (jusqu'à 200 nm), les synchrotrons permettent une grande profondeur de pénétration et des temps d'acquisition de l'ordre de la minute.

Tomographie locale

A cause de la taille des détecteurs, le champ d'action est limité. Avec des capteurs CCD de 2048×2048 pixels² et une résolution spatiale de 1 μm , la zone d'action pouvant être radiographiée est de $2048 \times 2048 \mu\text{m}^2$. Comme les échantillons analysés sont plus grands que cette zone admissible, on parle de tomographie locale. Par exemple, l'étude au MEB du modèle de mousse NR/SBR *A* a montré des tailles de cellules majoritairement inférieures à 100 μm . Un champs de vue des détecteurs de $2 \times 2 \times 2 \text{ mm}^3$ pourrait alors permettre d'observer théoriquement des milliers de cellules constituant un volume suffisamment représentatif pour caractériser la microstructure. De plus, la tomographie locale permet de s'affranchir des perturbations mécaniques et des altérations structurelles qui peuvent exister aux bords de l'échantillon. Ceci est particulièrement utile lors d'essais mécaniques in situ pour suivre les déformations locales, comme nous l'avons fait à la suite.

2.2.2.4. Traitement des modèles 3D

2.2.2.4.1. Filtrage des artefacts

Les images brutes obtenues après reconstruction bien qu'elles soient une représentation fidèle du volume balayé peuvent contenir des artefacts dues à la très grande sensibilité aux conditions opératoires [70],[71]. Les artefacts les plus souvent observés sont des anneaux concentriques. Ils sont généralement causés par les variations de la réponse de certains objets de la structure de l'échantillon aux niveaux des détecteurs 2D dues à un défaut ou à une mauvaise calibration. La Figure 39 montre l'inconvénient majeur d'un traitement numérique visant à segmenter l'image sans un filtrage préalable minimisant l'impact de ces anneaux de diffraction. Ces artefacts altèrent fortement les opérations de traitement d'image et la segmentation des coupes d'images tomographiques peut alors produire de faux éléments dans la matrice, limitant ainsi l'exploitation qualitative et quantitative des données reconstruites.

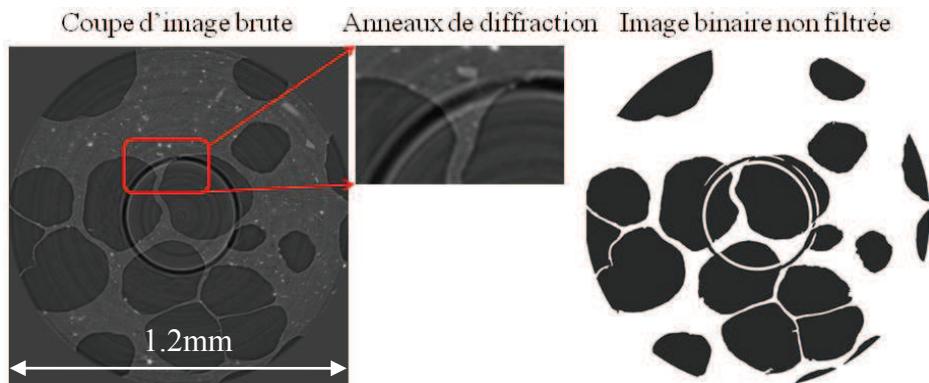


Figure 39 : Binarisation directe sans filtrage des anneaux de diffractions

Afin de palier à ces erreurs de reconstruction, un filtrage spécifique est appliqué à chaque coupe d'image 2D [72]. Dans un premier temps l'image brute est transformée en coordonnées polaire. Ainsi chaque cercle de pixels dans l'image initiale devient une ligne horizontale (Figure 40). La contrainte majeure est que les cercles doivent être concentriques, leur centre se trouvant alors à l'origine de la transformation polaire. La méthode de filtrage consiste d'abord à calculer l'intensité moyenne pour chaque ligne. Les anneaux concentriques nuisibles pour le traitement des images correspondent alors à de grands pics d'intensité. La correction de ces intensités est alors effectuée en choisissant les bons paramètres de filtrage passe bande [70],[73].

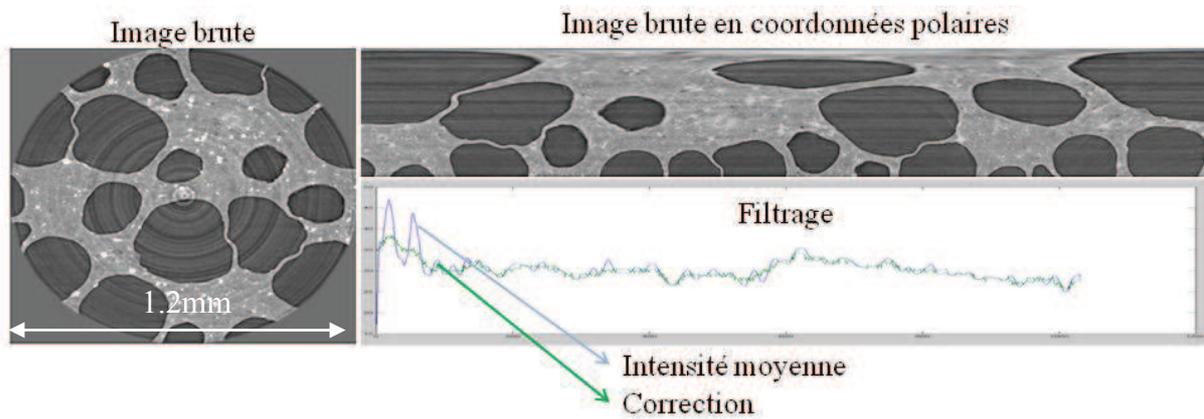


Figure 40 : Filtrage des anneaux de diffraction

2.2.2.4.2. Traitement numérique

Les images obtenues après reconstruction sont codées en niveaux de gris sur huit octets. Une coupe d'image de 2048×2048 pixels² fait alors 4mb, et une série de 2048 images correspond à 8 Go de taille mémoire. Avec l'usage d'IMAGEJ, les images sont recodées et comprimées au format PNG de manière à pouvoir exploiter les modèles reconstruits sans une consommation excessive en mémoire et en puissance de calcul. La résolution spatiale des modèles va de $0.28\mu\text{m}$ à $3.5\mu\text{m}$ afin de balayer la morphologie des structures à différentes échelles.

Comme en 2D (2.2.1.1), un ensemble d'opérations spécifiques est méthodiquement appliqué. Les premières opérations de calcul de l'histogramme, de réajustement des intensités, de filtrage et de seuillage sont les mêmes que pour le traitement en deux dimensions. Cependant elles ne sont pas appliquées image par image mais à l'intégralité des coupes d'images considérées comme un modèle compact 3D [74]. Par ailleurs, en considérant la faible résolution de certains modèles, une opération spécifique de séparation des cellules est souvent nécessaire. Cette opération consiste à bien délimiter les contours mal définis des cellules et de les séparer les uns des autres. Elle est basée sur la méthode de segmentation par ligne de partage des eaux où une image 2D en niveaux de gris est considérée comme un relief topographique dont on simule l'inondation. L'ensemble de ces opérations est effectué avec le logiciel de traitement d'images 2D et 3D AVIZO [75].

2.2.2.5. Analyses statistiques

En vue des analyses statiques et des simulations éléments finis, nous avons extrait des échantillons de formes cylindriques ou cubiques de chacun des modèles scannés à différentes échelles. La Figure 41.a représente un échantillon mousse *B* reconstruit. L'échantillon cylindrique extrait (Figure 41.b) contient assez de cellules pour être significativement représentatif de la structure de la mousse. La Figure 41.c donne l'arrangement des cellules bien identifiées après une opération de labelling.

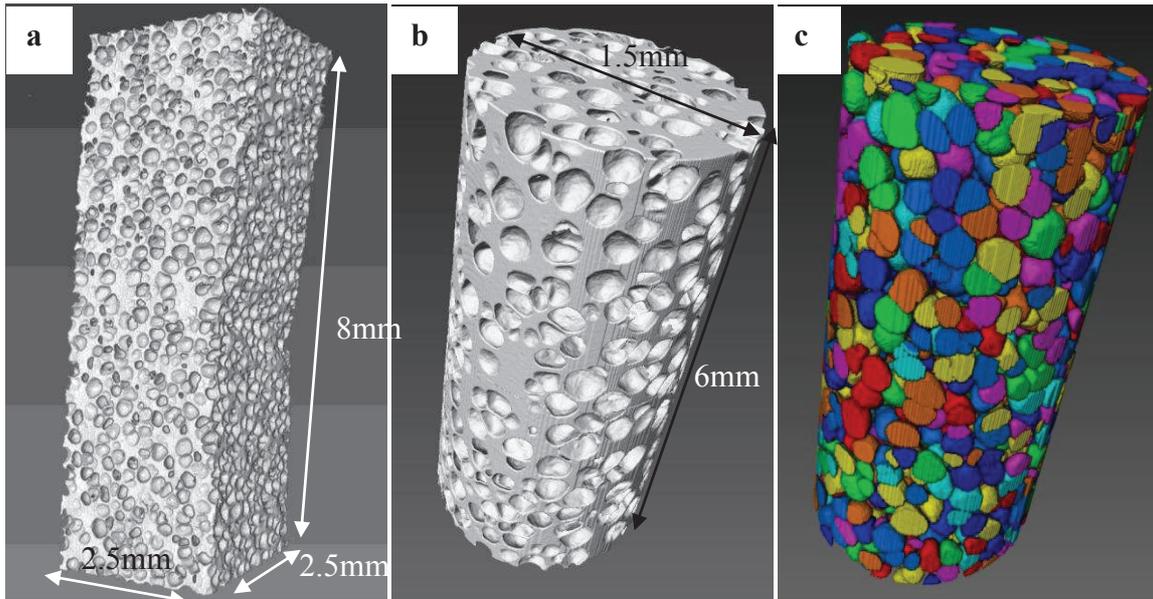


Figure 41 : Mousse *B* reconstruit et analyse statistique : (a) mousse *B* reconstruit ; (b) échantillon cylindrique ; (c) labelling des cellules

Pour la mousse *A*, la mesure du diamètre

Pour étudier la distribution de taille, des données statistiques telles que la distribution de volumes et de diamètres équivalents des cellules sont analysées en utilisant la loi normale donnée par l'équation $f(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left[-0.5\left(\frac{x-A_m}{\sigma}\right)^2\right]$ (eq. 2.5.

Nous avons alors comparé les distributions de volume et de diamètre équivalent des cellules entre les deux modèles. Le modèle *B* admet de plus petites cellules avec un diamètre équivalent moyen de $46 \mu\text{m}$ et un volume moyen de $2.9 \cdot 10^6 \mu\text{m}^3$. De plus, les distributions sont plus étroites ce qui montre que les cellules sont plus compactes et de tailles plus homogènes ou moins dispersées que celles de la mousse *A* (Figure 42).

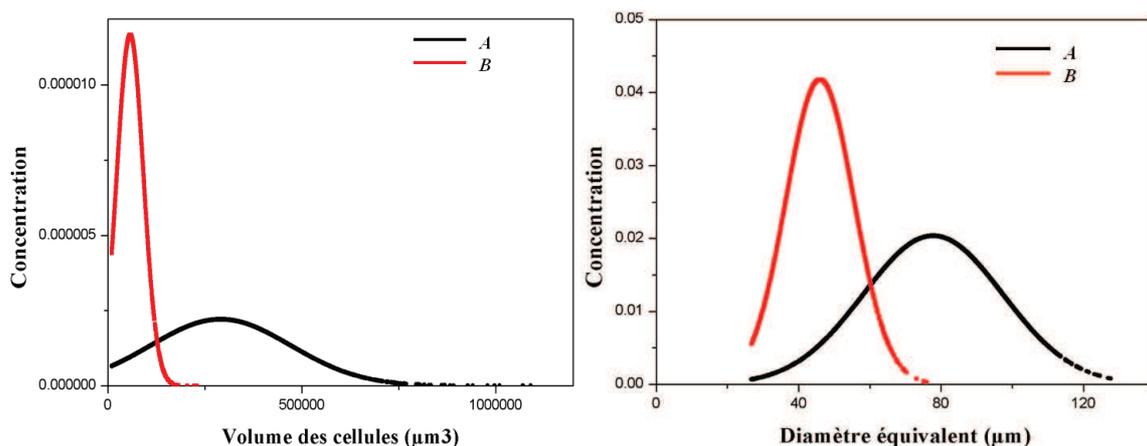


Figure 42 : Comparaison des distributions de volume (à gauche) et de diamètre équivalent (à droite) entre les mousses *A* et *B*

La forme des cellules est analysée grâce à la mesure de leur sphéricité qui donne le rapport entre l'aire de la surface d'une cellule donnée et l'aire de la sphère de volume identique. La sphéricité d'une sphère est donc de 1 et par l'inégalité iso-périmétrique, toute particule qui n'est pas une sphère aura une sphéricité inférieure à 1. La Figure 43 donne la distribution de la sphéricité en fonction du diamètre équivalent de la mousse *A* et la mousse *B* respectivement en noir et en rouge. Ce type de courbe permet en même temps d'analyser la distribution de la forme des cellules et de corrélérer cette mesure à leur taille.

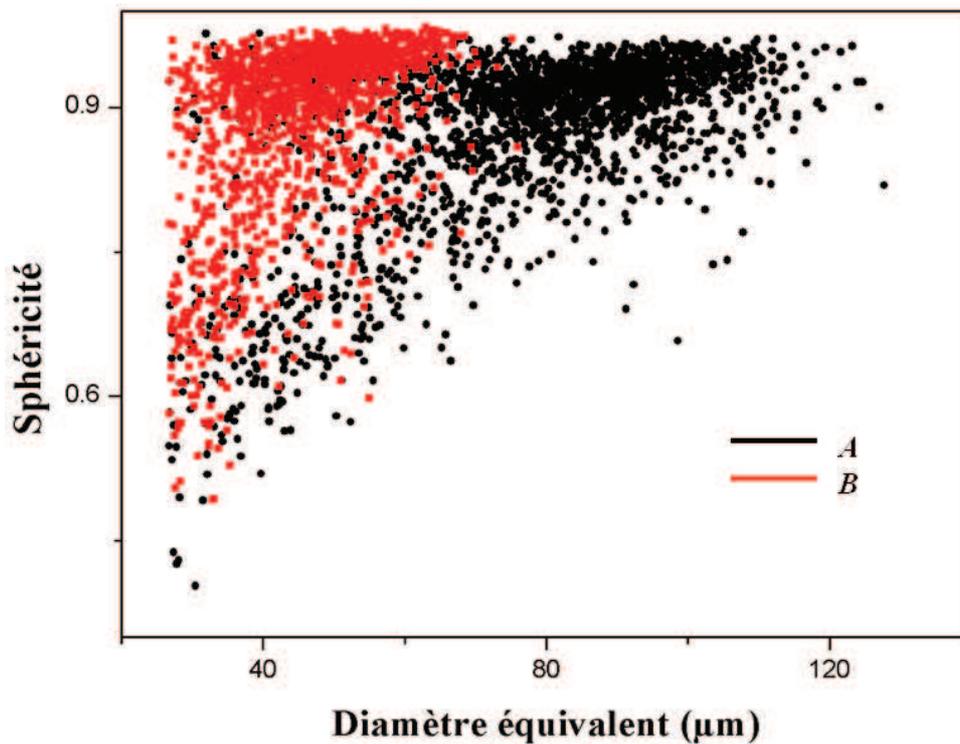


Figure 43 : Comparaison de la sphéricité en fonction du diamètre équivalent entre les mousses *A* et *B*.

Pour les deux microstructures nous observons une distribution globalement répartie dans une région triangulaire supérieure. Plus les diamètres équivalents des cellules sont grands et plus celles-ci sont sphériques. Nous retrouvons des diamètres équivalents de cellules plus importants sur la mousse *A*. La sphéricité varie de 0.43 à 0.98 et de manière identique pour les deux mousses. Il réside donc globalement la même répartition de forme de cellules en fonction de leur taille entre les deux mousses.

D'autres mesures comme l'anisotropie peuvent aussi être effectuées et permettent de déterminer l'orientation des cellules dans leur répartition spatiale. Comme en 2D les études de la taille, la forme et la répartition spatiale des cellules sont complétées par une analyse de la répartition de la matière dans les parois. Cette analyse est aussi importante dans l'étude de la morphologie de la structure et elle permet de connaître la fraction de matière suivant les épaisseurs des parois.

2.2.2.6. Calcul de la fraction solide Φ

Nous avons développé un outil numérique pour déterminer précisément la distribution de la matière dans la structure volumique. La caractéristique physique permettant de décrire cette répartition de masse dans les structures poreuses est la fraction solide. Le calcul de la fraction solide réelle est très complexe à effectuer. Comme vu précédemment, dans le premier chapitre, pour des mousses à très grandes porosité on a souvent recours à des structures théoriques régulières pour modéliser la morphologie de la microstructure. Et dans ces modèles, les cellules élémentaires simples (cubiques, tétraèdriques) permettent le calcul exact de cette fraction solide Φ . Très peu d'études ont été effectuées visant à déterminer expérimentalement la fraction de matière dans les faces et les piliers car il est d'abord nécessaire de représenter fidèlement la structure de la mousse. Les modèles reconstruits grâce à la tomographie X offrent alors une base solide pour l'élaboration de cet outil numérique.

La méthode de calcul consiste à effectuer des traitements numériques en deux étapes sur les coupes d'images binarisées des modèles. Dans la première étape les intensités des pixels représentant la matière (initialement donnée par les pixels noirs) sont redéfinies en niveaux de gris en fonction de leur distance au milieu des parois. Les pixels des cellules initialement blancs gardent leur intensité. La valeur de chacun des autres pixels est redéfinie par rapport à sa distance au milieu de la paroi locale pondérée par la plus grande distance enregistrée (qui correspondra au seul pixel noir du modèle redéfini). Ainsi plus on se rapproche du milieu des parois et plus les pixels sont noirs. Le terme communément utilisé pour nommer cette opération est la « Distance for map skeletonization » [76]. La Figure 44.b est une illustration en couleur de la méthode de calcul pour une meilleure visibilité de la variation des intensités des pixels. La deuxième étape est la phase de modélisation de la fraction solide. En 3D, en supposant une densité de matière homogène dans la structure, la mesure de la répartition de matière revient à calculer le volume local des parois en remplissant celles-ci de sphères de diamètres variables suivant leur épaisseur, sachant que les centres des sphères sont sur le squelette de la structure déjà déterminé. Il s'agit donc de trouver les plus grandes sphères pouvant être contenues dans les parois. Finalement, comme illustré dans la Figure 44.c, chaque voxel de la paroi prend la valeur du voxel au centre de la plus grande sphère circonscrit.

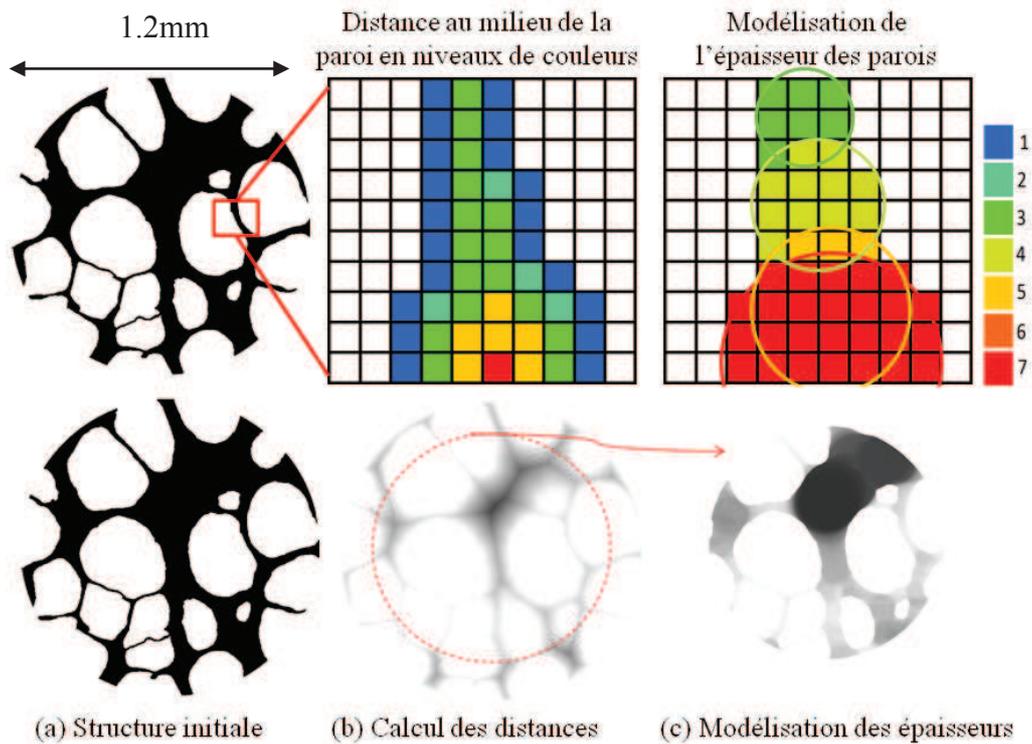


Figure 44 : illustration de la méthode de calcul de la fraction solide

La précision de mesure est de l'ordre de 0.5 pixel. Elle dépend de la résolution des images initiales. Nous avons appliqué cette méthode de calcul du Φ pour des modèles reconstruits de mousse. La Figure 45.b montre le modèle de mousse A en niveau de couleurs modélisant la distribution de matière dans la structure. Chaque niveau de couleur correspond à une épaisseur de paroi unique, ce qui permet d'extraire et d'isoler n'importe quelle fraction de matière contenue dans une certaine épaisseur (Figure 45.c).

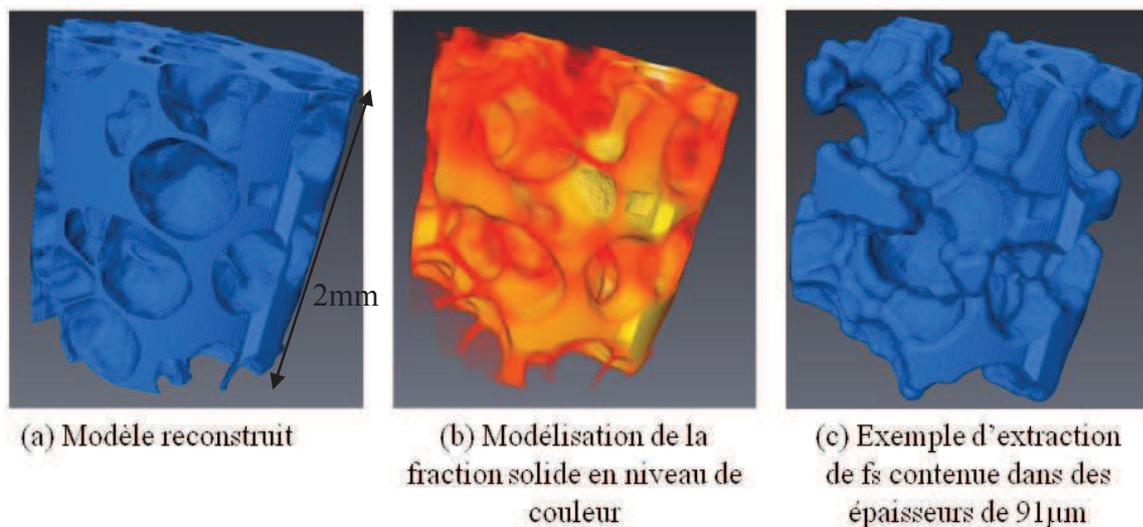


Figure 45 : Application de la méthode développée sur un modèle reconstruit

La Figure 46 donne la distribution des épaisseurs dans la matière. Chaque point de la courbe représente une épaisseur de paroi unique correspondant à un pourcentage de matière. Le nombre de points total donne ainsi le nombre d'occurrence dans la variation de taille des parois. Une répartition de la matière idéalement homogène donnerait une ligne verticale représentant une épaisseur de paroi unique. Nous remarquons qu'il y a très peu de parois fines (épaisseur $< 10\mu\text{m}$). La majorité de la masse est répartie dans des parois de plus de $50\mu\text{m}$ d'épaisseur. De plus la distribution de ces parois est beaucoup plus éparse ce qui laisse suggérer une certaine inhomogénéité de la répartition de la matière.

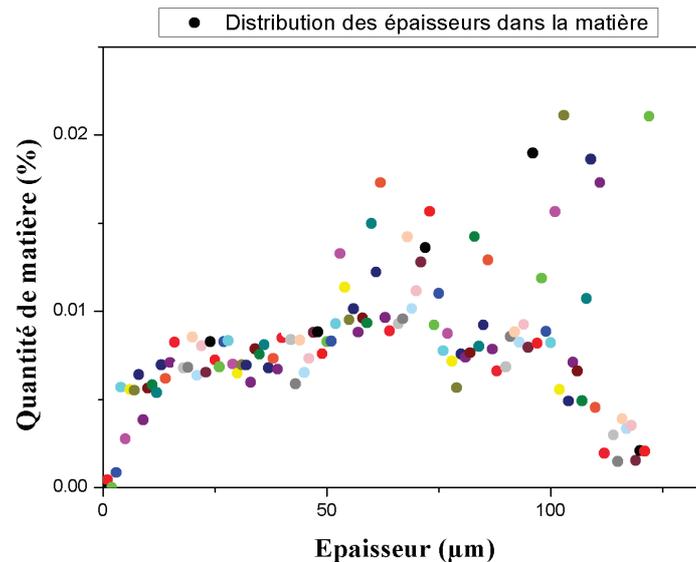


Figure 46 : Distribution des épaisseurs des parois

Cet outil est particulièrement utile dans le cas de mousse à très faible densité. La Figure 47 montre une application de cette méthode de mesure sur un modèle de mousse polyuréthane après reconstruction. Le niveau de couleurs donne la variation de l'épaisseur locale des parois (Figure 47.b). Les épaisseurs des parois des faces sont pratiquement constantes (entre 5 et $7.5\mu\text{m}$). Les piliers sont plus épais (8 et $11\mu\text{m}$). Les vertices (jonctions) sont les intersections des piliers et font en moyenne $12\mu\text{m}$ de diamètre. En sélectionnant le niveau de couleur adéquat nous avons pu isoler les faces, les piliers ou les jonctions rendant ainsi le calcul du f_s relativement aisé. Au final, nous avons 73% de faces et 27% de piliers en volume dans la structure. En règle générale, la valeur du f_s donnée dans la littérature est prise arbitrairement entre 0,6 et 0,8.

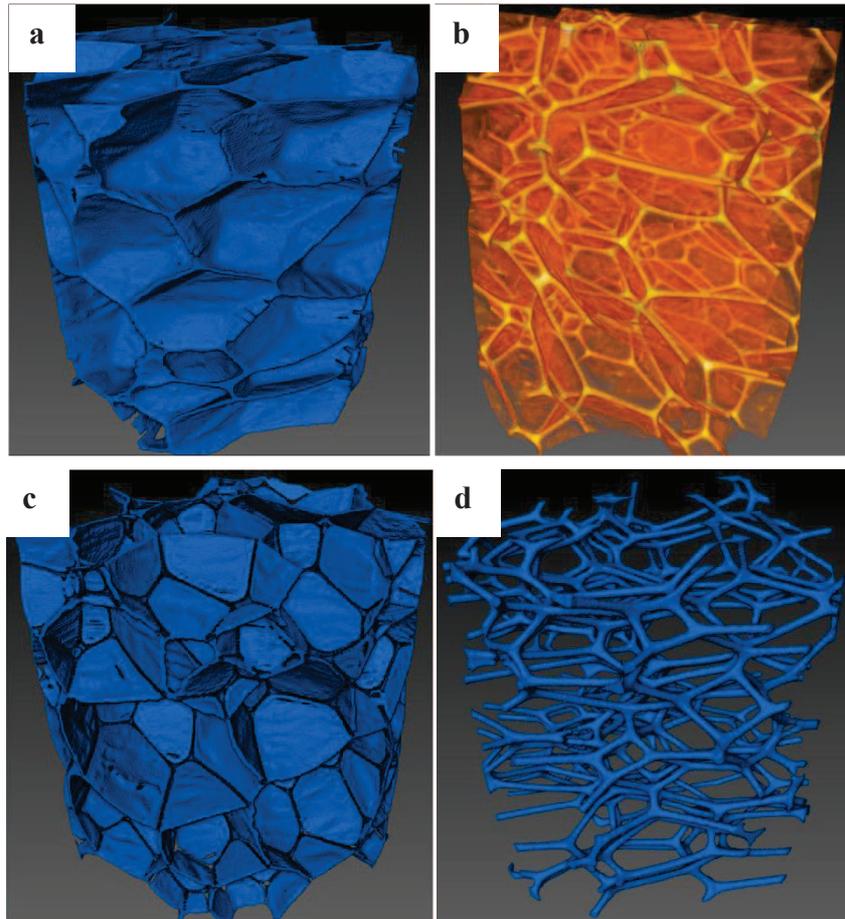


Figure 47 : Calcul de la fraction de matière des faces et des piliers dans une mousse de polyuréthane :
 (a) Mousse de polyuréthane reconstruite (b) Fraction solide en niveau de couleurs, (c) Isolation des faces, (d) Isolation des piliers

2.2.2.7. Essais mécaniques in situ

2.2.2.7.1. Montage expérimental

Les essais de compression in situ sont réalisés à l'aide d'une machine de compression développée à l'institut Charles Sadron à Strasbourg. Le dispositif a été spécialement conçu pour être adapté à la plate-forme tournante du tomographe de la ligne ID19 à l'ESRF. La Figure 48 montre une vue d'ensemble et une vue détaillée du montage dans la plate-forme. Le plateau supérieur qui se déplace uniquement en translation est piloté manuellement grâce à une vis micrométrique. En phase de compression, il impose des contraintes sur l'échantillon de mousse posé sur un plateau inférieur fixe doté d'un capteur de force qui enregistre la charge. Un tube en PMMA transparent maintient l'ensemble du montage. La transparence et les dimensions précises du tube permettent de limiter l'obstruction des rayons X et garantissent une atténuation faible et uniforme de l'énergie du faisceau incident sur 360° de rotation.

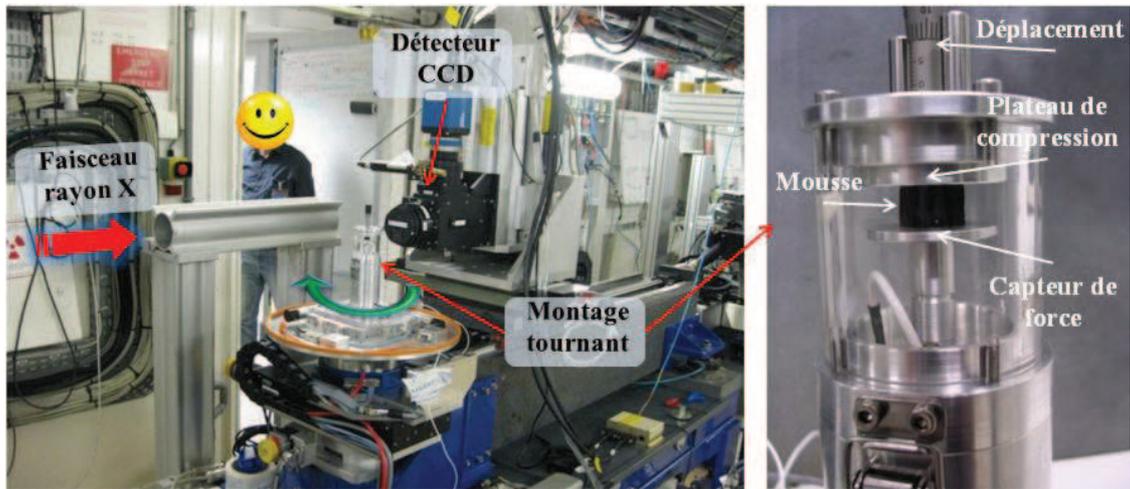


Figure 48 : Dispositif expérimental de compression in situ en tomographie X

Les essais sont réalisés sur les mousses *A* et *D*. Des scans sont réalisés pour des déformations de 0 à 30% par palier de 5%. Pour éviter tout mouvement local de l'échantillon durant les scans, une étude préliminaire de la relaxation en compression des mousses en chargement et déchargement a été effectuée, les résultats de cette étude sont consignés sur la Figure 49. Ainsi après chaque palier de déformation le plateau supérieur est maintenu en position pendant un temps nécessaire au bout duquel l'échantillon est quasi-complètement relaxé. La tomographie est réalisée localement sur une région située au centre de l'échantillon et qui se déplace par rapport au faisceau de rayon X incident à chaque palier de déformation. Le suivi de cette région est assuré par le déplacement vertical de tout le dispositif tournant pour recaler sur le centre de l'échantillon durant la compression. Ces expériences sont chronophages pour toutes ces raisons.

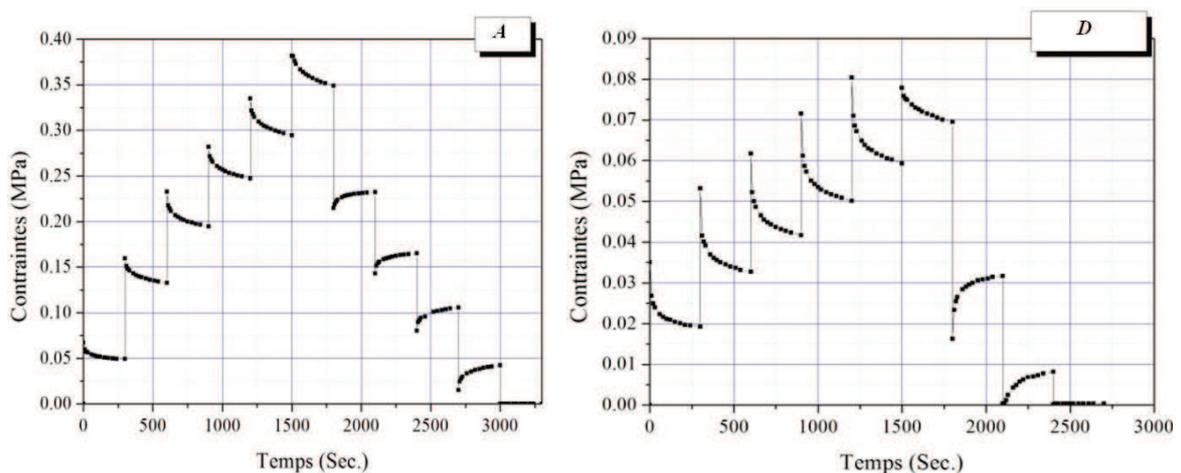


Figure 49 : Courbe de relaxation en charge et décharge de la mousse *A* et *D*.

2.2.2.7.2. Analyses des déformations locales

Durant la phase de compression, la zone scannée change. Il est alors important de bien repérer les coupes d'images 3D obtenues et vérifier qu'elles correspondent à la même région de l'échantillon tout au long de la compression. La figure suivante donne une illustration la déformation du volume balayé au cours de la compression. La zone d'échantillonnage est représentée en gris. Le centre de cette zone est suivi en translation. Le volume initial, représenté en bleu est déformé et correspond alors à la région en rouge.

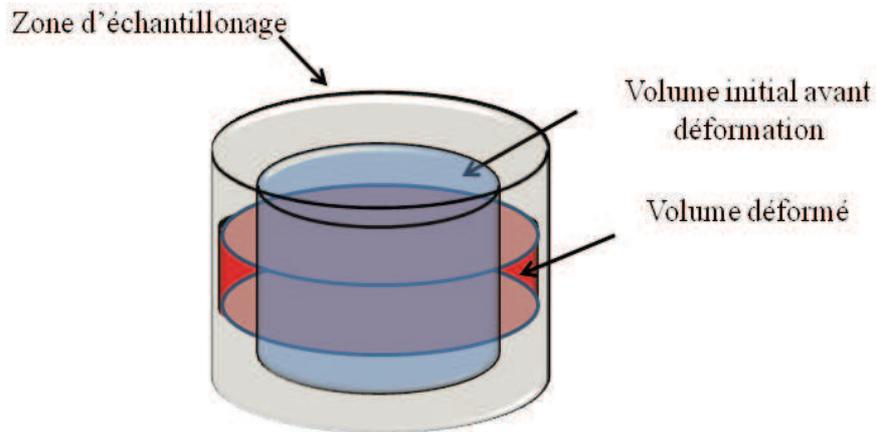


Figure 50 : Déformation du volume de la zone d'échantillonnage

Afin d'obtenir le même volume balayé, les coupes d'images entre deux paliers de compression sont comparées visuellement ou analysées par une technique de corrélation d'images si nécessaire. Au final dans les modèles 3D reconstruits nous avons supprimé certaines des premières ou des dernières coupes d'images et nous avons redécoupé les modèles pour obtenir exactement la même structure volumique suivant 0, 5, 10, 20 et 30% de compression.

Nous obtenons au final un modèle exact reconstruit pour chaque palier de compression.

L'observation des mécanismes de déformation de ces modèles n'est pas aisée. Une première analyse des séries de coupes d'images est d'abord effectuée en 2D. La Figure 51 donne le suivi de deux coupes du modèle initial suivant les paliers de compression. Les cellules sont représentées par les pixels noirs et la position des deux coupes dans les modèles ne change pas. En mesurant la corrélation entre ces images on peut donner l'écart en niveau de couleur représentant la déformation des cellules (image 1-6).

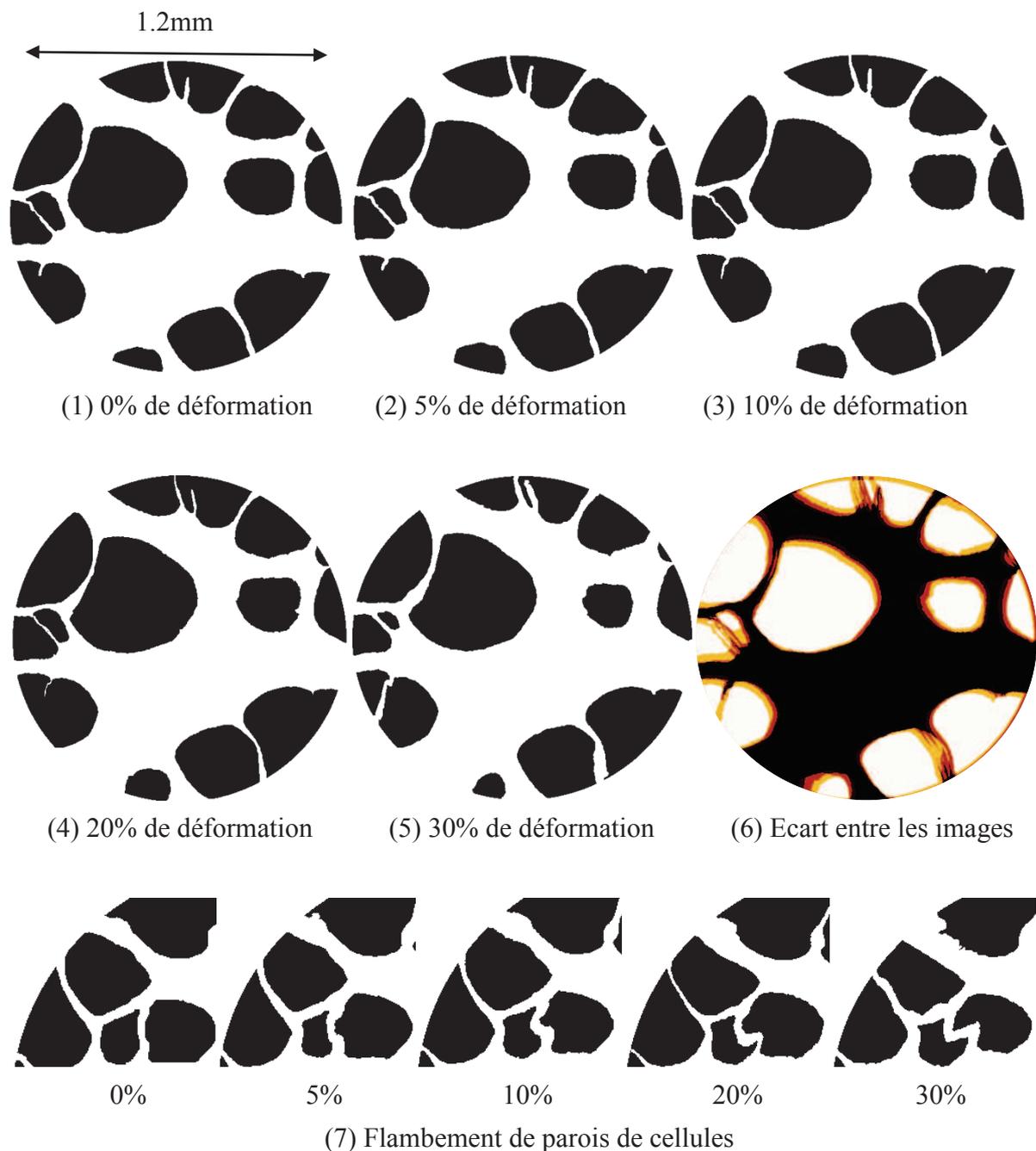


Figure 51 : Suivi de coupes d'images de l'échantillon suivant les paliers de déformations

On peut observer localement la déformation et le déplacement des cellules dans des directions aléatoires mais aussi la flexion, l'étirement ou le flambement de certaines parois (Figure 51 (7)). Nous pouvons aussi observer le rétrécissement de certaines cellules dans les déformations. Cela peut être expliqué par la compression des cellules qui sont aplaties suivant la direction de charges, ce qui donne l'impression visuel de cette variation de taille sur la même position de coupe. L'analyse en 3D est alors plus pertinente et apporte plus de visibilité dans l'observation des mécanismes de déformation.

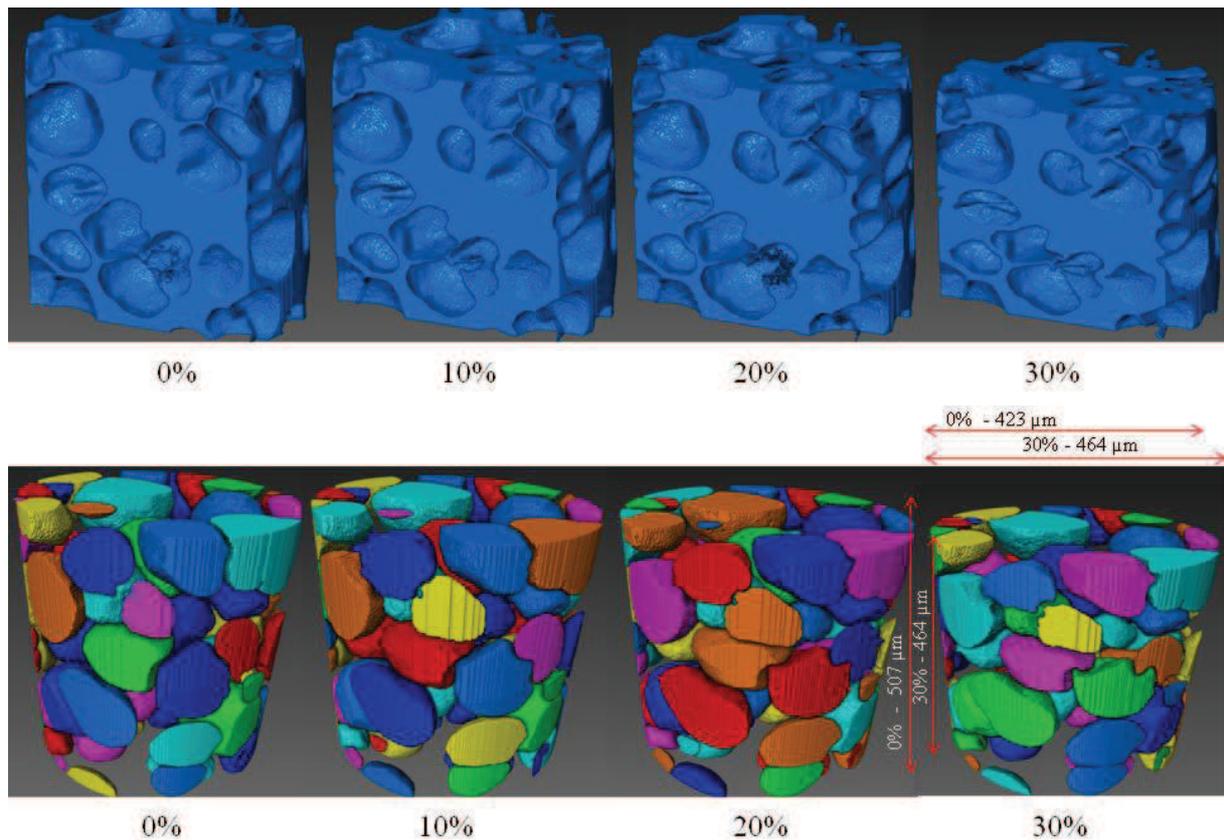


Figure 52 Modèles reconstruits (matière et cellules) suivant les paliers de compression

La Figure 52 montre le suivi de la déformation d'une coupe 3D du modèle de 0 à 30% ainsi que la compression des cellules. Nous remarquons bien la compression du modèle d'un volume initiale de $85.10^{+6} \mu\text{m}^3$ à un volume de $65.10^{+6} \mu\text{m}^3$ soit une compression de 25%. Nous observons aussi l'aplatissement des cellules entièrement reconstruites suivant la direction de charge et leur étirement suivant le plan orthogonal (transverse). Les mécanismes de déformations des cellules sont principalement une combinaison simultanée d'étirements et de flexions de leurs parois : Les parois verticales qui sont dirigées suivant la direction de charge flambent instantanément. Les parois dirigées suivant la direction horizontale s'étirent et perdent en épaisseur.

Il a aussi été très important pour nous de pouvoir suivre et analyser individuellement la déformation de chacune des cellules suivant les paliers de compressions. Pour ce faire il est nécessaire de corréliser les images 3D des mousses entre elles. Nous avons alors développé un algorithme sur MATLAB qui récupère et analyse les données des cellules de chaque modèle (barycentre, diamètre équivalent, volume, sphéricité...) pour suivre leur déplacement. Le calcul du déplacement d'une cellule d'une mousse donnée après chaque palier de compression est basé sur la recherche des coordonnées du centre de la cellule la plus proche à cette cellule dans le modèle suivant. Ce calcul est effectué en supposant que le déplacement du centre de la cellule est inférieur à son rayon équivalent. Nous avons ainsi trié et gardé les 80 plus grandes cellules dans chaque modèle puis tracé l'évolution des cellules suivant 0%, 10%, 20% et 30% de déformation.

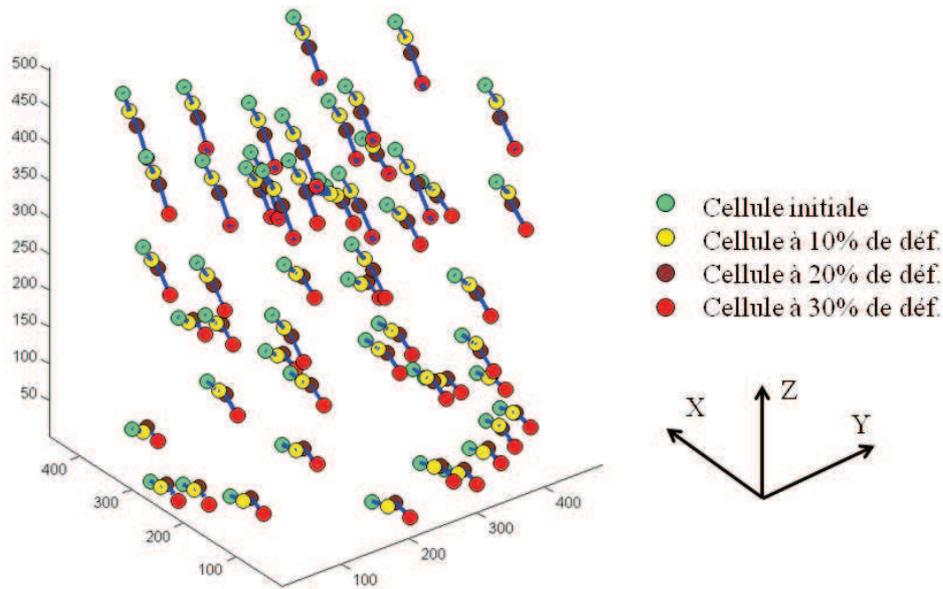


Figure 53 : Déplacements des centres des cellules suivant les paliers de déformations (en pixels)

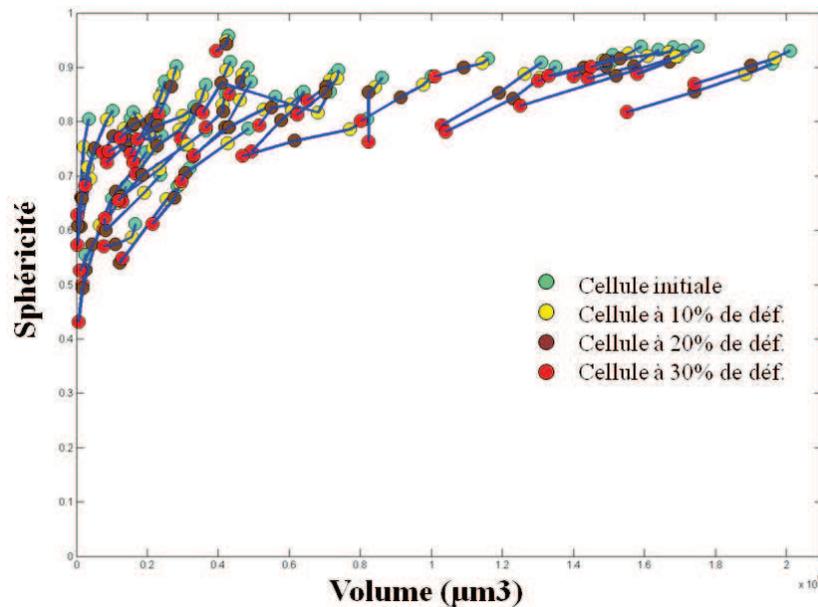


Figure 54 : Evolution de la sphéricité en fonction du volume de chaque cellule suivant les paliers de déformations

La Figure 53 donne le déplacement des centres des cellules et la Figure 54 donne l'évolution de la sphéricité en fonction du volume. Ces deux courbes donnent une représentation de l'évolution de la taille, de la forme et de la position des cellules à l'échelle de la microstructure. Globalement, nous observons une diminution de la sphéricité parallèlement à une réduction du volume des cellules, ce qui était tout à fait prévisible. Les déplacements des centres des cellules sont assez homogènes. On note un déplacement plus important entre 20 et 30% de déformation sachant que les cellules du dessus de l'échantillon se déplacent plus. Cependant, individuellement, les cellules ne suivent pas les mêmes tendances dans leurs

déformations. Certaines cellules ne se déforment pratiquement pas de 0 à 10% et diminuent brusquement en volume alors que d'autres sont plus régulières dans leur manière de se déformer. La vitesse de déformation dépend de la taille de la cellule. La Figure 55 donne la déformation totale de chaque cellule en fonction de son volume. La distribution des points de la courbe montre bien que plus les cellules sont grosses plus leur déformation totale est grande.

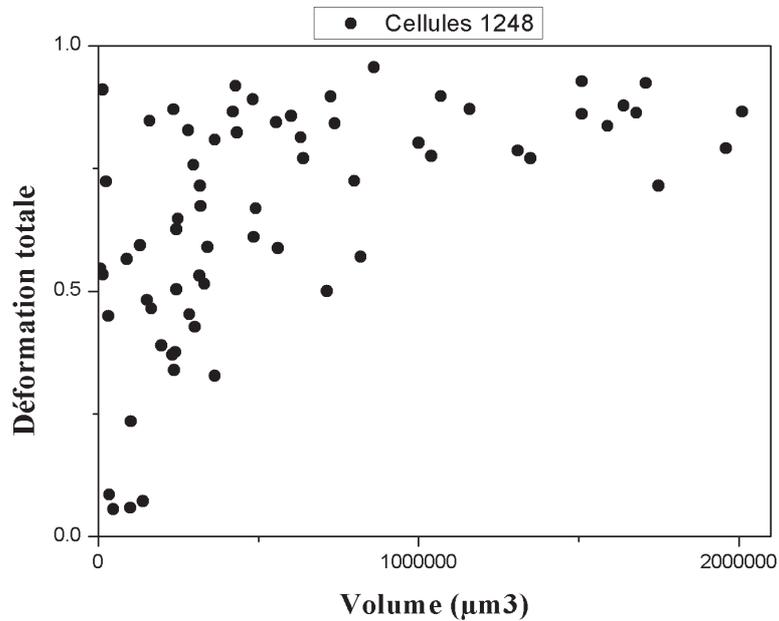


Figure 55 : Déformation totale des cellules en fonction de leur volume

Cette tendance peut être expliquée par la répartition de masse autour des cellules ainsi que par la répartition des charges dans l'échantillon. En effet comme les parois ne sont pas de mêmes épaisseurs, les charges ne sont pas homogènement réparties autour des cellules qui se déforment alors différemment. Dans un agglomérat de grosses cellules, les contraintes sont beaucoup plus concentrées car il y a quantitativement moins de parois. Ainsi ces grosses cellules entourées de parois de différentes épaisseurs se déforment très rapidement à cause des plus petites parois qui cèdent vite sous les contraintes. Une analyse des champs de déplacement et des champs de déformations suivant la répartition de matière dans la structure permettrait de mieux décrire ces tendances grâce notamment à la corrélation d'images en volume.

2.3. Conclusion

Ce deuxième chapitre a été consacré à la caractérisation expérimentale de certaines mousses polymères fournies par la société INTEREP. Cette caractérisation s'articule autour de deux points essentiels. D'une part des essais en traction, compression et cisaillement ont été effectués sur ces mousses et les matériaux constitutifs des parois ont été caractérisés en compression. Ces caractérisations nous ont permis de révéler le comportement mécanique en relation avec une architecture existante de mousse. De plus, la caractérisation du comportement mécanique des matériaux des mousses, et notamment, la détermination de la température de transition vitreuse, nous a permis de mieux interpréter le caractère rebondissant ou absorbant observé dans nos mousses en fonction des différentes natures des matériaux constitutifs. D'autre part, la morphologie de leur structure a été étudiée d'abord en 2D puis en 3D grâce à l'apport de la tomographie X. Les modèles ont été reconstruits par un ensemble de traitements d'images spécifiques permettant la segmentation et l'identification des cellules pour une analyse statistique de leur distribution de taille, de forme et de position dans la microstructure. En parallèle, nous avons développé des outils de morphologie mathématique pour analyser la répartition de matière dans les parois des modèles 3D. Enfin des essais de compression in situ nous ont permis de mieux observer les mécanismes de déformation tel que la flexion ou l'étirement des parois des mousses au delà du domaine linéaire. Nous avons même pu suivre et analyser la déformation de chacune des cellules dans l'échantillon suivant les paliers de compression et observer certaines tendances relatives à leur vitesse de déformation.

Une étude importante que l'on a souhaité mener est d'analyser et de comprendre l'impact de différentes distributions de tailles de cellules et de morphologies pour une même porosité sur le comportement mécanique. Le processus de fabrication qui génère la structure de la mousse à partir d'une ébauche expansible est relativement complexe à moduler pour fabriquer expérimentalement des mousses polymères de mêmes porosité mais de morphologies différentes. Dans ce cas précis, un inconvénient est que l'apport essentiel de la tomographie X est restreint par la nature et la morphologie des mousses fabriquées. Nous avons alors développé un générateur de microstructures cellulaires représentatives à partir d'une description thermodynamique du processus de fabrication de mousses polymères. Ce générateur fait l'objet du chapitre suivant.

3.Chapitre 3 : Elaboration d'un générateur de microstructures basé sur le processus de fabrication des mousses polymères

3.1. Introduction

Dans ce chapitre nous décrivons notre générateur de microstructure qui est basé sur un modèle capable de décrire physiquement le processus de formation des structures cellulaires lors de la fabrication des mousses polymères. Ce modèle physique est ponctué par un simulateur numérique permettant la génération et le suivi de l'évolution de microstructures irrégulières de la première étape de nucléation des cellules jusqu'à l'évolution et la maturation vers la structure finale.

3.1.1. Objectifs

La plupart des études de morphologies de structures cellulaires ou de leur comportement mécanique s'intéresse principalement à celles de très faible densité relative [77][78][79]. Très peu d'études ont pu être menées visant à étudier la morphologie de la microstructure en fonction de la densité ou l'impact de différentes distributions de taille des cellules à porosité égale. De plus les topologies des microstructures à très grandes porosités sont souvent modélisées par des représentations purement géométriques en adoptant les modèles de Kelvin, les cellules de Voronoi ou d'autres algorithmes de distribution de sphères rigides.

L'objectif principal est alors de pouvoir générer à souhait différents types de géométries de microstructures cohérentes avec les microstructures réelles observées expérimentalement. Les morphologies des microstructures générées balayent un très large spectre de porosité allant de 20% à plus de 95%. La distribution de taille, de forme des cellules ainsi que leur répartition spatiale peuvent aussi largement varier pour donner des microstructures types « wet closed cells » jusqu'aux microstructures types « dry closed cells » telles que les écumes de bulles de savon, les mousses de polyuréthanes à très grande porosité..., élargissant ainsi considérablement le domaine d'étude des microstructures des mousses.

L'objectif secondaire est de relier la morphologie de la microstructure d'une mousse aux différents paramètres du procédé et aux caractéristiques du mélange polymère lors du processus de fabrication en amont. La fabrication des mousses polymères résulte d'une réaction de polymérisation d'un mélange composé du matériau polymère brut, des agents de

nucléations, des agents gonflants et d'autres réactifs permettant la bonne tenue globale de la mousse. La structure poreuse est obtenue grâce au couplage de cette réaction à un dégagement gazeux issu de la réaction des agents gonflants chimiques ou physique dans le mélange et permettant la croissance des cellules nucléées. Cependant, du fait de la complexité des couplages thermo-chimio-rhéologiques (réactions chimiques, évolution rapide et hétérogène de la température, couplages rhéologiques forts, écoulements du mélange...) prenant place lors de la fabrication de la mousse, il est extrêmement difficile de décrire de façon précise la formation, l'évolution et la stabilisation de la structure cellulaire. Des modèles ont été proposés prédisant la nucléation et la croissance de cellules dans des mélanges polymères fluides [18][15][80]. Mais la plupart de ces études n'intègre pas l'interaction des cellules dans la modélisation du comportement du mélange polymère et/ou ne donne pas une représentation géométrique de la microstructure finale obtenue, se cantonnant juste à la prédiction de l'évolution de la taille des cellules, de la pression dans le mélange ou de la densité relative de la mousse. Notre modèle se distingue particulièrement par la modélisation de l'écoulement fluide du mélange lors de l'expansion de la mousse combiné à la nucléation spatio-temporelle des cellules et le dégagement gazeux dans celles-ci pour former la structure cellulaire qui se déforme et évolue vers la microstructure finale. Le modèle physique et le générateur de microstructure développés nous permettront alors d'aborder la compréhension du mécanisme de déformation des mousses sous un angle différent des études publiées jusqu'alors.

3.1.2. Description générale du processus de fabrication de mousses polymères

Dans l'élaboration d'une mousse, on peut observer trois phases : une première phase de nucléation durant la période de chauffe. Une deuxième phase correspondant à la croissance des cellules durant l'expansion du mélange libéré. Finalement une dernière phase de murissement et de stabilisation donnant la structure finale du mélange polymérisé (Figure 56).

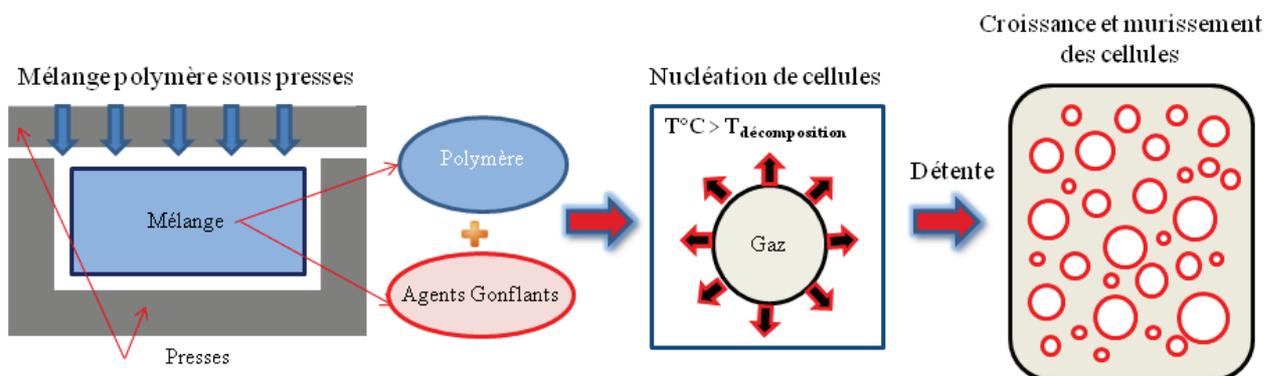


Figure 56 : Modélisation du processus de fabrication des mousses polymères

Nous avons décrit les lois physiques qui entrent en compte dans chacune des phases en fonction des propriétés du mélange et des paramètres du process.

3.2. Influence de la température

La température de chauffe est très grande et est supérieure au point de fusion de beaucoup de polymères. Nous supposons que le mélange composé du polymère et d'une dizaine d'autres réactifs est toujours à l'état solide à la pression de compression mais passe à un état fluide très visqueux des l'ouverture des presses. L'expansion de la mousse à l'air ambiant crée alors des phénomènes de diffusions et de convection de la température dans tout le mélange. La température influe ainsi considérablement sur les caractéristiques du processus de moussage et les propriétés physiques du mélange telles que la nucléation des cellules, la viscoélasticité ou la conductivité. Nous évoquerons dans cette partie les principales lois de dépendance de ces variables en fonction de la température.

3.2.1. La nucléation

La nucléation des cellules donne le nombre de cellules total ainsi que leur arrangement au cours du processus de fabrication. La nucléation advient principalement dans la première phase de chauffe du mélange et dépend donc de la température initiale de compression du mélange polymère. Il est cependant très difficile d'observer expérimentalement l'évolution de la nucléation durant le process à cause de la taille critique des cellules à leur naissance. Pour décrire l'influence de la température sur la nucléation nous pouvons utiliser la théorie classique de nucléation (CNT) qui donne une description universelle et simple de la transition irréversible d'un milieu homogène vers un milieu hétérogène par la création spontanée d'une nouvelle phase thermodynamique donnée par les germes. Elle est basée sur l'énergie libre du système formé par le milieu continu homogène de phase 1 et le germe de rayon critique r_* de phase 2. Le taux de nucléation I des cellules est de la forme :

$$I(T) = N_s P \exp\left(\frac{-\Delta W_*}{kT}\right) \quad (\text{eq. 3.1})$$

I donne le nombre de nucléation par unité de temps. Il dépend de la température T du milieu. N_s est le nombre de sites de nucléation potentiel, P est la probabilité qu'une cellule de rayon critique r_* se forme autour d'un site de nucléation et ΔW_* est l'augmentation de l'énergie libre du système due à la formation d'une cellule. Gibbs en 1876 [81] a été parmi les premiers à étudier le concept de CNT et à donner une description de l'équilibre entre deux phases. Entre 1934-1949, Becker et Döring, Kaischew et Stranski, Turnbull et Fisher ont donné les formes actuelles de la théorie. Plus tard Cole et Robert [82] ont entrepris des examens approfondis pour vérifier cette théorie qui peut être appliquée dans le cadre des mousses polymères. Forest et Ward l'ont par exemple utilisé pour examiner la vitesse de nucléation de cellules de gaz dans un fluide liquide supposé homogène [83].

3.2.2. La viscoélasticité

3.2.2.1. La viscosité

La viscosité peut être définie comme la résistance à l'écoulement uniforme et sans turbulence se produisant dans la masse d'une matière. La viscosité dynamique correspond à la contrainte de cisaillement qui accompagne l'existence d'un gradient de vitesse d'écoulement dans la matière [84]. Son unité est le Pascal seconde, noté Pa.s. Pour un liquide (au contraire d'un gaz) la viscosité tend généralement à augmenter lorsque la température diminue. Lorsque cette viscosité augmente, la capacité du fluide à s'écouler diminue.

Un polymère présente deux comportements rhéologiques différents suivant le gradient de vitesse atteint : Newtonien ou rhéofluidifiant. Lorsque le matériau est un liquide newtonien c'est-à-dire lorsque le tenseur des contraintes visqueuses est une fonction linéaire du tenseur des déformations, la viscosité η_T et la température peuvent être reliées par une équation du type Arrhenius [85][86]:

$$\frac{1}{\eta_T} = \frac{1}{A} \exp \left[-\frac{E_A}{R} \frac{1}{T} \right]$$
$$\eta_T = \eta_0 \exp \left[+\frac{E_A}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \right] \quad (\text{eq. 3.2})$$

η_0 est la viscosité à la température T_0 , R est la constante des gaz parfait, l'énergie d'activation E_A caractérise la thermo plasticité du matériau. La viscosité peut varier de $1.10^3 Pa.s$ à $1.10^6 Pa.s$. Plus la valeur de l'énergie d'activation est élevée, plus l'augmentation de la viscosité sur la plage de température considérée est importante. Par contre, lorsque le matériau est rhéofluidifiant, la viscosité diminue lorsque le gradient de vitesse augmente. Cela donne un système de plus en plus fluide, la viscosité dépend alors à la fois de la température et des conditions de mise en mouvement du fluide. Elle est plus complexe à déterminer dans le cas de notre étude du à l'hétérogénéité de l'écoulement du mélange polymère.

3.2.2.2. Le module élastique

L'incorporation de lois de comportement à la fois visqueuse et élastique pour la modélisation des procédés de transformation des polymères pose de nombreuses difficultés, et de ce fait des modèles inélastiques ont presque exclusivement été utilisés lors des simulations d'écoulements d'intérêt industriel. Or l'élasticité des polymères fondus devient particulièrement importante dans les géométries comportant une contraction ou une expansion abrupte dans la direction de l'écoulement [87]. Il est alors nécessaire de rendre compte de l'impact du module élastique dans la formation de la structure cellulaire.

Nous voulons donner une description de l'évolution du module élastique dans une plage de température allant de la température ambiante (25°C) jusqu'à la température de fusion $T_f > T_g$ à la pression ambiante. La dépendance en température du module d'élasticité utilisé dans

beaucoup de modèles est généralement donnée par une description phénoménologique. Dans la région vitreuse, le module de Young initial E_0 des polymères amorphes diminue avec l'augmentation de la température de la manière suivante [88]:

$$\log E_T = \log E_0 - a(T - T_0)$$

E_0 est le module Young à la température T_0 , a est une constante caractérisant la sensibilité à la température. Cependant, cette équation n'est pas valide dans le voisinage de la région de transition vitreuse due à la chute brutale de rigidité entre l'état vitreux et l'état caoutchouteux. Un modèle sensiblement meilleur a été proposé par Drozdov [89] pour prendre en compte cet effet de la transition vitreuse, mais ne permet pas de décrire fidèlement la région caoutchouteuse. Un modèle valable à partir de la région entièrement vitreuse jusqu'à la région complètement caoutchouteuse a été développé par Mahieux et Reifsnider [90]. La base de leur approche est l'influence de la température dans les liaisons secondaires dans les polymères. Nous n'adopterons pas ce modèle très complexe dans la description physique du processus. Pour traduire la diminution du module de Young en fonction de la température du début du processus à la fin de l'expansion de la mousse, nous utiliserons l'expression :

$$E_T = E_0 \exp[a(T_0 - T)] \quad (\text{eq. 3.3})$$

Dans le paragraphe 3.3.3.2 nous développerons plus en détail l'expression du module d'élasticité en fonction du module de Young E_T selon le type de déformation rencontré dans le processus de moussage.

Au final, la viscoélasticité du mélange polymère est très dépendante de la température. Cependant, que ce soit en fluage ou en relaxation de contrainte, la réponse à une sollicitation dépend du temps (ou de la fréquence, lors d'expériences dynamiques). Et il est donc nécessaire de décrire la dépendance temporelle de la viscoélasticité ou de bien modéliser l'évolution de la température du mélange au cours du temps. Nous développerons plus en détail l'évolution temporelle des caractéristiques du mélange dans la modélisation du processus de fabrication.

3.3. Modélisation du processus

Dans cette partie nous décrivons le développement du modèle physique. Nous avons émis certaines hypothèses dans la modélisation du processus de fabrication des mousses polymère. D'abord le mélange est considéré comme un fluide viscoélastique durant toute la phase d'expansion. Cela nous a permis de mieux définir l'évolution des propriétés du mélange en fonction de la température puis en fonction du temps.

3.3.1. Modélisation de la température en fonction du temps

Les seules variables indépendantes du modèle physique sont le temps et les coordonnées spatiales. Toutes les autres variables dépendent du temps ou de la zone localisée dans le mélange. La température est aussi une variable dépendante. Elle décroît de $X^\circ\text{C}$ à une température de moins de 100°C juste à la fin de l'expansion de la mousse. Cette chute de température est principalement due à la détente du gaz à l'intérieur des cellules et au caractère endothermique des réactions chimiques, de la polymérisation et/ou de la réticulation durant l'expansion. La chaleur peut alors être convectée-diffusée par l'écoulement du mélange.

Nous voulons modéliser brièvement l'évolution de la température du mélange au cours du temps. Il existe des lois permettant de décrire l'évolution de la température d'un corps dans un milieu extérieur. Nous pouvons citer la loi de refroidissement de Newton, énoncée par Sir Isaac Newton qui établit que le taux de perte de chaleur d'un corps est proportionnel à la différence de température entre le mélange et le milieu extérieur supposé à une température constante T_{ext} [91].

$$\frac{dT}{dt} = C_T(T - T_{ext})$$

$$T(t) = T_{ext} + (T_0 - T_{ext})\exp(-C_T t)$$

C_T est une constante positive. $1/C_T$ définit le temps caractéristique du transfert thermique. La température décroît exponentiellement de T_0 à la température T_{ext} . Cette loi n'est cependant pas adaptée à notre modèle sachant que la chute de température n'est pas seulement due à un transfert thermique entre le mélange et le milieu ambiant. A défaut de trouver un modèle réaliste, nous avons adopté l'équation (eq. 3.4) qui donne une diminution linéaire de la température de T_0 à la température juste à la fin de l'expansion de la mousse T_1 .

$$T(t) = T_0 - \frac{(T_0 - T_1)}{t_1} t \quad (\text{eq. 3.4})$$

Cette loi n'est pas forcément précise mais peut être adoptée pour déterminer la dépendance temporelle des variables telles que la viscosité ou le module élastique.

3.3.2. La nucléation

3.3.2.1. Nucléation temporelle

Comme cela a été vu dans le premier chapitre, un modèle réaliste doit intégrer la nucléation des cellules dans le temps sachant que leur croissance et leur nucléation peuvent se passer simultanément. Notre objectif est de définir le type de courbe paramétrable qui correspond le mieux à la nucléation des bulles $N(t)$. Nous avons d'abord adapté la théorie classique de nucléation à notre modèle en prenant en compte l'évolution de la température en fonction du

temps. Une loi de distribution normale paramétrable est alors adoptée pour donner différentes tendances de nucléation :

$$N_c(t) = N_0 + N_1 e^{-b(t-t_1)^2} \quad (\text{eq. 3.5})$$

La nucléation temporelle N_c est fonction du nombre de cellules déjà nucléées à l'instant initial de la simulation N_0 , du nombre de cellules maximale de la gaussienne N_1 à l'instant t_1 et du paramètre b donnant l'écart type de la distribution. Avec cette loi plusieurs types de distribution peuvent être obtenus. La cohérence physique de cette loi de distribution dépend du choix des bons paramètres (voir paragraphe 3.4.2.1). Toutes les cellules apparaissent avec un rayon initial et une pression interne identique. De plus ces cellules peuvent apparaître aléatoirement dans toute la matrice. Il est donc tout aussi important de bien décrire où les nouvelles cellules vont nucléer dans la structure en formation.

3.3.2.2. Distribution spatiale

Nous avons développé un modèle de nucléation homogène qui reprend les principes de la zone d'influence (IVA) autour des cellules [15][92]. Chaque cellule exerce une influence sur une calotte sphérique l'entourant. Dans la plupart des modèles de nucléation et de croissance des cellules cette zone a pour but de donner une mesure exacte de la quantité de gaz qui entre dans les cellules. Elle évolue au cours du temps en fonction de la concentration de gaz au voisinage des cellules. Cependant dans notre modèle la diffusion du gaz ne se fait pas depuis le mélange vers les cellules. On suppose que les dégagements gazeux sont générés au sein même des particules de nucléation homogènement réparties dans toute la matrice et que pour chaque cellule tout le gaz comprimé est initialement généré à sa nucléation. Il n'y plus de diffusion de gaz. Ainsi dans la zone d'influence de chaque cellule nous admettons simplement qu'il ne peut y avoir de nucléation de bulles qui risqueraient de fusionner ou de coalescer avec la cellule plus grande déjà en place. La zone d'influence est déterminée en fonction des caractéristiques du matériau et des conditions du process (voir paragraphe 3.4.1.3). Elle est constante et identique pour toutes les cellules quelle que soit leur taille. La Figure 57 est une illustration de la répartition spatiale des cellules en fonction de la zone d'influence des cellules et la zone potentielle de nucléation.

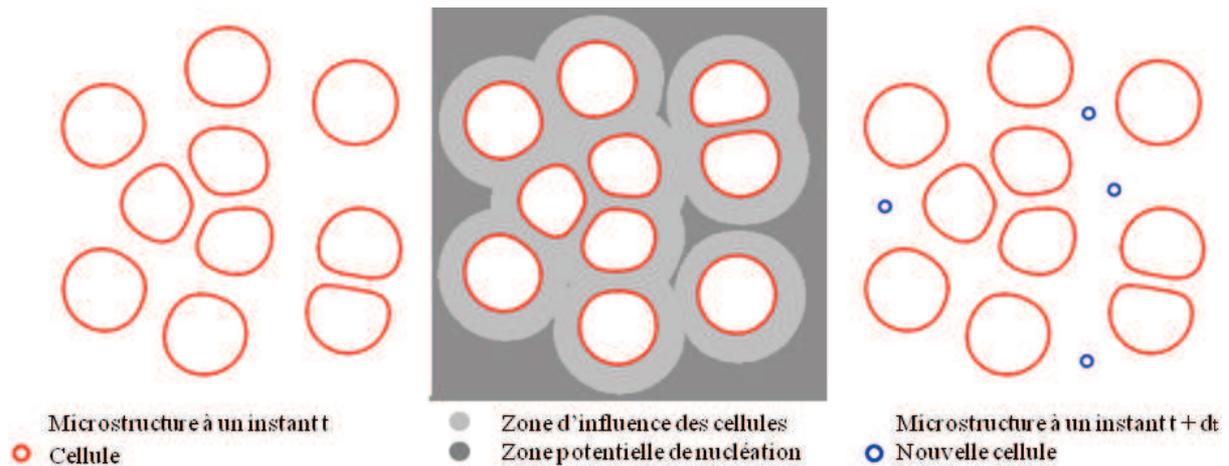


Figure 57 : Illustration de la répartition spatiale des cellules

La zone potentielle de nucléation à un instant t donnée est la surface théorique dans laquelle peuvent apparaître les nouvelles cellules. Le nombre de ces cellules est donné par la distribution temporelle et les positions de leur centre sont déterminées suivant un algorithme de choix aléatoire qui peut modéliser à la fois une nucléation homogène ou hétérogène.

3.3.3. L'expansion

La croissance des cellules a lieu seulement après la nucléation de celles-ci. Dans le processus étudié, l'expansion du mélange polymère survient instantanément à l'ouverture brusque des presses. On suppose que le mélange passe d'un état solide à un état liquide très dense. Le gradient de pression qui est alors créé entre le gaz dans le mélange et l'extérieur à pression et à température ambiante est la principale source des forces motrices engendrant la croissance des cellules. Des interactions fortes apparaissent entre ces cellules et en une fraction de seconde la mousse est expansée et stabilisée donnant la structure cellulaire finale dans le mélange solidifié.

Physiquement, l'expansion de la mousse est liée à la pression interne dans les cellules de gaz, aux champs de contraintes dans le mélange avec ses propriétés viscoélastiques et aux forces de tension interfaciales. Afin de bien décrire cette expansion nous avons d'abord étudié les forces qui interagissent sur l'interface gaz-mélange d'une cellule unique en expansion libre dans un milieu très grand de matière du mélange. Ensuite nous avons intégré ce modèle de croissance dans un système multicellulaire où la nucléation et la croissance des cellules peuvent survenir simultanément.

En considérant une cellule de gaz, les principales forces interagissant à l'interface sont :

- Les forces engendrées par la pression interne dans la cellule
- Les forces volumiques de réaction du mélange polymère.

- Les forces de tensions superficielles à l'interface

L'équation bilan de la quantité de mouvement appliquée à l'interface d'une cellule donnée est alors de la forme :

$$\rho \frac{D^2 \vec{u}}{dt^2} = -\vec{\nabla} P + \vec{\nabla} \cdot \vec{\sigma} + \vec{T}_{sup} \quad (\text{eq. 3.6})$$

$\vec{\nabla} P$ est le gradient de pression à l'interface engendré par la différence de pression entre d'un côté le gaz dans la cellule et de l'autre le mélange. $\vec{\nabla} \cdot \vec{\sigma}$ donne la divergence du tenseur des contraintes viscoélastiques dans le mélange et \vec{T}_{sup} traduit les forces de tension superficielles. L'influence de la gravité n'est pas prise en compte.

L'équation est dérivée des équations Navier Stokes [93]. La résolution de cette équation aux dérivées partielles non linéaires est ardue. Jusqu'à aujourd'hui, il n'a pas encore été démontré l'existence d'une solution analytique de cette équation lorsqu'elle n'est pas simplifiée. D'ailleurs la résolution des équations de Navier Stokes fait partie des problèmes du prix du millénaire qui sont un ensemble de sept défis mathématiques réputés insurmontables, posés par l'Institut de mathématiques Clay en 2000. La résolution de chacun des problèmes est dotée d'un prix d'un million de dollars américains offert par l'institut.

Une résolution analytique approchée peut cependant être obtenue en usant de certaines approximations spécifiques. Dans la suite de ce chapitre nous allons développer individuellement l'influence de chacune de ces forces interagissant à l'interface. Nous supposons par ailleurs la pression du gaz dans les cellules et la pression externe dans le mélange polymère fluide homogènes et que toutes les propriétés physiques et géométriques sont isotropes. Nous parlerons plutôt de bulle à la place de cellule dans l'étude du modèle unicellulaire.

3.3.3.1. La pression interne

La quantité de matière gazeuse contenue dans la bulle est constante tandis que la pression évolue constamment au cours du temps. Le gaz (CO₂ ou N₂) est modélisé comme un gaz parfait. La pression interne diminue de la pression de compression initiale de la matrice à une pression finale bornée par la pression ambiante. Pour déterminer la pression interne, nous modélisons le gaz à l'intérieur de la bulle comme un gaz parfait. En supposant la température du gaz quasi constante, la loi de Boyle-Mariotte spécifie que la pression est inversement proportionnelle au volume et inversement :

$$P_{gaz}(t)V(t) = P_{in}V_{in}$$

$$\vec{P}_{gaz}(R, t) = \frac{P_{in}V_{in}}{V(t)} \vec{u}_r \quad (\text{eq. 3.7})$$

P_{in} est la pression initiale avant l'ouverture des presses et V_{in} le volume de la bulle à la nucléation. La pression du gaz à l'interface $\vec{P}_{gaz}(R, t)$ ne dépend que du volume de la bulle évoluant au cours du temps (t). Elle est normale à la surface de la bulle et est dirigée vers le mélange.

3.3.3.2. La pression externe dans le mélange

Dans cette partie nous commencerons par modéliser le comportement du mélange, ensuite nous décrirons l'influence de la température sur le mélange et sa viscosité pour finir par déterminer l'évolution de la contrainte en fonction des paramètres process et des caractéristiques du mélange.

3.3.3.2.1. Modélisation physique du comportement du mélange

En relâchant les presses comprimant le mélange, la pression de celui-ci retombe rapidement à la pression ambiante. Cette pression étant supposée homogène, la chute de pression, amorcée depuis les contours extérieurs du mélange vers l'interface de la bulle ne dépend que du temps. Quand un gradient de pression est créé à l'interface, le système n'est plus en équilibre et la matière se déplace progressivement avec la bulle qui grossit en même temps. Nous avons adopté le modèle rhéologique de Kelvin Voigt pour décrire le comportement viscoélastique d'une particule donnée du mélange fluide [94], [95], [93]. Ce modèle représenté par un amortisseur purement visqueux et un ressort hookéen mis en parallèle est rapide et simple à mettre en œuvre. La Figure 58 donne une illustration de ce modèle. En perspectives, d'autres modèles plus complexes et plus représentatifs du comportement du fluide pourront être utilisés (modèle Oldroyd-B par exemple).

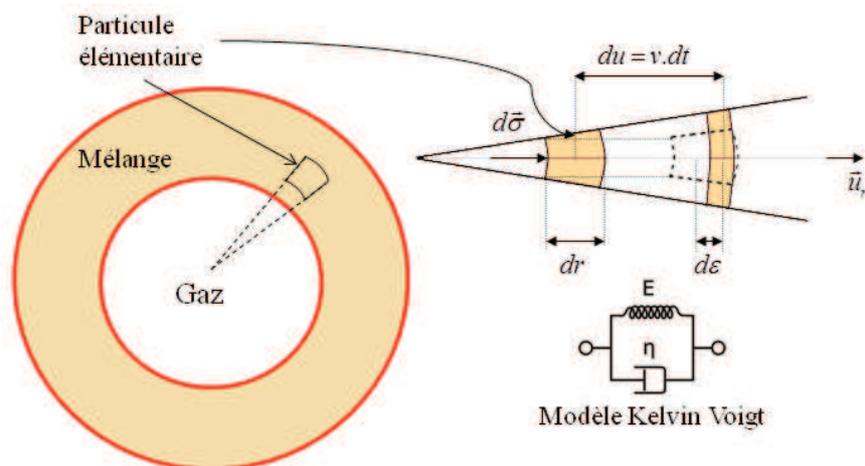


Figure 58: Modélisation du mélange polymère fluide

Les caractéristiques du mélange sont données par sa viscosité dynamique η , son module d'élasticité et sa masse volumique ρ . La viscosité dépend de la température : $\eta = \eta(T) =$

η_T . Comme la température du processus décroît, la viscosité du mélange augmente diminuant sa capacité d'écoulement.

Une attention particulière doit être portée à l'expression du module d'élasticité adapté à l'étude. En effet le module d'élasticité du mélange peut être :

- le module d'Young E
- le module de cisaillement G
- le module d'élasticité isostatique ou de compressibilité K
- le module d'onde de compression L ou M

Chacun de ces modules d'élasticité correspond à un type de déformation spécifique. Dans le cas de notre modèle unicellulaire (Figure 58), le mélange se déforme en gardant sa forme sphérique initiale. Nous montrons dans la suite que le champ de contraintes normales est radial et isotrope. Nous avons un champ de déformation isostatique car identique dans toutes les directions. Le module d'élasticité isostatique K_T (du matériau volumique) est utilisé pour exprimer le comportement élastique de l'écoulement. K_T peut être exprimé en fonction du module de Young E_T :

$$K_T = \frac{1}{3} \frac{E_T}{1-2\nu} \quad (\text{eq. 3.8})$$

K_T dépend du coefficient de Poisson ν et évolue aussi en fonction de la température T du mélange. Ce module tend vers l'infini quand le coefficient de poisson tend vers 0.5 pour un mélange polymère totalement incompressible.

Pour la particule de fluide de masse dm , les équations du modèle de Kelvin Voigt sont données par :

$$\begin{aligned} \bar{\sigma}_{Am} &= \eta_T \frac{d\bar{\epsilon}_{Am}}{dt} \quad ; \quad \bar{\sigma}_{Ress} = K_T \bar{\epsilon}_{Ress} \quad ; \quad \bar{\sigma}_{Tot} = \bar{\sigma}_{Am} + \bar{\sigma}_{Ress} \quad ; \quad \bar{\epsilon}_{Tot} = \bar{\epsilon}_{Am} = \bar{\epsilon}_{Ress} \\ \bar{\sigma} &= K_T \bar{\epsilon} + \eta_T \dot{\bar{\epsilon}} \end{aligned} \quad (\text{eq. 3.9})$$

L'équation (eq. 3.9) donne la relation entre le tenseur des contraintes $\bar{\sigma}$, le tenseur des déformations $\bar{\epsilon}$ et le tenseur des taux de déformations $\dot{\bar{\epsilon}}$. Ce modèle de comportement mécanique du mélange peut alors être appliqué au calcul du champ de contraintes.

3.3.3.2.2. Etude de l'évolution du champ de contraintes dans le mélange

Nous voulons d'abord déterminer le système d'équations régissant le comportement du mélange en fonction des champs de contraintes, de déformation et de vitesses. Les équations de Navier Stokes appliquées à une particule de fluide dans le mélange polymère sont (Figure 58):

$$\rho \left(\frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + (\vec{v} \cdot \vec{\nabla}) \vec{v} \right) = \rho \left(\frac{D^2 \vec{u}}{Dt^2} \right) = \vec{\nabla} \bar{\sigma} \quad (\text{eq. 3.10})$$

$$\vec{\nabla} \vec{v} = 0 \quad (\text{eq. 3.11})$$

L'équation (eq. 3.10) est l'équation de bilan de quantité de mouvement et l'équation (eq. 3.11) celle de continuité traduisant l'incompressibilité du mélange. \vec{v} est la vitesse de la particule. En coordonnées sphériques dans un repère $(\vec{u}_r, \vec{u}_\theta, \vec{u}_\varphi)$, les tenseurs $\bar{\sigma}$, $\bar{\varepsilon}$ et l'opérateur $\vec{\nabla}$ peuvent être décrites de la manière suivante :

$$\bar{\sigma} = \begin{bmatrix} \sigma_{rr} & \sigma_{r\theta} & \sigma_{r\varphi} \\ \sigma_{r\theta} & \sigma_{\theta\theta} & \sigma_{\theta\varphi} \\ \sigma_{r\varphi} & \sigma_{\theta\varphi} & \sigma_{\varphi\varphi} \end{bmatrix}; \bar{\varepsilon} = \begin{bmatrix} \varepsilon_{rr} & \varepsilon_{r\theta} & \varepsilon_{r\varphi} \\ \varepsilon_{r\theta} & \varepsilon_{\theta\theta} & \varepsilon_{\theta\varphi} \\ \varepsilon_{r\varphi} & \varepsilon_{\theta\varphi} & \varepsilon_{\varphi\varphi} \end{bmatrix}; \vec{\nabla} = \begin{bmatrix} \frac{\partial}{\partial r} \\ \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} \\ \frac{1}{r \sin \varphi} \frac{\partial}{\partial \varphi} \end{bmatrix}$$

Le tenseur des déformations $\bar{\varepsilon}$ peut être aussi exprimé à partir du déplacement \vec{u} de la particule:

$$\bar{\varepsilon} = \frac{1}{2} (\vec{\nabla} \vec{u} + (\vec{\nabla} \vec{u})^T) \quad (\text{eq. 3.12})$$

Le modèle unicellulaire admet une symétrie centrale. La modélisation peut alors être réduite suivant une seule dimension \vec{u}_r . On a:

$$\bar{\sigma} \cdot \vec{u}_r = \sigma_{rr} = \sigma \rightarrow \vec{\nabla} \bar{\sigma} = \frac{\partial \sigma}{\partial r} \vec{u}_r; \bar{\varepsilon} \cdot \vec{u}_r = \varepsilon_{rr} = \varepsilon$$

Et quelques formules d'analyse vectorielle avec l'opérateur ∇ :

$$\vec{\nabla} \vec{A} = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 A_r)$$

$$\Delta \vec{A} = \Delta A_r - \frac{2}{r^2} A_r$$

$$\Delta f = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial f}{\partial r} \right)$$

L'équation de continuité devient:

$$\vec{\nabla} \vec{v} = \nabla v = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 v) = 0 \quad (\text{eq. 3.13})$$

L'expression du champ de vitesses est donc sous la forme :

$$\vec{v}(r, t) = v_r \vec{u}_r = \frac{1}{r^2} f(t) \vec{u}_r$$

Nous voulons surtout connaître l'expression du champ de contraintes $\vec{\sigma}(r, t)$ dans le mélange. Pour ce faire nous prenons la divergence de l'équation (eq. 3.10):

$$\vec{\nabla} \left[\rho_0 \left(\frac{D^2 \vec{u}}{Dt^2} \right) \right] = \Delta \sigma$$

$$\rho_0 \vec{\nabla} \left(\frac{D^2 \vec{u}}{Dt^2} \right) = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial \sigma}{\partial r} \right) \quad (\text{eq. 3.14})$$

avec $\rho \approx \rho_0 = \text{cte}$. Nous pouvons aussi écrire :

$$\frac{D \vec{u}}{Dt} = \frac{Du}{Dt} \vec{u}_r = \frac{\partial \vec{u}}{\partial t} + v \frac{\partial \vec{u}}{\partial r}$$

$$\frac{Du}{Dt} = \frac{\partial u}{\partial t} + \frac{Du}{Dt} \cdot \frac{\partial u}{\partial r}$$

$$= \frac{\partial u}{\partial t} + \frac{\partial u}{\partial t} \cdot \frac{\partial u}{\partial r} + o \left(\frac{\partial u}{\partial t} \cdot \frac{\partial u}{\partial r} \right)$$

$$\frac{Du}{Dt} = \frac{\partial u}{\partial t} \left(1 + \frac{\partial u}{\partial r} \right) + o \left(\frac{\partial u}{\partial t} \cdot \frac{\partial u}{\partial r} \right) \quad (\text{eq. 3.15})$$

Pour de faibles déplacements de la particule :

$$\frac{\partial u}{\partial r} \ll 1$$

Ce qui donne :

$$\frac{Du}{Dt} \approx \frac{\partial u}{\partial t}$$

De même :

$$\frac{D^2 u}{Dt^2} \approx \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} + \frac{\partial u}{\partial t} \cdot \frac{\partial^2 u}{\partial r \partial t}$$

Le terme $\frac{\partial^2 u}{\partial t^2}$ a pour ordre de grandeur $\frac{V}{\tau}$ avec V la vitesse de déplacement de la particule. τ est un temps caractéristique du milieu. Le terme $\frac{\partial u}{\partial t} \cdot \frac{\partial^2 u}{\partial r \partial t}$ a pour ordre de grandeur $\frac{V^2}{c\tau}$ avec c la vitesse de propagation de la perturbation. Pour des vitesses de déplacements très petites devant la vitesse de propagation :

$$V \ll c \rightarrow \frac{V^2}{c\tau} \ll \frac{V}{\tau} \quad (\text{eq. 3.16})$$

On peut alors écrire :

$$\frac{D^2u}{Dt} \approx \frac{\partial^2u}{\partial t^2} \quad (\text{eq. 3.17})$$

L'équation (eq. 3.14) devient alors :

$$\rho_0 \vec{\nabla} \left(\frac{D^2\vec{u}}{Dt^2} \right) = \frac{\rho_0}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} \right) = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial \sigma}{\partial r} \right) \quad (\text{eq. 3.18})$$

L'équation (eq. 3.12) donne l'expression du tenseur des déformations par rapport au déplacement :

$$\begin{aligned} \varepsilon &= \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 u) \\ \frac{\partial \varepsilon}{\partial t} &= \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial u}{\partial t} \right) \\ \frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial t^2} &= \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial^2 u}{\partial t^2} \right) \end{aligned} \quad (\text{eq. 3.19})$$

L'équation (eq. 3.18) devient :

$$\rho_0 \left(\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial t^2} \right) = \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial \sigma}{\partial r} \right) \quad (\text{eq. 3.20})$$

En posant un changement de variable : $\sigma' = r\sigma$ et $\varepsilon' = r\varepsilon$ nous avons :

$$\begin{aligned} \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial \sigma}{\partial r} \right) &= \frac{2}{r} \frac{\partial \sigma}{\partial r} + \frac{\partial^2 \sigma}{\partial r^2} = \frac{1}{r} \frac{\partial^2 \sigma'}{\partial r^2} \\ \rho_0 r \left(\frac{\partial^2 \varepsilon}{\partial t^2} \right) &= \frac{\partial^2 \sigma'}{\partial r^2} \end{aligned}$$

Le système d'équations à trois variables :

$$\rho_0 \left(\frac{\partial^2 \varepsilon'}{\partial t^2} \right) = \frac{\partial^2 \sigma'}{\partial r^2} \quad (\text{eq. 3.21})$$

$$\sigma' = K_T \varepsilon' + \eta_T \frac{\partial \varepsilon'}{\partial t} \quad (\text{eq. 3.22})$$

Pour le traduire en une seule équation finale en fonction du champ σ , nous pouvons dériver l'équation (eq. 3.22) par rapport à t . Dans cette équation la viscosité et le module élastique dépendent de la température et donc du temps :

$$\eta_T = \eta_0 \exp \left[+ \frac{E_A}{R} \left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0} \right) \right] \quad (\text{eq. 3.2})$$

$$K_T = \frac{1}{3} \frac{E_T}{1-2\nu} \quad (\text{eq. 3.8})$$

$$E_T = E_0 \exp[a(T_0 - T)] \quad (\text{eq. 3.3})$$

$$T(t) = T_0 - \frac{(T_0 - T_1)}{t_1} t \quad (\text{eq. 3.4})$$

Les termes $\frac{E_A}{R}$ et la constante a sont déterminés par les conditions aux limites sur la viscoélasticité :

$$\frac{E_A}{R} = \frac{\log \frac{\eta_1}{\eta_0}}{\left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_0}\right)}$$

$$a = -\frac{\log \frac{E_1}{E_0}}{(T_1 - T_0)} \quad (\text{eq. 3.23})$$

η_0 et E_0 sont la viscosité et le module d'élasticité du mélange au début du processus, η_1 et E_1 les viscosité et module élastique à la fin du processus à l'instant t_1 .

En dérivant (eq. 3.22) par rapport à t :

- une première fois :

$$\frac{\partial \sigma'}{\partial t} = \frac{dK_T}{dt} \varepsilon' + K_T \frac{\partial \varepsilon'}{\partial t} + \frac{d\eta_T}{dt} \frac{\partial \varepsilon'}{\partial t} + \eta_T \frac{\partial^2 \varepsilon'}{\partial t^2}$$

- une deuxième fois :

$$\frac{\partial^2 \sigma'}{\partial t^2} = \frac{d^2 K_T}{dt^2} \varepsilon' + \left[2 \frac{dK_T}{dt} + \frac{d^2 \eta_T}{dt^2} \right] \frac{\partial \varepsilon'}{\partial t} + \left[K_T + 2 \frac{d\eta_T}{dt} \right] \frac{\partial^2 \varepsilon'}{\partial t^2} + \eta_T \frac{\partial^3 \varepsilon'}{\partial t^3}$$

Avec :

$$\frac{dK_T}{dt} = \frac{dK_T}{dT} \frac{dT}{dt} = a \frac{(T_0 - T_1)}{t_1} K_T ; \quad \frac{d^2 E_T}{dt^2} = \left[a \frac{(T_0 - T_1)}{t_1} \right]^2 K_T$$

$$\frac{d\eta_T}{dt} = \frac{d\eta_T}{dT} \frac{dT}{dt} = \frac{E_A}{R} \frac{1}{T^2} \frac{(T_0 - T_1)}{t_1} \eta_T ; \quad \frac{d^2 \eta_T}{dt^2} = \left[\frac{E_A}{R} \frac{1}{T^2} \frac{(T_0 - T_1)}{t_1} \right]^2 \eta_T$$

Ce qui donne :

$$\frac{\partial^2 \sigma'}{\partial t^2} = \left[a \frac{(T_0 - T_1)}{t_1} \right]^2 K_T \varepsilon' + \left[2a \frac{(T_0 - T_1)}{t_1} K_T + \left[\frac{E_A}{R} \frac{1}{T^2} \frac{(T_0 - T_1)}{t_1} \right]^2 \eta_T \right] \frac{\partial \varepsilon'}{\partial t} + \left[K_T + 2 \frac{E_A}{R} \frac{1}{T^2} \frac{(T_0 - T_1)}{t_1} \eta_T \right] \frac{\partial^2 \varepsilon'}{\partial t^2} + \eta_T \frac{\partial^3 \varepsilon'}{\partial t^3} \quad (\text{eq. 3.24})$$

Approximations: afin de réduire si possible le nombre de termes de l'équation ci-dessus nous avons calculé leur ordre de grandeur :

- Le module de Young E_T peut augmenter d'un facteur 10 à 100 entre $1.10^5 Pa$ et $1.10^7 Pa$. Pour les matériaux élastomères s'approchant d'un comportement incompressible ($\nu \rightarrow 0.5$), le module élastique K_T est très grand devant le module de Young E_T . Il peut ainsi augmenter d'un facteur 10 à 100 entre $1.10^9 Pa$ et $1.10^{12} Pa$
- La viscosité peut augmenter de $1.10^3 Pa.s$ à $1.10^5 Pa.s$.

- Les paramètres a et $\frac{EA}{R}$ ont pour ordre de grandeur :
 $[a] \approx 0.01 C^{-1}$; $\left[\frac{EA}{R}\right] \approx 100 C$
- La durée t_1 de l'expansion de la mousse est inférieure à la seconde
- τ est le temps caractéristique du processus de moussage. Un ordre de grandeur peut être donné par le temps de relaxation du mélange viscoélastique $\tau \approx \frac{\eta}{K_T}$, soit $[\tau] = 1.10^{-6} s$
- Le premier terme $\left[a \frac{(T_0 - T_1)}{t_1}\right]^2 K_T \varepsilon'$ a pour ordre de grandeur : $1.10^9 Pa. s^{-2}$
- Le deuxième terme $\left[2a \frac{(T_0 - T_1)}{t_1} K_T + \left[\frac{EA}{R} \frac{1}{T^2} \frac{(T_0 - T_1)}{t_1}\right]^2 \eta_T\right] \frac{\partial \varepsilon'}{\partial t}$ a pour ordre de grandeur :
 $[2.10^9 Pa. s^{-1} + 1.10^3 Pa. s^{-1}] \left[\frac{1}{\tau}\right] \approx 2.10^{15} Pa. s^{-2}$
- L'ordre de grandeur du troisième terme $\left[K_T + 2 \frac{EA}{R} \frac{1}{T^2} \frac{(T_0 - T_1)}{t_1} \eta_T\right] \frac{\partial^2 \varepsilon'}{\partial t^2}$ est de :
 $[1.10^9 Pa + 2.10^3 Pa] \left[\frac{1}{\tau^2}\right] \approx 1.10^{21} Pa. s^{-2}$
- Le dernier terme $\eta_T \frac{\partial^3 \varepsilon'}{\partial t^3}$ a pour ordre de grandeur : $1.10^3 Pa. s \left[\frac{1}{\tau^3}\right] \approx 1.10^{21} Pa. s^{-2}$

Les deux derniers termes sont les termes dominant et ils sont de même ordre de grandeur. Nous pouvons écrire :

$$\frac{\partial^2 \sigma'}{\partial t^2} = \left[K_T + 2 \frac{EA}{R} \frac{1}{T^2} \frac{(T_0 - T_1)}{t_1} \eta_T\right] \frac{\partial^2 \varepsilon'}{\partial t^2} + \eta_T \frac{\partial^3 \varepsilon'}{\partial t^3}$$

De plus $K_T \gg 2 \frac{EA}{R} \frac{1}{T^2} \frac{(T_0 - T_1)}{t_1} \eta_T$; soit :

$$\frac{\partial^2 \sigma'}{\partial t^2} = K_T \frac{\partial^2 \varepsilon'}{\partial t^2} + \eta_T \frac{\partial^3 \varepsilon'}{\partial t^3} \quad (\text{eq. 3.25})$$

Le terme $K_T \frac{\partial^2 \varepsilon'}{\partial t^2}$ traduit l'impact de la composante élastique pure du matériau sur l'écoulement et le terme $\eta_T \frac{\partial^3 \varepsilon'}{\partial t^3}$ celle de la viscosité:

En utilisant l'équation (eq. 3.21):

$$\begin{aligned} \frac{\partial^2 \sigma'}{\partial t^2} &= \frac{1}{\rho_0} K_T \frac{\partial^2 \sigma'}{\partial r^2} + \frac{\eta_T}{\rho_0} \frac{\partial^3 \sigma'}{\partial t \partial r^2} \\ \frac{\partial^2 \sigma'}{\partial r^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \sigma'}{\partial t^2} + \frac{\eta_T}{K_T} \frac{\partial^3 \sigma'}{\partial t \partial r^2} &= 0 \end{aligned} \quad (\text{eq. 3.26})$$

Avec :

$$c^2 = \frac{K_T}{\rho_0} \text{ en } m^2 \cdot s^{-2}$$

$\sigma' = \sigma'(r, t)$ est la fonction d'onde de surpression engendrée en même temps que la croissance de la bulle. Elle est fonction de la distance r au centre de la bulle et du temps t . C est la vitesse de propagation de la perturbation dans le mélange. Cette vitesse dépend de la rigidité E_T du mélange, de sa viscosité η_T ainsi que de sa masse volumique ρ_0 . L'équation obtenue est similaire à l'équation de propagation des ondes sonores dans un milieu visqueux et incompressible [96]. Les deux premiers termes de l'équation définissent l'équation de d'Alembert décrivant la propagation spatio-temporelle d'une onde [97]. Le troisième terme rend compte des mécanismes d'amortissement ou d'atténuation sous l'effet de la viscoélasticité du mélange. L'amplitude de la perturbation va diminuer au fur et à mesure qu'on s'éloigne de la bulle et l'oscillation va s'arrêter naturellement au bout d'un certain temps.

Dans ce premier modèle physique, nous voulions nous affranchir de toute résolution numérique à ce stade pour donner une expression formelle du champ de contraintes. La résolution directe n'est cependant pas aisée car les facteurs η_T et K_T dépendent du temps. Nous pouvons la résoudre en considérant des intervalles de temps $\Delta t > \tau$ sur lesquels ces variables sont supposées constantes. Cet intervalle de temps doit être suffisamment grand pour permettre au champ de contraintes de s'établir dans tout le mélange. Une forme de solution harmonique de cette équation est alors donnée par :

$$\sigma'(r, t) = \sigma_0 e^{-\alpha r - \beta t} \cdot e^{i(\omega t - kr)}$$

$$\omega = kc$$

Avec : $\frac{\partial^2 \sigma'}{\partial r^2} = (\alpha + ik)^2 \cdot \sigma'$; $\frac{\partial^2 \sigma'}{\partial t^2} = (-\beta + i\omega)^2 \cdot \sigma'$; $\frac{\partial^3 \sigma'}{\partial t \partial r^2} = (-\beta + i\omega)(\alpha + ik)^2$

Alors l'équation (eq. 3.26) devient :

$$\left[(\alpha + ik)^2 - \frac{(-\beta + i\omega)^2}{c^2} + \frac{\eta_T}{K_T} (-\beta + i\omega)(\alpha + ik)^2 \right] \cdot \sigma = 0$$

Nous obtenons le système d'équations:

$$\alpha^2 - k^2 - \frac{(\beta^2 - \omega^2)}{c^2} - \frac{\eta_T}{K_T} \beta(\alpha^2 - k^2) - 2\alpha k \omega \frac{\eta_T}{K_T} = 0$$

$$2\alpha k + \frac{2\beta \omega}{c^2} + \frac{\eta_T}{K_T} \omega(\alpha^2 - k^2) - 2\alpha k \beta \frac{\eta_T}{K_T} = 0$$

$$\omega = kc$$

C'est un système de trois équations à quatre inconnues. Pour le résoudre il faut une hypothèse de plus sur les paramètres α, β, w et k . Un temps caractéristique du mélange peut être donné par $\tau = \frac{\eta_T}{K_T}$ avec $\beta \propto \frac{1}{\tau}$. La résolution peut alors être effectuée avec l'aide de logiciels de calculs scientifiques. On trouve finalement :

$$\alpha \approx \frac{1}{4} \sqrt{\frac{\rho_0 K_T}{\eta_T^2}} ; k \approx \frac{7}{4} \sqrt{\frac{\rho_0 K_T}{\eta_T^2}} ; w = \frac{7 K_T}{4 \eta_T} ; \beta = \frac{K_T}{\eta_T} \quad (\text{eq. 3.27})$$

Le champ de contraintes est alors de la forme:

$$\sigma'(r, t) = \sigma'_0 e^{-\frac{1}{4} \sqrt{\frac{\rho_0 K_T}{\eta_T^2}} r} e^{-\frac{K_T}{\eta_T} t} \cdot e^{i(\omega t - kr)}$$

Finalement :

$$\vec{\sigma}(r, t) = \frac{c_0}{r} e^{-\frac{1}{4} \sqrt{\frac{\rho_0 K_T}{\eta_T^2}} r} e^{-\frac{K_T}{\eta_T} t} \cdot e^{i(\omega t - kr)} \cdot \vec{u}_r$$

Il apparaît ainsi que les solutions sont des ondes sphériques, pouvant se propager dans les deux sens à partir de l'interface de la bulle. Ces ondes s'éloignent avec une amplitude décroissante en $1/r$. L'amortissement temporel est donnée par $e^{-\frac{K_T}{\eta_T} t}$. Le terme $\tau = \frac{\eta_T}{K_T}$ est le temps caractéristique de relaxation de l'onde et dépend des propriétés viscoélastiques du mélange. L'amortissement spatial est donné par un facteur $e^{-\frac{1}{4} \sqrt{\frac{\rho_0 K_T}{\eta_T^2}} r}$ dépendant de la viscosité η_T , de la masse volumique ρ_0 et la rigidité du mélange E_T . Il décrit l'absorption de l'onde de surpression. La distance r varie de R (le rayon de la bulle) à l'infini. Le terme $e^{i(\omega t - kr)}$ décrit l'oscillation spatio-temporelle de l'onde. Ce terme n'a pas de réelle incidence sur la simulation finale du modèle physique. Nous n'adopterons que le module de la contrainte pour simplifier l'étude. Les contraintes sont alors données par:

$$\vec{\sigma}(r, t) = \frac{c_0}{r} e^{-\frac{1}{4} \sqrt{\frac{\rho_0 K_T}{\eta_T^2}} r} e^{-\frac{K_T}{\eta_T} t} \cdot \vec{u}_r \quad (\text{eq. 3.28})$$

La Figure 59 illustre l'évolution d'une perturbation donnée en fonction de la distance à l'interface de la bulle r et en fonction du temps t . A l'instant initial, tout le système est en équilibre avec une pression dans le mélange et dans la cellule homogène P_0 . Si la pression du mélange baisse brusquement à P_1 , une perturbation est créée à partir de l'interface de la bulle. Cette perturbation se propage alors dans tout le mélange en diminuant d'amplitude dans l'espace et dans le temps jusqu'à atteindre un point équilibre à P_1 . Le rayon R de la bulle augmente en même temps que cette perturbation évolue.

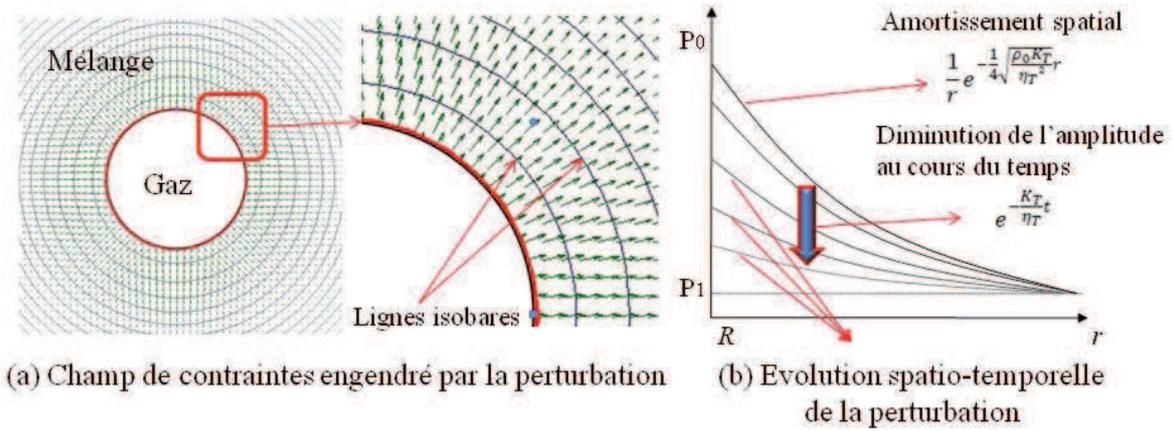


Figure 59: Illustration de l'évolution de la perturbation dans le mélange

Conditions aux limites :

$$\vec{\sigma}(r = R, t = 0) = P_0 = \frac{c_0}{R}$$

$$\vec{\sigma}(r = \infty, t = 0) = P_1$$

D'autre part, la pression initiale avant l'ouverture des presses est connue $P_0 = P_{in}$. La bulle à la nucléation a alors un rayon R minimal, $R = r_{nuc}$. Au bout d'un certain temps $t \gg \tau$ ou très loin de la bulle $r \gg R$, le champ de contraintes retombe, la pression du mélange est $P_1 = P_{ext}$. Donc :

$$\vec{\sigma}(r, t) = P_{ext} + (P_{in} - P_{ext}) \frac{r_{nuc}}{r + r_{nuc}} e^{-\frac{1}{4} \sqrt{\frac{\rho_0 K_T}{\eta_T}} r} e^{-\frac{K_T}{\eta_T} t} \cdot \vec{u}_r \quad (\text{eq. 3.29})$$

Avec $r = 0$ à l'interface gaz –mélange et r_{nuc} le rayon de la bulle à la nucléation.

3.3.3.2.3. Distance d'écrantage :

Le terme $D_e(t) = 4 \sqrt{\frac{\rho_0 K_T}{\eta_T}}^{-1}$ est une distance caractéristique du mélange. C'est le facteur d'atténuation de l'amortissement spatial. Cette distance évolue au cours du temps. Physiquement il donne une mesure de l'épaisseur minimale des parois sachant que le champ de pression est très largement atténué (avec une baisse de 95%) au bout de $3D_e$. L'ordre de grandeur peut varier de :

- $1 \cdot 10^{-3} m$ soit 1 mm pour $\rho_0 \approx 2 \cdot 10^3 kgm^{-3}$; $\eta_T = 1 \cdot 10^3 Pa \cdot s$ et $K_T = 1 \cdot 10^9 Pa$ au début de l'expansion
- $3 \cdot 10^{-3} m$ soit 3mm pour $\rho_0 \approx 2 \cdot 10^3 kgm^{-3}$; $\eta_T = 1 \cdot 10^5 Pa \cdot s$ et $K_T = 1 \cdot 10^{12} Pa$ à la fin de l'expansion.

La distance D_e varie ainsi très légèrement durant le même process. Cette distance est cohérente avec l'épaisseur moyenne des parois de vraies mousses. Cependant, dans le cas de certaines mousses, l'épaisseur peut être de l'ordre de quelques dizaines de microns, très petit devant D_e . Le principal problème réside dans la détermination expérimentale du module d'élasticité isostatique K_T . En effet ce module tend vers l'infini pour un fluide incompressible et les ordres de grandeur donnés ici ne sont qu'à titre indicatif. Une distance d'écrantage de l'ordre du micromètre peut être obtenue pour des modules de l'ordre de $1 \cdot 10^{16} Pa$.

Malgré tout, si les ordres de grandeurs donnés des propriétés du mélange sont réalistes, il est alors bien établi que le processus de moussage engendre d'autres phénomènes physico-chimiques difficilement modélisables (ou non pris en compte) et qui interviennent dans la formation, la croissance et l'interaction des cellules dans le mélange polymère

Nous posons par la suite la distance $D_e = D_e(t_1)$ la distance obtenue à la fin de l'expansion de la mousse.

3.3.3.3. Les forces de tensions superficielles

La tension superficielle génère des forces importantes dans les films constitutifs du squelette de la mousse. Les poches de gaz sont confinées à l'intérieur de films minces dans le liquide. Dans ce mélange, les molécules exercent entre elles des forces d'attraction de Van der Waals et/ou des forces de répulsion d'origine électrostatique. On parle de « forces intermoléculaires ». Si l'on considère le mélange polymère comme un corps pur liquide, composé d'un seul type de molécules, les molécules s'attirent, chaque molécule étant tirée dans toutes les directions par les molécules voisines de liquide : la résultante des forces est nulle. Dans la bulle de gaz il n'y a pas de matière du mélange liquide, ce qui fait que à la frontière liquide/vide, les molécules sont attirées côté liquide mais pas côté vide ; la résultante des forces s'exerçant sur les molécules de la surface est donc dirigée vers l'intérieur du liquide. Ceci tend la surface. C'est donc un effet au sein d'un liquide qui amène la surface à se déformer comme une membrane élastique.

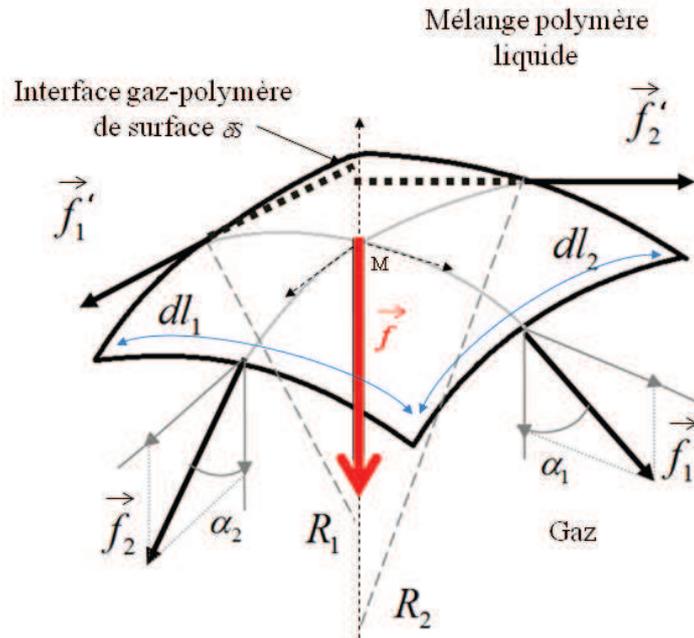


Figure 60: Forces de tensions superficielles

La Figure 60 illustre les forces de tension superficielles. En un point M de l'interface gaz-mélange, la pression est normale à la surface δS de l'interface et peut être dirigée vers l'intérieur ou vers l'extérieur de la bulle en fonction de l'orientation de la courbure locale de l'interface au point M .

Soit la surface séparant le liquide polymère du gaz limitée par les côtés dl_1 et dl_2 , arcs de cercle de rayon R_1 et R_2 . La résultante des forces de tension superficielle f au point M de l'interface est donnée par :

$$\vec{f} = \overline{\Delta T}(M) \cdot \delta S = \overline{\Delta T}(M) \cdot dl_1 \cdot dl_2$$

$\overline{\Delta T}(M)$ est la tension superficielle et est portée sur la normal \vec{n}_M de la surface de l'interface ;

$$\frac{\overline{\Delta T}(M)}{\|\overline{\Delta T}(M)\|} = \pm \vec{n}_M$$

Les normes de \vec{f}_1 et \vec{f}_2 sont données par :

$$f_1 = \gamma \cdot dl_2 \quad ; \quad f_2 = \gamma \cdot dl_1$$

γ est le coefficient de tension de surface en $Pa \cdot m^{-1}$. D'autre part on montre que :

$$dl_1 = 2R_1 d\theta_1$$

$$dl_1 \approx 2R_1 \sin d\theta_1$$

Soit :

$$dl_1 \approx 2R_1 \cos \alpha_1 \quad ; \quad dl_2 \approx 2R_2 \cos \alpha_2$$

$$\overrightarrow{\Delta T}(M).dl_1.dl_2 = 2\vec{f}_1\cos\alpha_1 + 2\vec{f}_2\cos\alpha_2$$

$$\overrightarrow{\Delta T}(M) = \frac{2\vec{f}_1\cos\alpha_1}{dl_1} + \frac{2\vec{f}_2\cos\alpha_2}{dl_2}$$

Finalement nous avons la loi de Laplace [98]:

$$\overrightarrow{\Delta T}(M) = \pm\gamma\left(\frac{1}{R_{1M}} + \frac{1}{R_{2M}}\right)\vec{n}_M \quad (\text{eq. 3.30})$$

En 2D on montre de même que :

$$\overrightarrow{\Delta T}(M) = \pm\frac{2\gamma}{R_M}\vec{n}_M$$

Ainsi la tension superficielle dépend de la normale orienté à l'interface, du rayon R_M du cercle osculateur (en 2D, cercle venant épouser la courbe au plus près au voisinage du point M) et de la tension de surface γ qui est une caractéristique mécanique du mélange polymère.

3.3.4. Modèle de croissance unicellulaire final

Pour une bulle donnée, nous avons déterminé l'évolution de la pression interne dans la bulle, du champ de contraintes externe dans le mélange et avons calculé les tensions superficielles à l'interface. En deux dimensions, sur une particule élémentaire de l'interface centrée en un point M, la contrainte résultante $\vec{\sigma}_{eqM}$ est alors la somme de ces termes calculés à l'interface (Figure 61).

$$\vec{\sigma}_{eqM}(t) = \vec{P}_{gaz}/M(t) + \vec{\sigma}_{ext}/M(R, t) + \frac{2\gamma}{R_M}\vec{n}_M$$

$$\vec{\sigma}_{eqM}(t) = \frac{P_{in}V_{in}}{V(t)}.\vec{n}_M - P_{ext} - (P_{in} - P_{ext})\frac{r_{nuc}}{r+r_{nuc}}e^{-\frac{1}{4}\sqrt{\frac{\rho_0 K_T}{\eta_T^2}r}}e^{-\frac{K_T t}{\eta_T}}.\vec{u}_r + \frac{2\gamma}{R_M}.\vec{n}_M \quad (\text{eq. 3.31})$$

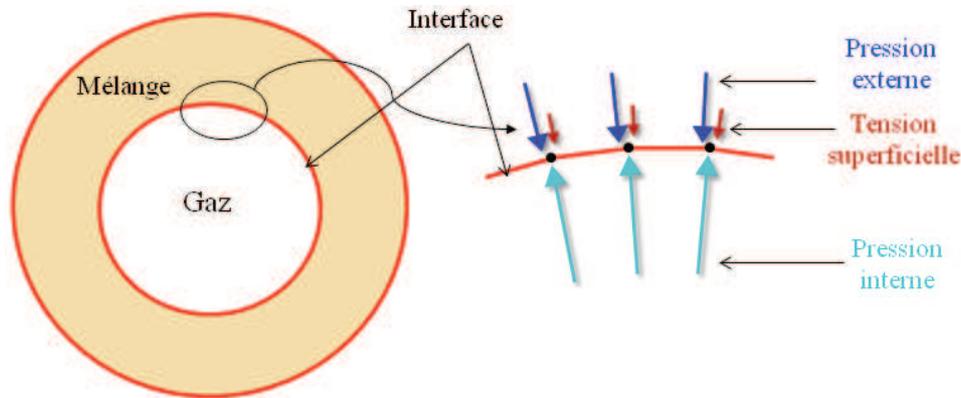


Figure 61: Pression résultante sur l'interface gaz-mélange

C'est cette pression équivalente qui régit le déplacement de l'interface gaz-mélange dans le cas d'une bulle unique évoluant librement dans un mélange polymère infini.

3.3.4.1. Déplacement de l'interface

Le modèle physique n'adopte pas une modélisation du fluide comme un ensemble de particules hydrodynamiques où les champs de vitesse et de pression sont calculés dans toute la grille de simulation. Il permet cependant de suivre l'évolution des interfaces gaz-mélange. Connaissant toutes les forces interagissant à l'interface gaz-mélange, l'application du principe fondamental de la dynamique permet de directement déduire son déplacement. De plus, le champ de vitesse dans le mélange n'est pas calculé, simplifiant ainsi considérablement l'algorithme du modèle. Le principe fondamental de la dynamique appliqué à l'interface donne :

$$\rho_0 \left(\frac{\partial^2 u}{\partial t^2} \right) = \vec{\nabla} \cdot \vec{\sigma}_{eqM}(t)$$

Le déplacement final \vec{u} du point M entre deux instants t_0 et t_1 est obtenu en intégrant l'équation ci-dessus :

$$\vec{u}_{t_0-t_1}(M) = \frac{1}{\rho_0} \iint_{t_0}^{t_1} \vec{\nabla} \cdot \vec{\sigma}_{eqM}(t) dt \quad (\text{eq. 3.32})$$

3.3.4.2. Simulation du modèle unicellulaire et influence des caractéristiques E , ν et η

Nous avons simulé la croissance d'une seule bulle dans une matrice en fonction des paramètres d'entrée process et des caractéristiques physiques du mélange. Le volume $V(t)$ de la bulle est calculé à chaque itération dans l'algorithme de simulation. Cet algorithme est une implémentation numérique de tout le modèle physique et il est décrit plus en détails dans le paragraphe 3.4.1 . La figure ci-dessous donne l'évolution du volume de la bulle dans le temps en fonction de l'évolution du module d'élasticité K_T et de la viscosité η_T du mélange. Au tout début du processus la bulle a un rayon minimal fixé. La pression interne est imposée de l'ordre de $1.10^7 Pa$ (soit 100 fois la pression ambiante). On peut alors distinguer trois phases dans la croissance de la cellule (Figure 62) :

- Une première phase de croissance très lente : la grande pression n'impacte que faiblement la croissance de la bulle. Son rayon augmente faiblement en même temps que la pression diminue. Ceci est dû d'une part à l'inertie de la matière (qui ne se déplace que très peu) entourant la bulle localement et qui oppose une grande résistance à sa croissance et d'autre part à l'influence de la tension superficielle (proportionnelle à $1/r$).

- Une deuxième phase de croissance très rapide : l'amplitude de la tension superficielle diminue. La matière se déplace de plus en plus vite.
- Une dernière phase de stabilisation : la pression interne a largement diminué et retombe progressivement à la pression ambiante. La bulle ne croît pratiquement plus. Cependant, dans le modèle unicellulaire considéré la bulle est dans un océan infini de mélange polymère sans aucune autre contrainte extérieure mise à part la pression ambiante, elle continue son expansion.

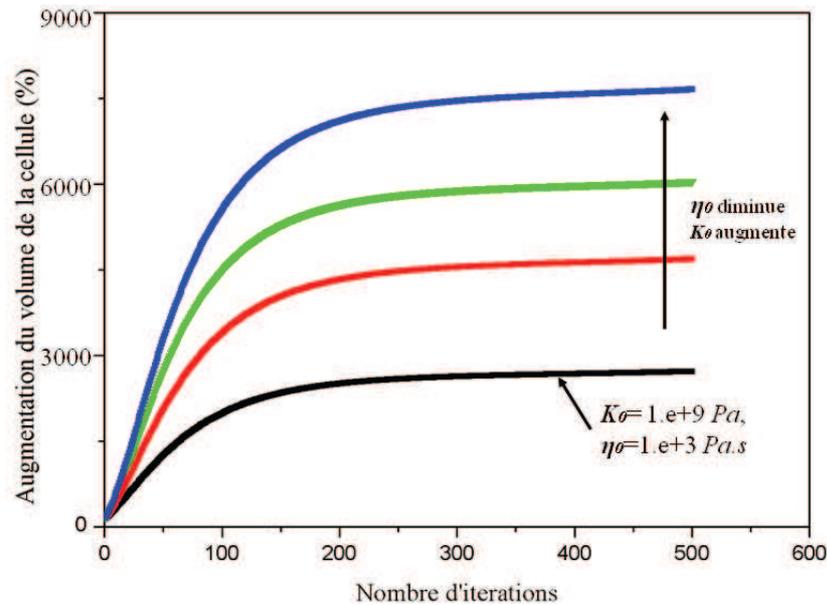


Figure 62 : Profils de croissance de la bulle en fonction de K et η

La Figure 62 montre les profils de croissance de la bulle en fonction du module élastique K et de la viscosité η . Comme ces paramètres dépendent de la température et donc du temps, nous avons tracé les profils en fonction de leur valeur au début de la croissance de la bulle (K_0 et η_0). Le champ de contrainte est spatialement amorti suivant le terme $e^{-\frac{1}{4}\sqrt{\frac{\rho_0 K T}{\eta T^2}}r}$. Ainsi plus la viscosité η_0 augmente, plus les contraintes dans le mélange sont atténuées. Si le module élastique augmente, les contraintes générées dans le mélange sont plus importantes, la croissance devient alors moins rapide.

3.3.5. Modèle de croissance multicellulaire

Nous avons développé notre modèle physique en intégrant la croissance et la nucléation des cellules simultanément dans le mélange. La démarche reste toujours la même : il s'agit de déterminer la contrainte équivalente à chacune des interfaces des cellules. Cette contrainte dépend de la pression interne dans chaque cellule, des forces de tension superficielles et du champ de contraintes externes dans le mélange qui est modifié à cause des interactions entre les cellules.

3.3.5.1. Champ de contrainte total dans le mélange

Dans le cas d'une bulle, le mélange subit un champ de contrainte généré en même temps que la croissance de la bulle.

$$\vec{\sigma}(r, t) = P_{ext} + (P_{in} - P_{ext}) \frac{r_{nuc}}{r + r_{nuc}} e^{-\frac{1}{4} \sqrt{\frac{\rho_0 K_T}{\eta T^2}} r} e^{-\frac{K_T}{\eta T} t} \cdot \vec{u}_r$$

Ce champ est radial et dirigé vers l'extérieur de la cellule. Dans le modèle multicellulaire nous supposons que chaque cellule impose au mélange un champ de contraintes pratiquement identique à l'équation du modèle unicellulaire (Figure 63). En effet comme les cellules se déforment dans leur croissance, l'interface d'une cellule donnée n'est plus une sphère. Le facteur $(r - R)$ est remplacé par les lignes de niveau d_M à l'interface de la bulle. La contrainte externe générée par une bulle i en un point M du mélange est alors :

$$\vec{\sigma}_{ext-bullei}(d_M, t) = \left(P_{ext} + (P_{in} - P_{ext}) \frac{r_{nuc}}{d_M + r_{nuc}} e^{-\frac{1}{4} \sqrt{\frac{\rho_0 K_T}{\eta T^2}} d_M} e^{-\frac{K_T}{\eta T} t} \cdot \vec{u}_r \right) \cdot \vec{u}_r \quad (\text{eq. 3.33})$$

L'interface est donnée par $d_M = 0$ et une particule M du mélange est à une distance $d_M > 0$. Finalement, le champ de contrainte totale dans le mélange est la somme des champs de contrainte engendrés par les N bulles de gaz prises séparément.

$$\vec{\sigma}_{tot}(M, t) = \sum_N \vec{\sigma}_{ext-bullei}(d_{M-bullei}, t) \quad (\text{eq. 3.34})$$

$d_{M-bullei}$ étant la distance du point M à l'interface de la bulle i . Ainsi la contrainte totale n'est plus radiale et les lignes isobares ne sont plus des cercles concentriques mais dépendent de la morphologie de la structure en expansion. Ensuite le déplacement des interfaces est calculé de la même manière que pour le modèle unicellulaire (eq. 3.32).

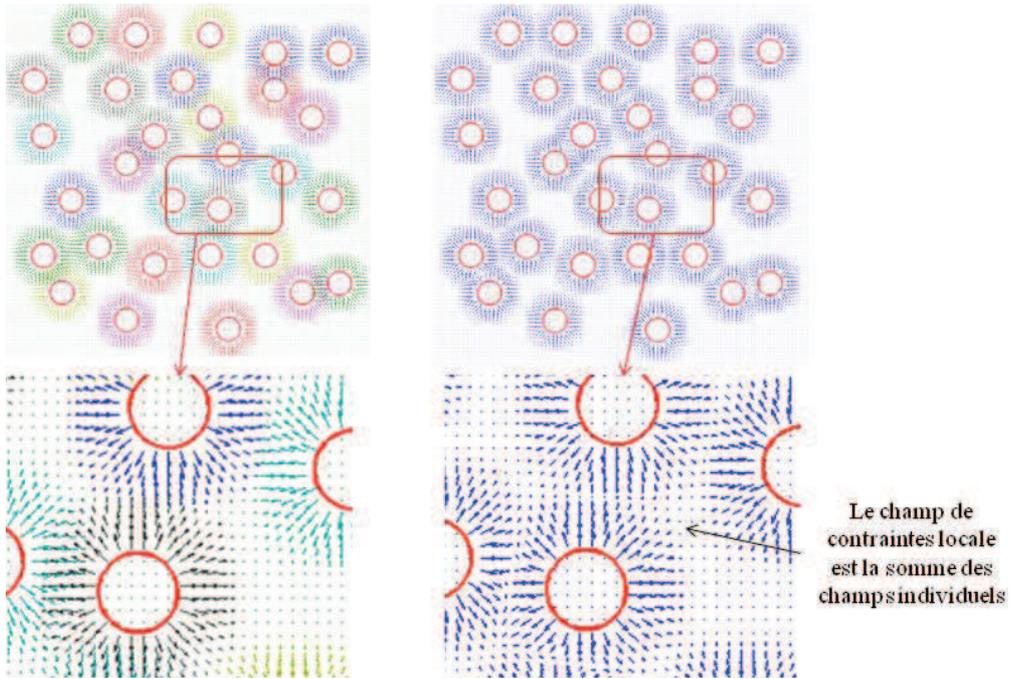


Figure 63: Champs de contraintes individuelles (à gauche) des cellules et
 Champ de contraintes finales (à droite)

3.3.5.2. Le mûrissement

Les cellules fusionnent pour deux raisons principales : la coalescence qui est due à la rupture de la paroi séparant deux bulles et le mûrissement qui provient du fait que les petites bulles se vident dans les grandes et tendent à disparaître (à cause de la très grande différence de pression entre les cellules). La coalescence est un phénomène très mal décrit physiquement. En particulier il est très difficile de pouvoir expliquer pourquoi certaines cellules coalescent alors que d'autre mûrissent.

Nous avons intégré dans notre modèle la possibilité d'une fusion entre les cellules : lorsque l'épaisseur de la paroi fine séparant deux bulles est inférieure à la résolution spatiale de la grille de simulation il n'y a alors virtuellement plus de matière dans la paroi. Quand cela arrive les bulles en continuant de croître vont entrer en contact. Elles fusionnent. La conservation de la masse impose que pour chaque bulle i amenant une quantité de gaz $P_i V_i$, la pression de la bulle finale est $\frac{P_i V_i + P_j V_j}{V_f}$. V_f étant le volume de la bulle finale.

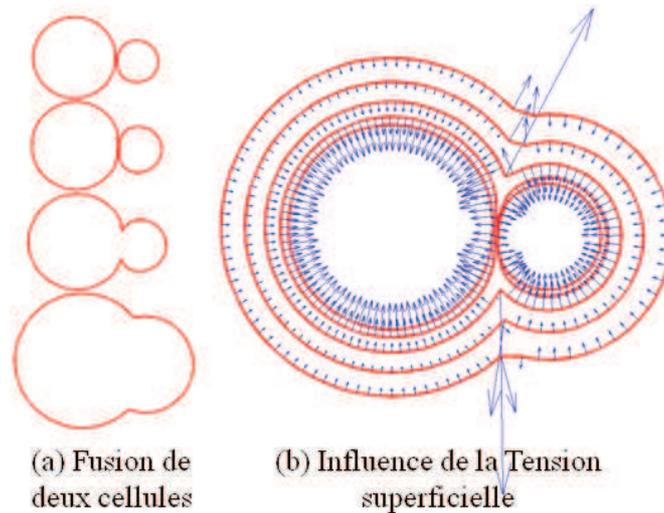


Figure 64: Fusion de deux cellules et influence de la tension superficielle

La Figure 64 illustre la fusion entre deux cellules. Les forces de tensions superficielles sont maximales au voisinage des intersections entre les deux bulles et sont dirigées vers l'extérieur, ce qui a tendance à redonner une forme plus lissée de la cellule finale. La modélisation de la fusion dans notre modèle est très simpliste car n'intègre pas totalement la physique réelle derrière les phénomènes de coalescence et de mûrissement [99]. Mais elle nous permet de bien visualiser la microstructure dans son évolution et sa stabilisation.

3.4. Simulation du modèle physique en 2D et 3D

3.4.1. Implémentation numérique

L'algorithme final du modèle physique nous permet de simuler l'évolution de la microstructure d'une infime fraction de la mousse durant son expansion. Cette fraction est choisie au centre de la matrice de mélange polymère pour minimiser les effets de bords et la variation locale de la morphologie de la structure en conséquence. Nous supposons une isotropie dans la croissance des cellules qui ne dépend donc pas de la direction principale d'extrusion. Par la suite nous décrivons l'implantation de l'algorithme en deux dimensions sachant qu'il a aussi été porté en trois dimensions. Nous développerons plus en détail chaque étape dans la résolution et la simulation finale du modèle.

3.4.1.1. Discrétisation du modèle

L'approche eulérienne est très adaptée pour décrire le champ de contrainte $\vec{\sigma}_{tot}(M, t)$ dans le mélange qui est exprimé en fonction du temps et de la position du point M [100][101]. Il s'agit ensuite de choisir une méthode de discrétisation appropriée. Les méthodes de discrétisation les plus connues dans la simulation numérique d'écoulements fluides sont : la méthode des différences finies, la méthode des volumes finis et la méthode des éléments finis. Ces méthodes adoptent des techniques de recherche de solutions approchées d'équations aux dérivées partielles qui consistent à résoudre un système de relations (schéma numérique) liant les valeurs des fonctions inconnues en certains points suffisamment proches les uns des autres [102][103][104]. Notre modèle a ceci de particulier que les équations non linéaires aux dérivées partielles ainsi que les conditions aux limites sont déjà résolues. Le champ de contraintes ainsi que le déplacement des interfaces peuvent alors être simplement calculés dans la grille numérique qui est une représentation discrète du domaine géométrique sur lequel la simulation est effectuée.

Nous avons adopté une grille carrée, structurée contenant un maillage d'éléments uniformément répartis [105]. Elle est définie par ses dimensions physiques $L \times L$, et par son nombre d'éléments $n \times n$. La longueur de chaque élément $l = L/n$ fixe la précision spatiale des solutions (Figure 65). Cette grille est simple à mettre en œuvre sous MATLAB. En effet MATLAB est optimisé pour le calcul matriciel, la grille est alors représentée par une matrice de taille n^2 . La position de chaque nœud d'un élément de la grille est donnée par ses coordonnées (i, j) dans la matrice. Le champ vectoriel des contraintes est calculé en chacun des nœuds de la grille et deux ou trois matrices sont utilisées pour stocker les projections suivant X, Y et/ou Z. Comme vu précédemment chaque cellule génère un champ de pression dans le mélange. Il y a alors $3 \times N_c$ matrices pour stocker le champ vectoriel des contraintes générées par les N_c cellules.

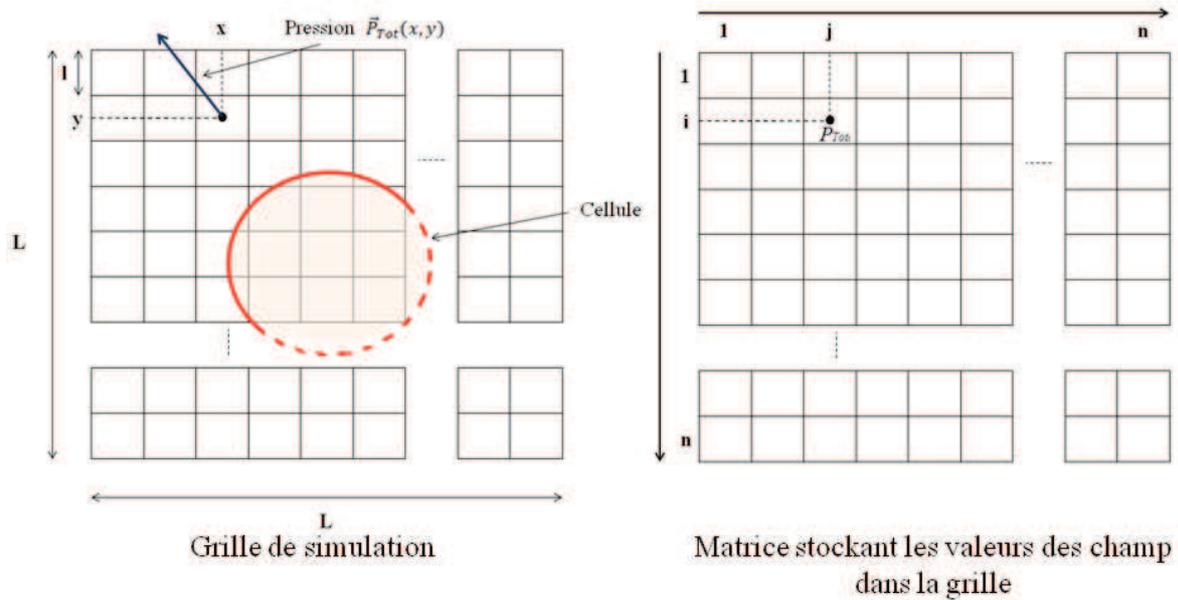


Figure 65: Modélisation de la grille de simulation

Afin de suivre l'évolution des interfaces gaz-mélange, celles-ci sont discrétisées en un ensemble de points interconnectés. Chaque point modélise une particule de matière du mélange à l'interface. Une résolution paramétrable fixe l'espacement des points suivant le contour des cellules afin de garder la même précision dans leur affichage tout au long de la croissance des cellules. Ainsi si nécessaire l'algorithme peut enlever ou rajouter des points dans une cellule donnée en fonction de son évolution.

La discrétisation temporelle dépend du temps caractéristique de relaxation du mélange τ . L'intervalle de temps entre deux itérations est $\Delta t_i = a\tau$. Le paramètre a est un coefficient fixe pour adapter la vitesse de simulation.

3.4.1.2. Conditions aux limites périodiques

Nous avons adopté des conditions aux limites périodiques pour simuler un système pavé virtuellement infini [106]. La zone de simulation de forme cubique permet un pavage parfait dans un espace tridimensionnel. Nous avons donc appliqué des conditions aux limites sur le champ de contraintes du mélange pour garantir la périodicité en 2D et 3D. Ainsi quatre zones de la grille de simulation sont extraites et pavées sur ses frontières (Figure 66.a). Le pavage est tel que le champ de pression de chaque zone est l'exacte répétition du champ de pression de la bordure du côté opposé. Ces zones sont assez larges pour intégrer tout l'espace d'interaction d'une cellule donnée. La Figure 66.b donne la structure finale obtenue en appliquant ces conditions aux limites périodiques. Cette structure peut être pavée dans l'espace en gardant la même épaisseur de parois sur les bords bien imbriqués les uns sur les autres.

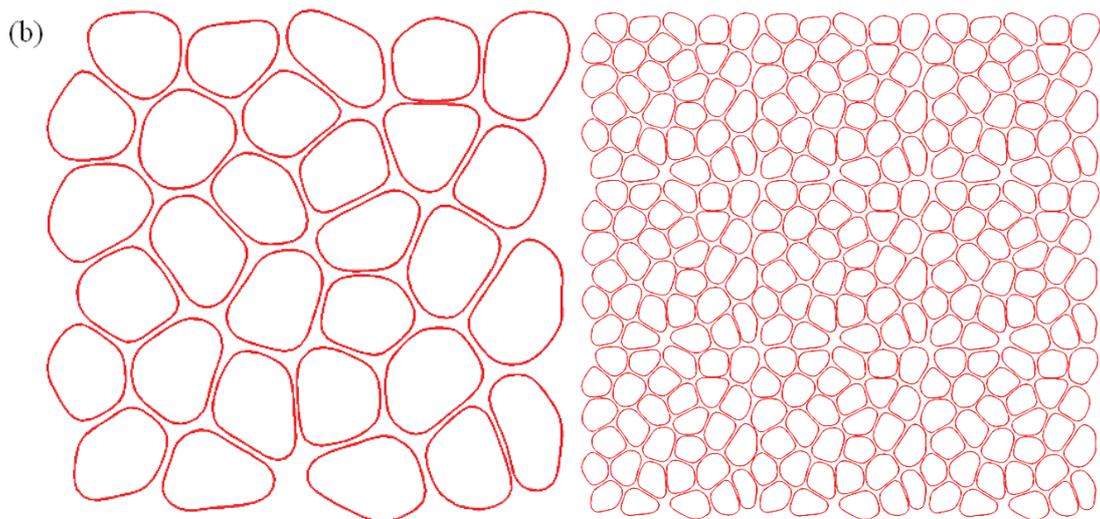
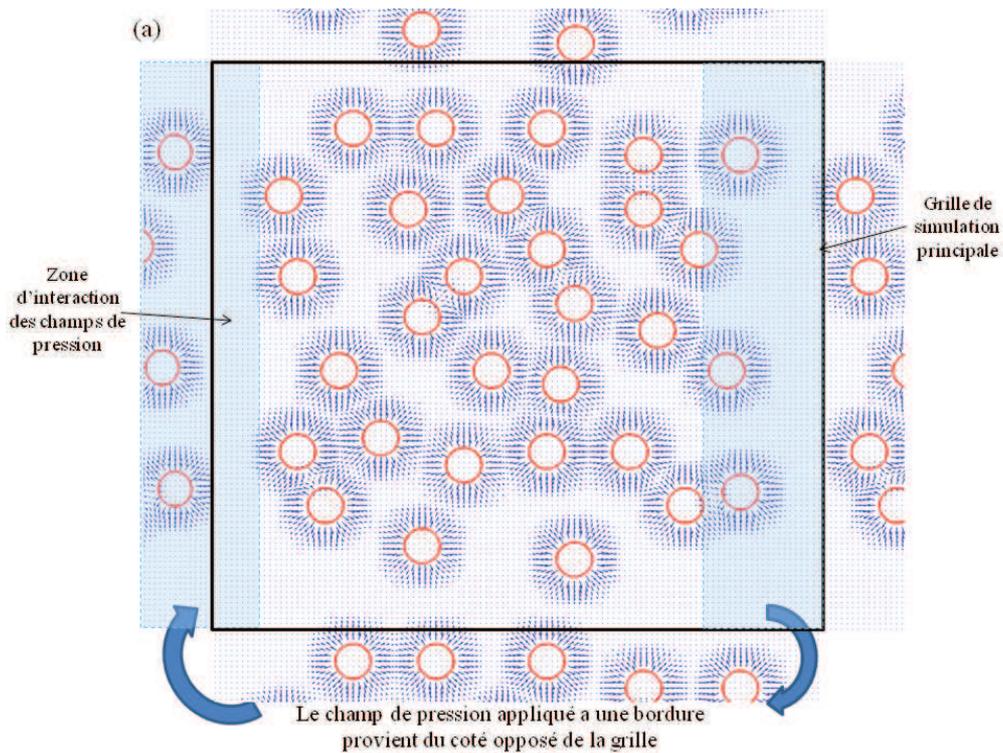


Figure 66: illustration des conditions aux limites périodiques et application à la simulation

3.4.1.3. Algorithme de simulation

Nous avons utilisé MATLAB pour mettre en application l'algorithme de simulation en 2D et en 3D. La figure est un schéma descriptif de l'algorithme. Il est composé de cinq grandes parties qui sont traitées successivement.

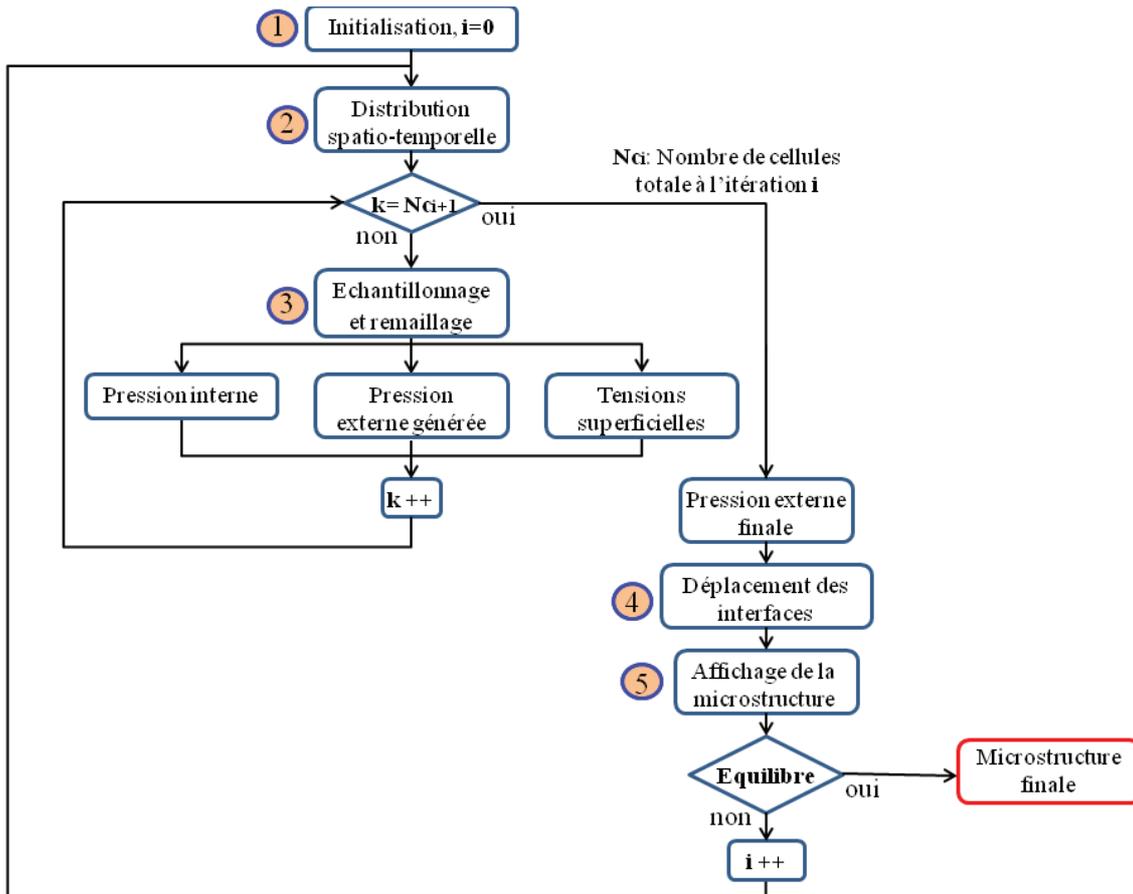


Figure 67: Schéma général de l'algorithme de simulation

La première partie est l'initialisation permettant de calculer préalablement les paramètres constants dans la simulation, les paramètres de la grille ainsi que les blocs de mémoires à allouer pour stocker les champs vectoriels de pression suivant X et Y. Les autres parties sont toutes incluses dans une boucle de temps itérative afin d'intégrer la nucléation et la croissance simultanée des cellules.

D'abord la deuxième partie détermine la distribution spatio-temporelle :

- Le nombre de cellules en fonction du temps est donné par l'équation (eq. 3.5) :

$$N_c(t_i) = N_0 + N_1 e^{-b(t_i - T_1)^2}$$

- La position des nouvelles cellules est déterminée en deux étapes. D'abord la zone potentielle de nucléation est déterminée en fixant la distance d'influence de chaque cellule D_{IVA} . Cette distance dépend de la distance $D_e(t)$. Pour éviter toute fusion prématurée des cellules, la nucléation des cellules doit arriver assez loin des interfaces déjà existant, là où le champ de contraintes est grandement atténué. On a posé :

$$D_{IVA}(t) = 10 \cdot D_e(t_1)$$

Une fois la zone potentielle déterminée, un choix aléatoire des points de nucléation peut être obtenu par la fonction *Randn* [107] de MATLAB.

La troisième partie traite chacune des cellules individuellement. Grâce à un paramètre d'échantillonnage fixé, le remaillage donne les nouvelles coordonnées des points des contours des cellules. Les valeurs des forces de tension superficielles, de pression interne et de contraintes externes à l'itération précédente $i - 1$ sont interpolées ou recalculées sur les nouveaux points. Pour une cellule donnée, les forces interagissant à l'interface sont :

- Les forces de tensions superficielles en chacun des points de l'interface de la cellule données par les expressions suivantes :

$$\text{En 2D : } \overline{\Delta T}(M) = \pm \frac{2\gamma}{R_M} \vec{n}_M \quad ;$$

$$\text{En 3D : } \overline{\Delta T}(M) = \pm \gamma \left(\frac{1}{R_{1M}} + \frac{1}{R_{2M}} \right) \vec{n}_M$$

D'abord la normale de l'interface en chaque point est déterminée en calculant la perpendiculaire du segment des deux points voisins immédiats (en 2D). Cette perpendiculaire passe par le point considéré et donne ainsi l'orientation de la tension superficielle. L'échantillonnage initial permet alors de minimiser les erreurs de calculs. Le rayon R_M du cercle osculateur est trouvé en résolvant l'équation du cercle circonscrit passant par le point et ses deux voisins :

$$(x - a)^2 + (y - b)^2 = R_M^2$$

- La pression interne qui dépend du volume de la cellule :

$$\vec{P}_{gaz}(t_i) = \frac{P_{in} V_{in}}{V(t_i)} \cdot \vec{n}_M(t_i)$$

En 2D, l'aire A d'un polygone de N points de coordonnées (x_i, y_i) est donnée par :

$$A = \frac{1}{2} \cdot \sum_{i=0}^{N-1} (x_i y_{i+1} - x_{i+1} y_i) \quad (\text{eq. 3.35})$$

Cette aire peut être simplement calculée par la fonction MATLAB *polyarea*. En 3D il y a plusieurs méthodes pour calculer le volume d'un polyèdre convexe, la méthode traditionnelle étant de calculer la somme des volumes algébriques individuels des partitions pyramidales du polyèdre (un par face). Nous avons adapté une de ces méthodes en déterminant le volume directement à partir des coordonnées des points, ce qui permet aussi de réduire considérablement les temps de calculs [108],[109].

- La contrainte externe générée par une cellule est donnée par la relation :

$$\vec{\sigma}_{ext}(d, t_i) = \left(P_{ext} + (P_{in} - P_{ext}) \frac{r_{nuc}}{d + r_{nuc}} e^{-\frac{1}{4} \sqrt{\frac{\rho_0 K_T}{\eta r^2}} d} e^{-\frac{K_T}{\eta r} t_i} \right) \cdot \vec{u}_r$$

Pour calculer ce champ de contraintes dans toute la grille il faut donc d'abord déterminer les courbes de niveau d (ou isosurfaces en 3D) par rapport à l'interface de la cellule et le champ de vecteurs donnant l'orientation \vec{u}_r . Notons $\Gamma(x,y)$ la fonction passant par tous les points du polygone de l'interface en 2D. Les courbes de niveaux sont données par l'équation $\Gamma(x,y) = d$. Les deux phases fluide et gazeuse peuvent alors être représentées par la matrice Mat_r qui en chaque nœud $M(x,y)$ de la grille

vaut d_M , la distance algébrique du point $M(x,y)$ à l'interface. Le champ vectoriel \vec{u}_r est obtenue grâce au gradient des courbes de niveau :

$$\vec{u}_r = \vec{\nabla}\Gamma = \frac{\partial\Gamma(x,y)}{\partial x}\vec{x} + \frac{\partial\Gamma(x,y)}{\partial y}\vec{y} = \vec{\nabla}Mat_\Gamma$$

Le champ $\vec{\sigma}_{ext}(x,y,t_i)$ peut alors être calculé en chaque nœud :

$$\vec{\sigma}_{ext}(x,y,t_i) = \left(P_{ext} + (P_{in} - P_{ext}) \frac{r_{nuc}}{Mat_\Gamma(x,y) + r_{nuc}} e^{-\frac{1}{4}\sqrt{\frac{\rho_0 K_T}{\eta_T^2}} Mat_\Gamma(x,y)} e^{-\frac{K_T}{\eta_T} t_i} \right) \cdot \vec{\nabla}Mat_\Gamma(x,y)$$

La quatrième partie calcule le déplacement de chacun des points des contours des cellules. D'abord la valeur de la contrainte du mélange finale est calculée en chacun des points des contours des cellules par une interpolation cubique du champ vectoriel $\vec{\sigma}_{Tot}(x,y,t_i)$ qui est la somme des contraintes générée individuellement par les cellules. Ensuite la contrainte équivalente au point M est calculée. C'est la somme des forces d'interactions calculées précédemment :

$$\vec{\sigma}_{eq}(x_M, y_M, t_i) = \vec{\sigma}_{Tot}(x_M, y_M, t_i) + \vec{P}_{gaz}(t_i) + \vec{\Delta T}(M, t_i)$$

Le déplacement final \vec{D} du point M est alors :

$$\vec{D}(M) = \frac{1}{\rho_0} \frac{\vec{\sigma}_{eq}(x_M, y_M, t_i)}{dl} \cdot \left[\frac{1}{2}(t_i^2 - t_{i-1}^2) + \Delta t_i \right]$$

Δt_i est l'intervalle de temps entre deux interactions $t_i - 1$ et t_i . C'est le temps caractéristique de la simulation sachant que $\Delta t_i = a\tau$. dl est la longueur de la particule élémentaire. Elle est donnée par le maillage de la grille : $dl = l = \frac{L}{n}$.

Et finalement la cinquième partie qui permet l'affichage graphique de la microstructure en expansion. Chaque cellule est représentée par un ensemble de vertices interconnectés par des éléments 1D (segments). Le champ de grossissement de la grille de simulation est fixe et les cellules sont affichées puis retirées à la fin de chaque itération jusqu'à l'équilibre final. Des caractéristiques de la microstructure comme le volume moyen des cellules, le diamètre équivalent moyen, les écart- types correspondants ainsi que la porosité sont calculées progressivement. Lorsque la porosité n'évolue pratiquement plus (avec une variation de moins de 0.1%) on suppose que l'équilibre est atteint et la simulation est arrêtée, donnant alors la microstructure finale.

D'autres caractéristiques telles que la distance d'écrantage D_e et le coefficient C_{vol} de dispersion ou de variation des volumes des cellules sont aussi calculées. Le coefficient de dispersion C_{vol} en 2D est donné par le rapport entre l'écart type δ_A et l'aire moyenne des cellules A_m :

$$C_{vol} = \frac{\delta_A}{A_m}$$

C'est un coefficient sans dimension qui permet de mesurer la dispersion de taille entre les cellules.

3.4.1.4. Approximations, stabilité et précision

Une méthode numérique est stable si elle ne magnifie pas les erreurs qui apparaissent au cours du processus [110]. Cette stabilité dépend donc de la discrétisation spatio-temporelle de la grille. Par rapport à la discrétisation spatiale, les approximations établies dans le modèle sont :

- **Erreur ! Source du renvoi introuvable.**, soit de faibles variations spatiales du champ de déplacement. Ce qui impose : $c\tau \ll l$. $c = \sqrt{\frac{A}{\rho_0}}$ est la vitesse de propagation de la perturbation et $\tau = \frac{\eta T}{K_T}$
- Cette approximation donne une limite inférieure à la discrétisation spatiale l .
- De plus la dimension l d'un élément de la grille doit être choisie de telle manière que n'importe quelle paroi de la microstructure soit discrétisée assez finement. Sachant que la distance $D_e(t)$ donnée plus haut est une caractéristique dimensionnelle des parois de la microstructure, en imposant trois éléments de grille minimum dans chaque paroi on a :

$$l < \frac{1}{3} D_e(t = 0)$$

Par rapport à la discrétisation temporelle, la simulation est stable dans le temps, garantissant une solution bornée à chaque itération. Cependant il faut tenir compte des approximations déjà établies:

- $V \ll c$ (eq. 3.16), soit des vitesses de déplacements très petites devant la vitesse de propagation de la perturbation. $\frac{u}{\Delta t_i} \ll \frac{u}{\tau}$ soit $\tau \ll \Delta t_i$. Δt_i est la discrétisation temporelle.
- La limite supérieure est donnée par : $\Delta t_i < t_1$. Dans cet intervalle de temps Δt , la viscosité et le module de Young sont supposés constants : Il s'agit alors de fixer le paramètre α tel que : $\Delta t_i = \alpha\tau$. Le paramètre α doit être assez grand pour permettre au champ de s'établir (voir paragraphe 3.3.3.2.2). Nous avons fixé α entre 10 et 100 Un coefficient α trop grand accroît la vitesse de la simulation et magnifie les erreurs de calculs. On obtient des contours mal définis et/ou globalement sphériques.

3.4.2. Génération de microstructures 2D et 3D

Nous avons à notre disposition une unité centrale de calcul assez puissante et disposant de suffisamment de mémoires (80 gigabits de RAM) pour traiter les données des très grandes matrices de champs vectoriels de la grille de simulation. La durée d'une simulation dépend aussi de la discrétisation de la grille, du nombre total de cellules, des mesures effectuées en fin de chaque itération et surtout du type de simulation (2D ou 3D). Ainsi en 2D la simulation de 100 cellules dans une grille matricielle de taille 100×100 ne prend pas plus de 2 minutes pour 100 itérations, la même simulation dans une grille 3D de taille $100 \times 100 \times 100$ prend une vingtaine de minutes alors que la simulation de 1000 cellules en 2D prend en moyenne 15 minutes en 2D et plus de 24h en 3D.

Nous allons d'abord donner quelques ordres de grandeurs de chacune des caractéristiques physiques du mélange fluide pour ensuite montrer les microstructures obtenues en fonction des paramètres de la modélisation. Le module d'élasticité est de l'ordre de $10e+5$ Pa à $10e+7$ Pa pour un polymère liquide. Par exemple le module d'élasticité est de l'ordre de $10e+3$ Pa pour un Gel (solutions semi-diluées de polymères réticulés) et de $10e+6$ Pa pour un élastomère bien réticulé. Pour une mousse polymère comme l'EPDM le module de Young est de l'ordre de $10e+7$ Pa. La tension superficielle est en N/m ou kg/s^2 . Pour un polymère fondu elle est de l'ordre de 35×10^{-3} N/m. La masse volumique d'un polymère est de l'ordre de 1700 kg/m^3 . La viscosité des polymères fondus peut varier de l'ordre de $10e+3$ Pa.s pour des viscosités à faible taux de cisaillement (fluide newtonien) jusqu'à $10e+6$ Pa.s.

3.4.2.1. Microstructures 2D

Différents types de microstructures peuvent être générées en fonction de la distribution spatio-temporelle des cellules, des paramètres process et des caractéristiques du mélange polymère. La Figure 69 donne quelques exemples de microstructures en 2D contenant 100 cellules chacune et caractérisées par quatre paramètres : deux paramètres d'entrées qui sont la distance d'écrantage D_e et la tension superficielle T_s et deux paramètres donnés par la porosité P de la microstructure finale et son coefficient de dispersion C_{vol} .

A l'exception de la distribution temporelle et des deux paramètres d'entrées cités plus haut toutes les microstructures ont été obtenues avec les mêmes caractéristiques du mélange. Dans les modèles de microstructures (a) à (c) la distance d'écrantage D_e est la même ($0.9 \mu m$) mais la distribution des cellules change dans le temps. Ainsi la microstructure (a) est obtenue avec une nucléation simultanée de toutes les cellules. Le coefficient de dispersion C_{vol} est très petit, les cellules sont de taille identique et on obtient une structure mono disperse. Dans la microstructure (b) il y a deux échelles de tailles de cellules très distinctes et le coefficient C_{vol} est supérieur à 1. La distribution des cellules de la microstructure (c) suit une gaussienne, le coefficient C_{vol} est de 0.44 et la structure obtenue est alors poly disperse. La porosité P mesurée est la même pour ces 3 modèles.

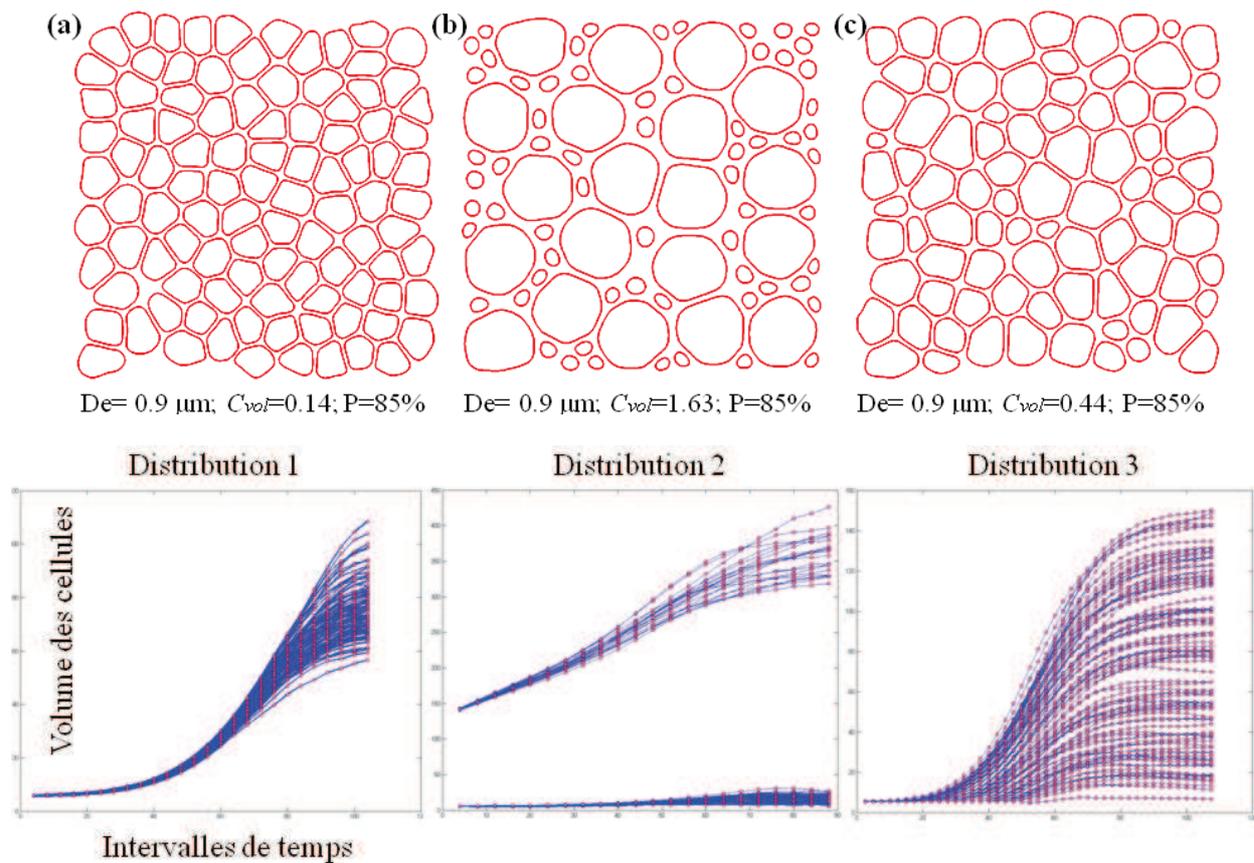
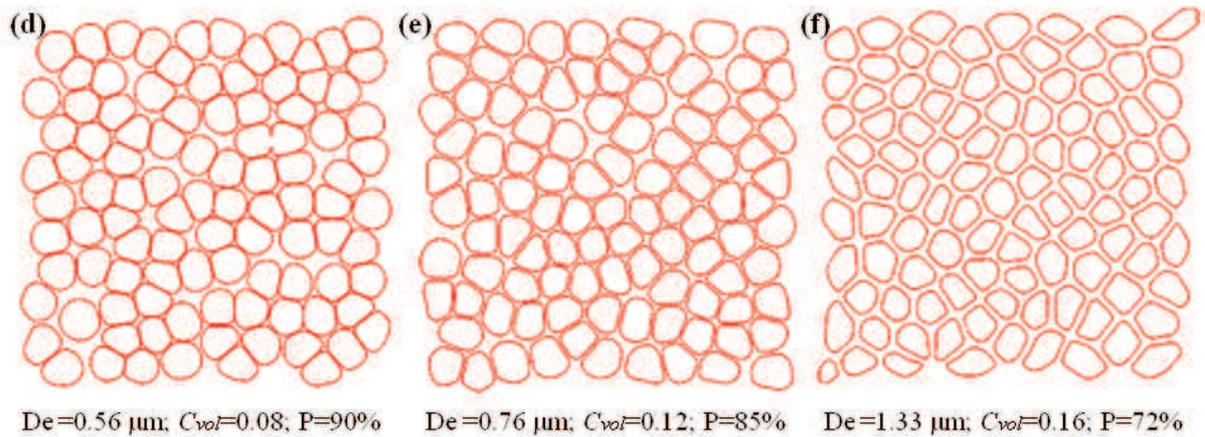


Figure 68: Evolution des volumes des cellules au cours de la simulation

La Figure 68 donne les évolutions des volumes de chaque cellule pour chacun des trois types de distribution. Les profils sont différents en fonction du type de distribution. La distribution 1 correspond à une nucléation simultanée de toutes les cellules. Et la distribution 3 c'est une nucléation progressive. Même si la dispersion du volume des cellules augmente au fur et à mesure de la simulation pour chacun des distributions, la répartition des volumes dans la distribution 1 est beaucoup plus compacte que celle de la distribution 3.

Pour les modèles suivants, la distribution temporelle des cellules est la même ; toutes les cellules sont nucléées en même temps au début de la simulation. Dans les microstructures (d) à (h) la distance d'écrantage D_e change. Ces microstructures n'admettent donc pas la même épaisseur des parois. Comme elles ont le même nombre de cellules, la porosité finale diminue à mesure que D_e augmente. Elles ont toutefois la même distribution de taille de cellules avec C_{vol} qui n'augmente que très peu.



Les microstructures (a) à (f) ont toutes le même coefficient de tension superficielle γ_0 . Les microstructures (g) et (h) ont des tensions superficielles différentes avec respectivement $1.6\gamma_0$ et $2\gamma_0$. La distance d'écrantage D_e est fixe. Nous remarquons que plus la tension superficielle augmente plus les cellules sont sphériques et sont plus petites. En effet en minimisant l'énergie de surface des cellules les forces de tension superficielles génèrent des contraintes face à leur croissance, ce qui a pour conséquence un arrondissement de la forme des cellules et une diminution de la porosité. Et comme les cellules n'évoluent que très peu, le coefficient C_{vol} augmente.

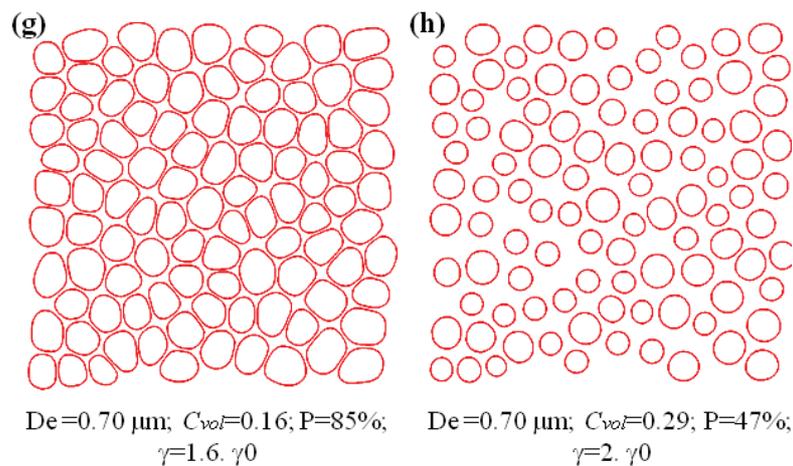


Figure 69: Différentes morphologies de microstructures simulées

Ainsi à même porosité nous pouvons obtenir différentes morphologies de microstructures. La taille, la forme ainsi que la répartition spatiale des cellules peuvent varier pour un nombre de cellules et une porosité constante, ce qui nous permettra de pouvoir déterminer précisément l'impact de la géométrie et de la distribution des cellules dans le comportement mécanique des mousses.

Les microstructures obtenues sont des images vectorielles contenant des points et des lignes pour représenter les contours des cellules. Il faut ensuite extraire les modèles correspondants. En deux dimensions l'opération d'extraction consiste d'abord à différencier l'intérieur des

cellules de l'extérieur en donnant une valeur de pixels noirs par exemple pour représenter le mélange et des pixels blanc pour l'intérieur des cellules. Des fichiers en extension .dxf ou .stl sont créés à partir de l'image binaire obtenue donnant au final le modèle de la microstructure.

3.4.2.2. Génération de modèles de microstructures 3D

L'algorithme en 3D est globalement identique. Cependant la génération d'une structure 3D précise dépend de l'échantillonnage initial des points définissant la surface des cellules ainsi que du maillage surfacique adopté. En effet chaque cellule à la nucléation est définie par un ensemble de vertices équidistants. Un maillage régulier de ces vertices avec des éléments triangulaires équilatéraux identiques est adopté pour former le polyèdre sphérique délimitant le contour de la cellule. Cependant le polyèdre garde le même maillage à chaque itération de la simulation afin de réduire au minimum les temps de calculs. L'algorithme calcule les déplacements des vertices et réactualise leurs nouvelles coordonnées dans le maillage du polyèdre. Ainsi plus l'échantillonnage du nombre de points de la cellule est fin et plus précise est la morphologie finale de la microstructure. La Figure 70.a donne la microstructure initiale d'une simulation 3D où toutes les cellules apparaissent en même temps et la Figure 70.b la structure cellulaire finale. Le nombre initial de vertices par cellule est de 600. On observe bien la déformation des cellules à travers leur maillage. Les paramètres de sorties mesurés en 2D le sont de même en 3D, les conditions aux limites périodiques sont aussi bien prises en compte.

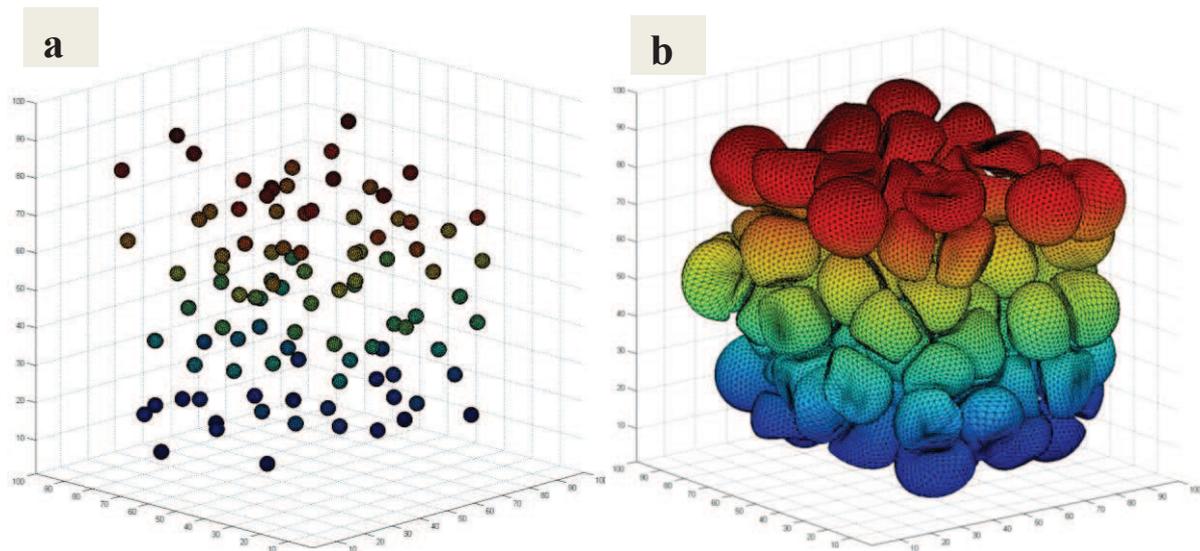


Figure 70: Simulation 3D Nucléations initiales (a) et microstructure finale (b)

A la fin de chaque simulation, les vertices et les maillages définissant les cellules sont enregistrés sous un format de fichier DXF (Drawing eXchange Format) ou STL (Stereolithography File). Ce sont des formats de fichiers très adaptés à la conception et au dessin assistés par ordinateur [111]. Nous pouvons par la suite exploiter directement les données statistiques sur la distribution des cellules et surtout extraire les modèles de microstructures de mousses correspondants. Pour ce faire il faut d'abord générer les contours surfaciques à partir des maillages des cellules alvéolaires (Figure 71.a). La génération des

contours surfaciques est réalisée par une disposition de patch de surfaces remplaçant le maillage des cellules. On obtient des formats de fichiers .IGS ou IGES (Initial Graphics Exchange Specification) [112]. Les cellules sont considérées par la suite comme des solides bien définis par leur contours surfacique. La grille de simulation est aussi modélisée par un solide cubique et une opération géométrique d'intersection entre les cellules et la grille permet de représenter physiquement la matière entre les cellules. On obtient un cube poreux. Finalement la dernière étape consiste à extraire des échantillons du cube en découpant des formes cylindrique ou cubique pour obtenir les modèles de microstructure finale (Figure 71.c).

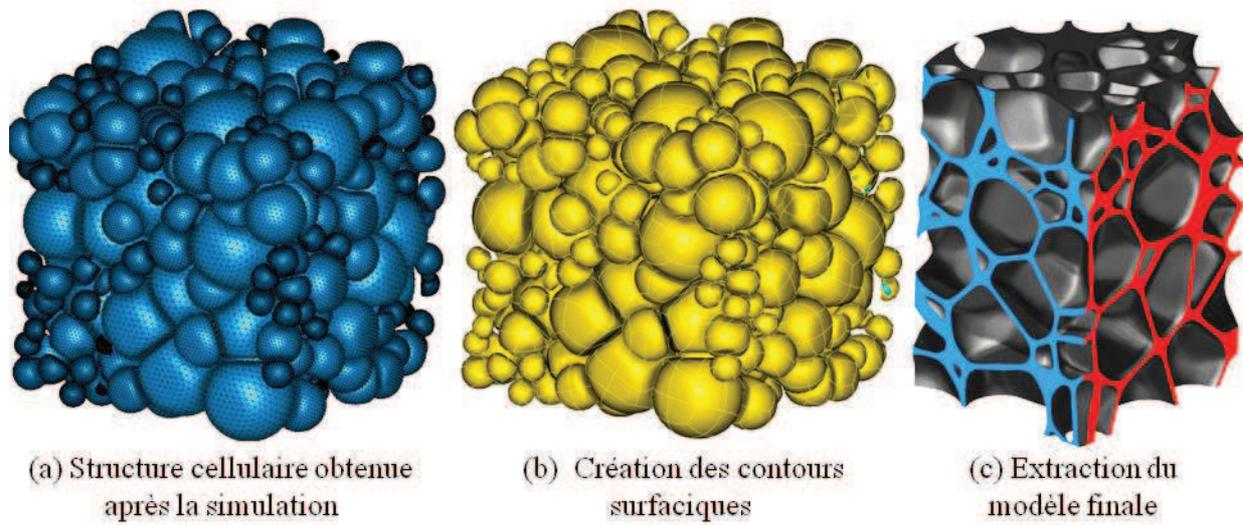


Figure 71: Simulation 3D et extraction du modèle de microstructure

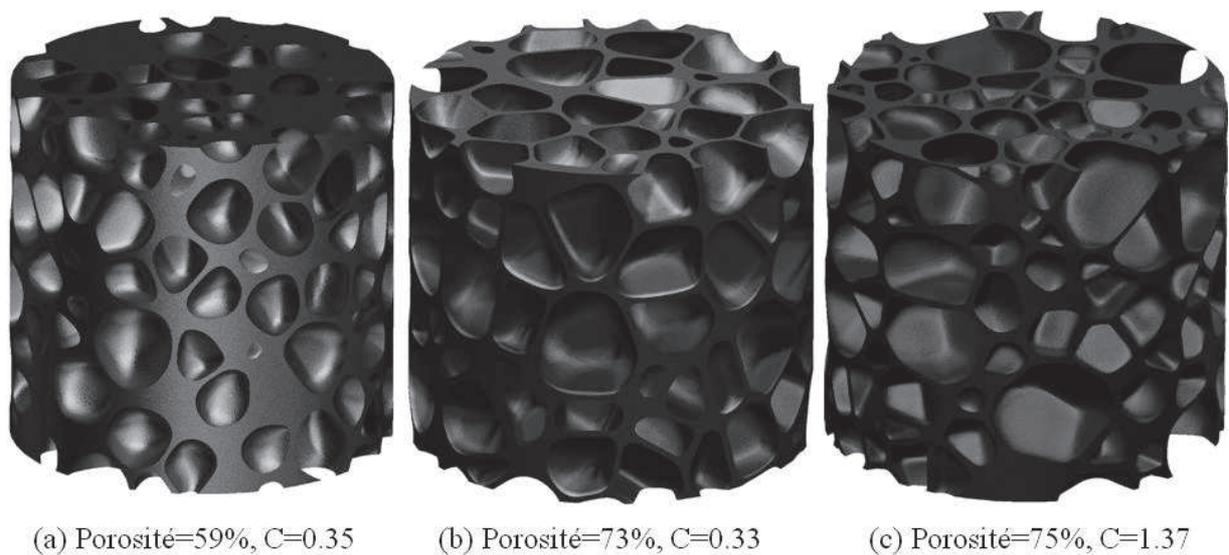


Figure 72: Trois différents modèles de microstructures 3D générés

La figure ci-dessus donne trois exemples de modèles de microstructures générés. Dans les modèles (a) et (b) toutes les cellules ont nucléées en même temps. Les cellules sont

globalement de même taille, le coefficient de dispersion C_{vol} valant respectives 0.35 et 0.33. Nous observons bien la différence entre les tailles des cellules des deux modèles de porosités 59% et 73%. Cependant les modèles (b) et (c) ont pratiquement la même porosité. La seule différence ici est le fait qu'il y a deux échelles de tailles de cellules très distinctes pour le modèle (c) avec un coefficient $C_{vol} = 1.37$. La distance d'écrantage est constante pour tous les trois modèles.

D'autres modèles de microstructures peuvent aussi être générés comme en 2D en fonction des paramètres de la simulation. Nous pouvons remarquer que la plupart des morphologies de ces microstructures ressemble géométriquement aux microstructures réelles observées. Il s'agit alors de bien situer, à défaut de pouvoir quantifier, les erreurs et les limites du modèle physique et de valider la cohérence des microstructures générées par rapport aux microstructures réelles.

3.5. Cohérence physique et limites du modèle physique

3.5.1. Erreurs du modèle

La simulation numérique de l'évolution de la microstructure durant le processus de fabrication des mousses n'est qu'une solution approximative. En plus des erreurs qui pourraient être introduites dans le développement de l'algorithme du modèle physique, dans sa programmation ou de la mise en place des conditions aux limites, la solution numérique finale comprend principalement trois types d'erreurs systématiques [110][113]:

- Les erreurs de modélisation provenant de la différence entre le processus de fabrication réel d'une mousse et la solution exacte du modèle physique développé sans approximation. En effet le modèle physique du générateur de microstructures n'est pas parfait. En premier lieu il s'appuie sur la modélisation du mélange polymère considéré comme un fluide incompressible et viscoélastique. La nature et les propriétés du mélange sont totalement différentes de celles du polymère de base. De plus la complexité des couplages thermo-chimio-rhéologiques durant le process altère continuellement ses propriétés intrinsèques dans le temps et de manière hétérogène. Des essais expérimentaux très spécifiques sont donc nécessaires pour établir l'évolution des propriétés du mélange. Le modèle rhéologique de Kelvin Voigt adopté a ses limites et ne représente pas fidèlement le comportement du mélange. Sa relative simplicité a malgré tout permis de déterminer les champs de contraintes générés par l'interaction des cellules. D'autres modèles rhéologiques plus complexes et plus représentatifs peuvent être adoptés mais rajoutent encore plus de difficultés dans la résolution des équations aux dérivées partielles non linéaires.

- Les erreurs d'approximation provenant de la différence entre la solution exacte des équations non linéaires aux dérivées partielles du modèle physique et de la solution approximée. Les hypothèses et les approximations établies ont été nécessaires pour permettre la résolution analytique directe des équations non linéaires. Bien qu'elles simplifient radicalement l'algorithme de simulation, elles restreignent en même temps le domaine de définition des solutions numériques.
- Les erreurs de discrétisation et d'itération. La discrétisation spatio-temporelle des solutions approximées engendrent irrémédiablement des erreurs numériques dans les calculs itératifs pour simuler l'évolution de la microstructure des mousses. Nous avons cependant veillé à la stabilité et la précision de l'algorithme de simulation pour limiter les dissipations numériques.

Par rapport à toutes ces erreurs inhérentes à la modélisation numérique du processus de fabrication des mousses, il est alors nécessaire de valider la cohérence physique du modèle développé en analysant et en comparant les microstructures générées par rapport aux microstructures réelles de mousses.

3.5.2. Comparaison des microstructures générées et des microstructures réelles de mousses

Nous voulons comparer les distributions de tailles, de formes et de positions des cellules entre des modèles de microstructures générés et des microstructures réelles issus de tomographie RX. Pour que cette comparaison puisse être effective, il faut d'abord adapter le modèle physique aux modèles de microstructures réelles, c'est-à-dire idéalement trouver les paramètres exacts du processus de fabrication des microstructures réelles et les intégrer dans le modèle physique qui va ensuite générer les microstructures que l'on souhaite comparer. Ces microstructures seraient donc issues virtuellement du même processus de fabrication que celles réelles. A l'heure actuelle nous n'avons pu mesurer que certaines caractéristiques (température, pression, masse volumique) du mélange au cours d'un process. Les paramètres d'entrées tels que la distribution spatio-temporelle des cellules, la tension superficielle, l'évolution de la viscosité ou du module élastique restent encore très difficiles à déterminer expérimentalement.

De ce fait, nous avons changé de stratégie : Au lieu de déterminer expérimentalement les paramètres process à intégrer dans notre modèle pour simuler des microstructures, notre nouvelle approche consiste à extraire certaines données statistiques des modèles de microstructures réelles qui vont servir de paramètres d'entrées ou de consigne pour différents modèles générés. Nous avons ainsi comparé le modèle de microstructure *A* issu de la tomographie X à un modèle généré suivant les mêmes paramètres. Les étapes suivantes sont effectuées :

- **Extraction de statistiques**

D'abord nous avons extrait à partir d'un modèle de microstructure réel des statistiques sur la distribution de taille des cellules ainsi que leur répartition spatiale afin d'évaluer une distribution spatio-temporelle de cellules similaires à celle du processus de fabrication (Figure 73).

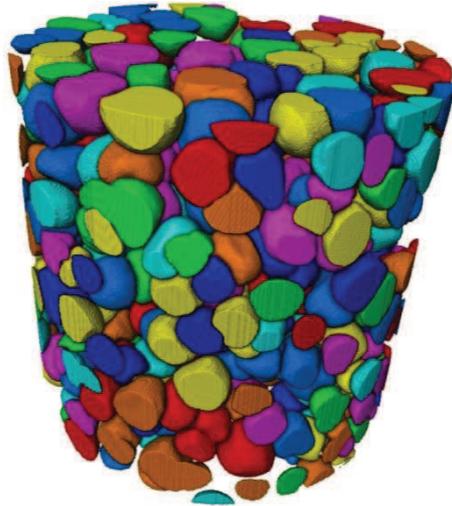


Figure 73: Modèle de microstructure réel testé (600 cellules)

Pour déterminer la distribution temporelle nous avons corrélié les instants de nucléation des cellules à leur taille en supposant que plus une cellule est vieille, plus elle est grosse. La structure du modèle réel est de type poly disperse. Chaque cellule adopte alors un profil de croissance unique. Comme le modèle de microstructure généré doit avoir idéalement la même porosité, la même taille moyenne de cellule ainsi qu'une dispersion de taille identique, il faut alors s'assurer que les profils de croissance des cellules du modèle généré correspondent à ceux du modèle réel. La Figure 74 donne les profils de croissance de cellules dans la distribution de type 3 poly-disperse. Chaque profil donne à la fin de la simulation un volume unique (flèche rouge). Nous avons ainsi déterminé le profil de croissance de chaque cellule par une interpolation sur les profils voisins. Ces profils de croissance donnent les instants de nucléations exacts pour obtenir un modèle généré et respectant les contraintes imposées (taille moyenne de cellules, dispersion...).

L'efficacité de cette méthode repose principalement sur l'hypothèse que les centres des cellules déjà nucléées ne se déplacent pas lors du processus d'expansion et que leur répartition spatiale n'impacte pas trop les profils de croissance des cellules.

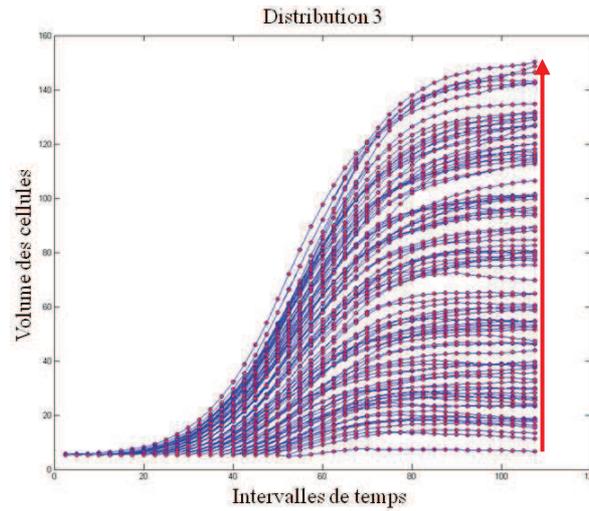


Figure 74: Calcul des instants de nucléation des cellules du modèle réel en adaptant la distribution de type 3

- **Génération du modèle**

Nous avons ensuite simulé une microstructure avec certaines valeurs de caractéristiques ρ_0, η_T, E_T et de tension superficielle. Les positions des centres des cellules sont corrélés à leur instant de nucléation et la simulation est arrêtée dès lors que la porosité atteint celle de la mousse réelle *A*. La Figure 75.a donne la microstructure finale obtenue. Les cellules externes sont évidemment très différentes de celles du modèle réel. En effet comme le modèle réel est cylindrique, nous n'avons pas appliqué de conditions aux limites périodiques (inadaptées). Et en l'absence de toutes contraintes extérieures, ces cellules grossissent très vite. A la fin de la simulation, nous avons cependant extrait un plus petit modèle de 400 cellules afin de minimiser ces effets de bords (Figure 75.b).

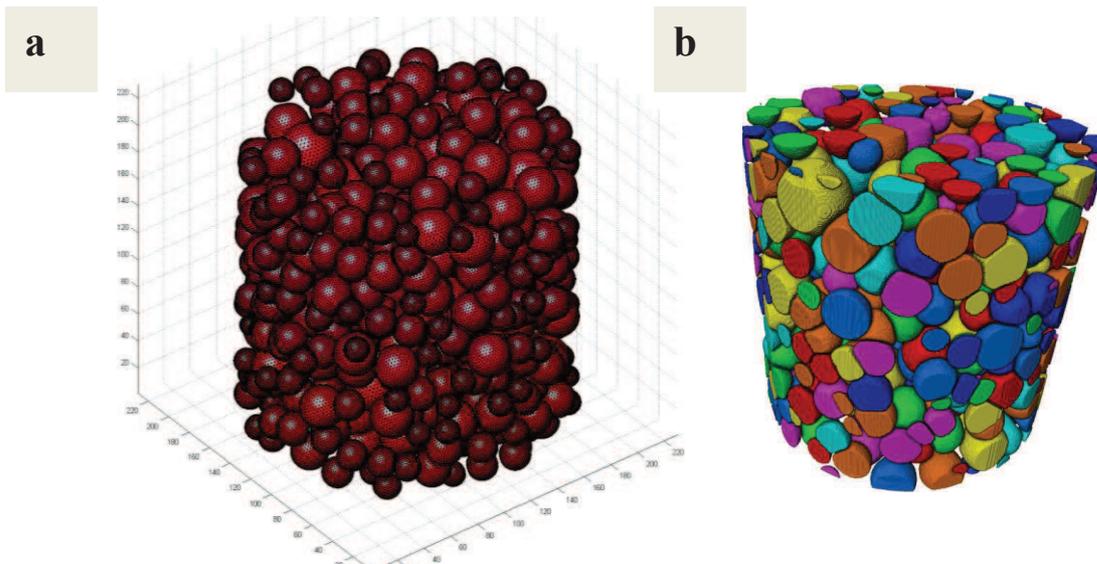


Figure 75: Microstructure simulée avec 600 cellules (a) et modèle cellulaire finale à 400 cellules (b)

- **Comparaison des modèles**

Nous voulons vérifier si le modèle généré donne les mêmes distributions de taille, de forme et de position des cellules que le modèle réel. Sachant que la distribution spatio-temporelle est tirée du modèle réel, il convient de comparer leur distribution de forme des cellules. La Figure 76 montre deux courbes donnant la sphéricité en fonction du volume des cellules (a) et du diamètre équivalent (b). Ces courbes permettent de corréler la taille et la forme des cellules. Globalement, les deux modèles sont très similaires dans la forme et le volume des cellules.

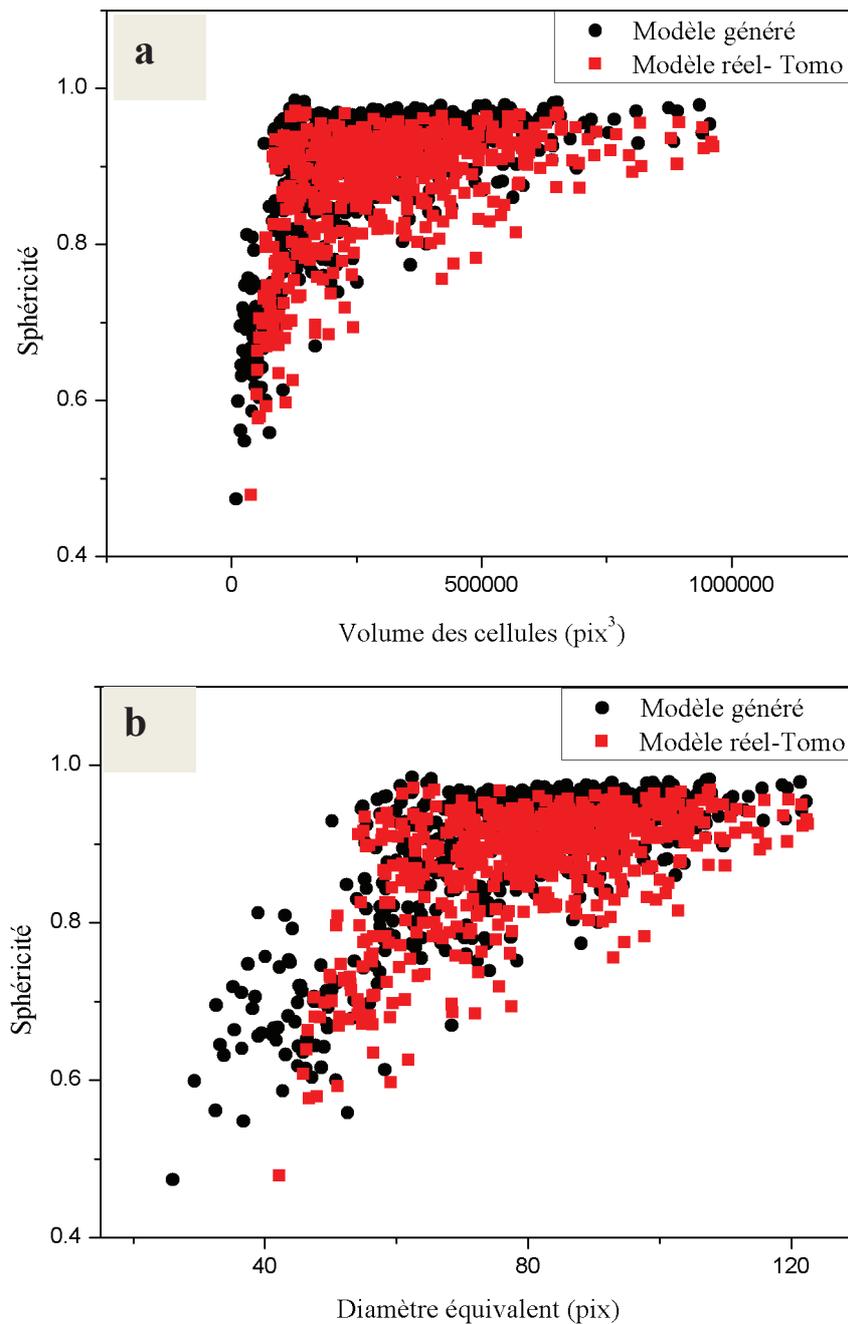
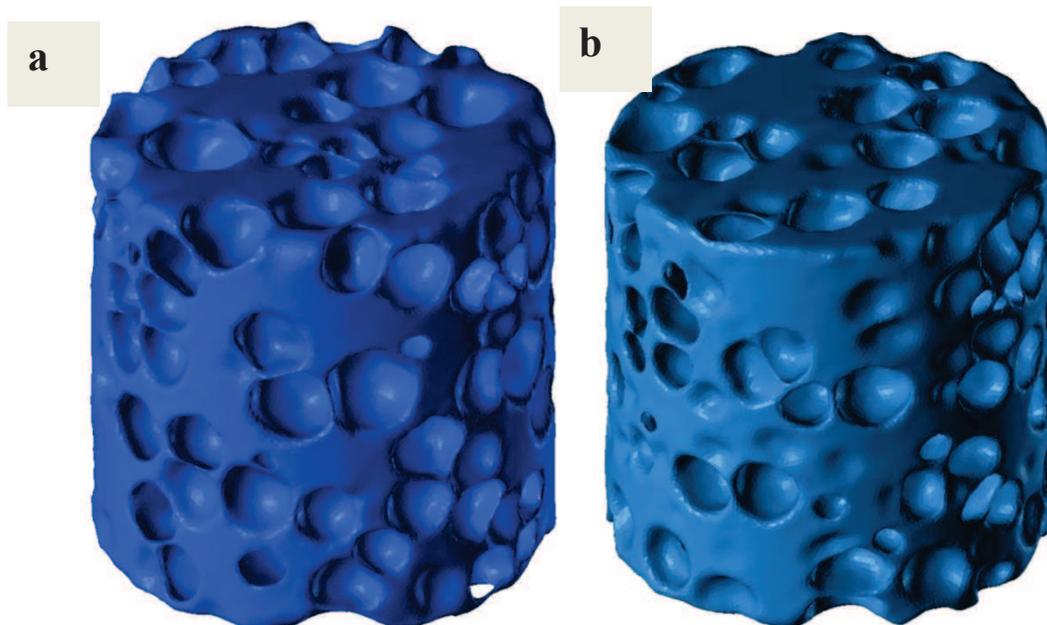


Figure 76 : Comparaison du modèle généré et du modèle réel : (a) Analyse de la sphéricité et du volume des cellules ; (a) Analyse de la sphéricité et du diamètre équivalent

Nous pouvons cependant noter quelques légères différences :

- A sphéricité égale, la taille des cellules du modèle réel est plus grande notamment sur le diamètre équivalent des cellules.
- A volume et à diamètre équivalent égaux, les cellules du modèle généré sont très légèrement plus sphériques (distribution points noirs décalé vers le haut).

Ces légères différences ne sont pas dues à la porosité des modèles. Le modèle généré a une porosité de 58.5% qui est légèrement supérieure à la porosité de la mousse réel de 56%, ce qui se traduit par une taille de cellule moyenne plus grande ($3,07 \cdot 10^5 \text{pix}^3$ et $2,84 \cdot 10^5 \text{pix}^3$ respectivement). Nous avons alors analysé les modèles de microstructure 3D correspondant et des coupes 2D longitudinales (Figure 77). En comparant les coupes a1 et b1 ou a2 et b2 nous observons que la géométrie du modèle génère (a) est plus « simple » avec des formes de cellules globalement plus convexes ou rondes, ce qui explique les petites différences observées. D'autre part, si sur certaines régions les deux morphologies de microstructure peuvent être très similaires, sur d'autres nous n'avons pas la même géométrie (flèches rouges et vertes).



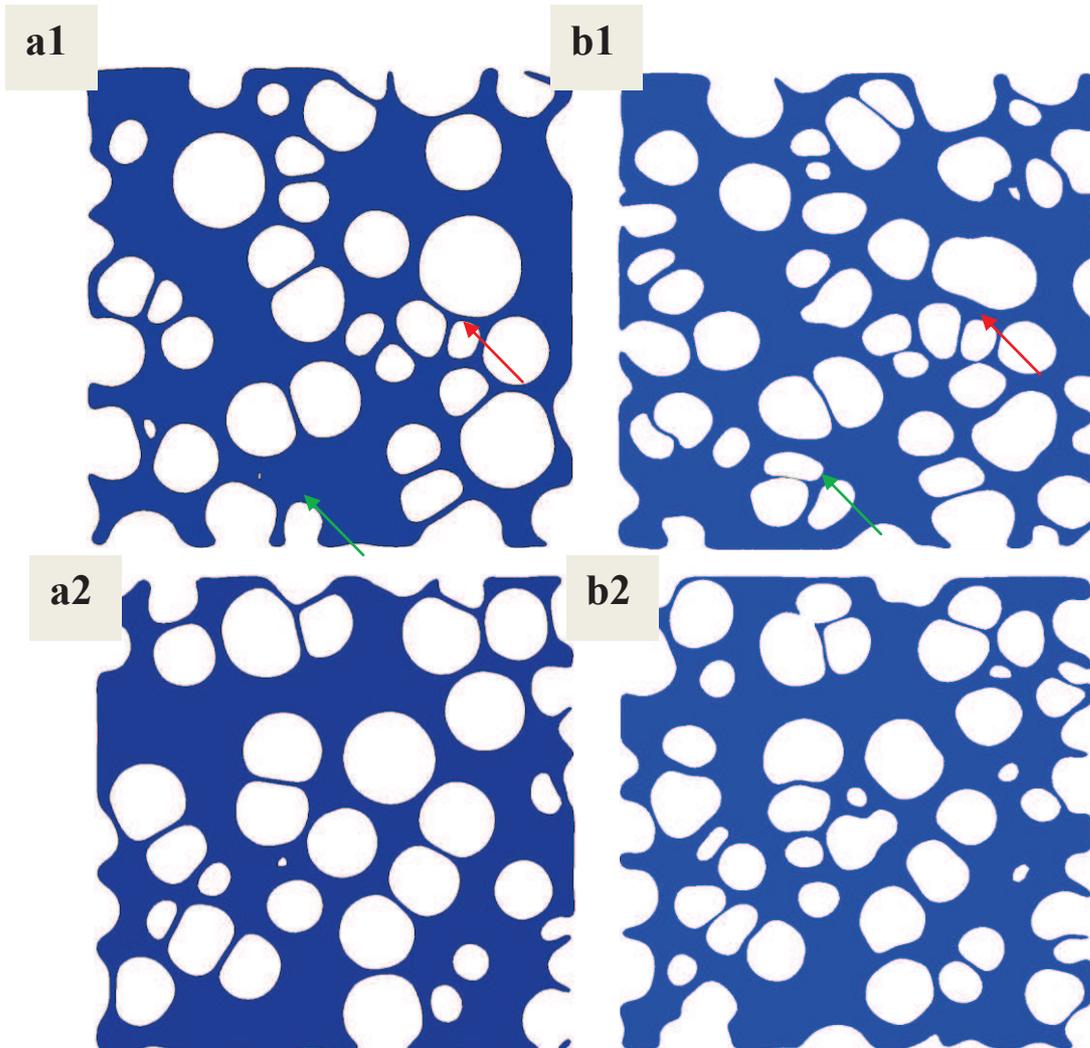


Figure 77: Modèle de microstructure généré (à gauche) et modèle réel à 400 cellules (à droite) :
Modèles 3D et deux coupes longitudinales différentes

Au final, statistiquement, les modèles généré et réel sont très similaires mis à part quelques petites différences d'ordre géométrique à l'échelle fine de la microstructure. Quand on observe la microstructure dans son ensemble, le modèle généré donne une représentation fidèle de la morphologie d'une vraie mousse. Il s'agit alors de vérifier et de valider ces similitudes par une analyse élément finis afin de comparer les réponses mécaniques du modèle généré par rapport au modèle réel. Cette étude sera effectuée dans le chapitre suivant.

3.6. Conclusion

Ce chapitre a porté sur la description du générateur de microstructure cellulaire basé sur une modélisation physique du processus d'obtention de mousses polymères. Le générateur permet de rendre compte de la création et de l'évolution de la microstructure de la mousse en cours d'élaboration en fonction des paramètres process (température et pression) et des caractéristiques physiques du mélange polymère modélisé comme un fluide viscoélastique incompressible. Le modèle physique intègre aussi la distribution spatio-temporelle des cellules, leur pression interne, la pression externe dans le mélange polymère ainsi que les

forces de tensions superficielles pour prédire les déplacements et les déformations des interfaces gaz-fluide durant l'expansion de la mousse. Ainsi en fonction des valeurs données des paramètres tels que la masse volumique, le module d'Young ou encore la viscosité, un très large spectre de modèles de microstructures aux morphologies très variées et se rapprochant significativement de celles observées expérimentalement est obtenu.

Les modèles de microstructures générés ont ensuite été comparés aux microstructures réelles issues des observations de tomographie RX à haute résolution. En particulier, sur la base d'une analyse statistique, des comparaisons en regard des porosités, des tailles de cellules ou encore de leur sphéricité ont été réalisées. Ces comparaisons ont permis de valider la cohérence physique du générateur ainsi que le réalisme des différentes morphologies microstructurales obtenues et d'aborder la compréhension du mécanisme de déformation des mousses sous un angle différent des études publiées jusqu'alors.

Le générateur de microstructure n'est pas parfait. Comme vu dans le paragraphe 3.5.1 il ya certaines erreurs inhérentes à la modélisation physique du processus de fabrication des mousses. Parmi les défauts du modèle physique nous pouvons aussi noter l'incapacité de vérifier la conservation de matière, la quantité de mouvement ou le caractère incompressible du mélange polymère malgré les conditions aux limites périodiques imposées. Pour bien implémenter les équations de conservations de la masse, les équations de continuité aux interfaces gaz-mélange, et aussi réduire les erreurs de simulations, nous avons élaboré un autre modèle physique basé cette fois sur la modélisation en mécanique des fluides numérique (CFD) du mélange liquide. Ce nouveau modèle adapte directement les équations de Navier Stokes dans le cas d'un fluide incompressible et viscoélastique. L'algorithme final prend son originalité principalement dans la manière de modéliser le fluide comme un ensemble de particules hydrodynamiques suivies par une méthode eulérienne et dans la méthodologie de résolution numérique des équations non linéaires. De plus les phénomènes de coalescence et de mûrissement des cellules sont bien mieux prises en compte grâce à de nouvelles méthodes de tracking des interfaces gaz-polymère. Ce nouveau modèle fait l'objet d'un article en cours de parution. Il est développé plus en détail en annexes.

4. Simulation Numérique

4.1. Introduction

Dans les précédents chapitres nous avons élaboré une panoplie de microstructures en 2D ou 3D. Ces morphologies sont soit obtenues à partir d'observations réelles d'échantillons de mousses en micro tomographie X (chapitre 2) soit générés numériquement à partir du générateur de microstructures (chapitre 3). De plus nous avons pu caractériser expérimentalement le comportement mécanique des matériaux (en volume) constitutifs de plusieurs mousses polymères. Il s'agit alors de coupler les lois de comportement et les propriétés de ces matériaux aux morphologies microstructurales obtenues dans une analyse par éléments finis, le but étant de bien identifier les mécanismes de déformations ainsi que l'impact de la morphologie de la microstructure des mousses sur leur comportement mécanique.

L'adoption de la méthode des éléments finis est incontournable dans l'étude des mécanismes de déformations à l'échelle de la microstructure des mousses. Elle permet, grâce à la mise en place d'un algorithme mathématique, de rechercher une solution approchée des équations d'équilibres aux dérivées partielles (mécanique, thermique...) sur un domaine spatio-temporel compact discrétisé avec des conditions aux limites bien définies. Plusieurs études concernant l'impact de la microstructure de mousses polymères sur leur comportement mécanique ont été réalisées en adoptant une approche de simulation numérique. Par exemple, Brydon et al. [114] et Bardenhagen et al. [115] l'ont utilisée pour étudier le comportement à la compression des mousses polymères à cellules ouvertes. Gilchrist et Mills [116] ont effectué des recherches visant à valider par une analyse éléments finis la modélisation des impacts sur des mousses rigides de faible densité. Ces mousses étant utilisées pour l'absorption d'énergie d'impact des casques ou des composants automobiles.

La simulation par éléments finis nous permettra ainsi de calculer numériquement les champs de contraintes et de déformations des modèles de mousses polymères aux morphologies microstructurales très complexes sous des contraintes mécaniques de traction, de compression ou de cisaillements. Toutefois il est très important de bien définir les modèles éléments finis pour minimiser les erreurs de simulations et tendre vers une solution stable et convergente. En effet plusieurs choix sont susceptibles d'influer sur le résultat de simulation. Ces choix doivent être guidés en premier lieu par l'objectif de l'étude, du choix du solveur adéquat en fonction du type de calcul théorique, du maillage éléments finis du modèle de microstructure, de la modélisation des actions de contact, du comportement d'un matériau... Dans un premier temps nous allons définir les objectifs et les paramètres importants de la simulation numérique particulière de nos modèles de microstructures de mousses. Ensuite nous développerons plus en détail les résultats des analyses effectuées en 2D puis en 3D.

4.2. Objectif général de la simulation numérique

L'objectif général de la simulation numérique est de décrire finement les mécanismes de déformations ainsi que les lois de comportement mécanique en régime de compression non linéaire d'un très large spectre de morphologies microstructurales de mousses en intégrant simultanément les caractérisations mécaniques des matériaux « bulk » de mousses, les modèles de microstructures réelles issues des observations tomographiques et les modèles générés virtuellement grâce au générateur physique de microstructures. Cet objectif général est atteint en procédant premièrement à trois grandes étapes d'analyse numérique essentielles et successives dans le but de :

- Etudier le volume élémentaire représentatif (VER). Le VER est le plus petit volume pour lequel les mesures et les simulations effectuées sont significativement représentatives du comportement mécanique de la mousse à l'échelle macroscopique.
- Comparer méthodiquement différentes morphologies de microstructures pour voir séparément les impacts de la porosité, de la distribution de tailles ou de formes des cellules ainsi que de leur répartition spatiale. Dans cette étude la définition préalable du VER est indispensable et permet de généraliser les tendances observées à l'échelle macroscopique des mousses.
- Analyser à l'échelle fine de la microstructure les champs de contraintes et de déformations des modèles réels issus d'observations tomographiques. La simulation numérique couplée aux analyses in situ effectuées en tomographie X nous permettra de précisément identifier les mécanismes de déformation des mousses en régime non linéaires.

La simulation numérique des modèles en grandes déformations requière une puissance de calcul et des capacités mémoires (RAM) croissant en fonction de la finesse des maillages des microstructures. L'analyse numérique a alors été scindée en deux parties : une analyse 2D et 3D, nous permettant ainsi d'optimiser les modèles numériques en fonction des cas d'études. Les objectifs seront revus et développés plus en détails dans chacun des deux types d'analyses effectuées.

4.3. Description des modèles de simulation EF

Un modèle de simulation éléments finis intègre dans un solveur la microstructure maillée, les lois de comportements du matériau de ce modèle, ainsi que différents autres paramètres tels que les conditions aux bords, les conditions initiales.... En fonction du type d'étude la précision et la cohérence de la simulation numérique est alors conditionnée par une bonne description du modèle de simulation EF.

4.3.1. Le choix du solveur

Le choix du solveur adéquat dépend principalement du modèle de calcul théorique, du domaine de déformation recherché et finalement des moyens financiers à disposition. Le modèle de calcul est obtenu par la discrétisation d'une théorie continue le plus souvent issue de la physique des milieux continus. La théorie continue peut être n'importe quelle théorie de la mécanique des milieux continus (mécanique, thermique, électrique, électromagnétique...). En fonction de nos objectifs, nous avons adopté une analyse principalement structurale afin de déterminer les champs de contraintes et de déformations mécaniques dans les modèles EF. D'autre part l'étude du comportement mécanique des modèles EF est menée en grande déformation, ce qui induit fortement des non linéarités issues principalement :

- Des lois de comportement des matériaux des mousses non linéaires
- De la géométrie hétérogène de la microstructure
- Des solutions au problème physique non linéaire à causes des conditions aux limites ainsi que des actions de contacts (traction, compression...)

Il est alors nécessaire d'adopter un solveur de calcul éléments finis adéquat. Parmi ceux disponibles dans le commerce nous pouvons citer les logiciels les plus souvent utilisés ABAQUS [117], ANSYS [118] ou RADIOSS [119]. Ces logiciels sont tous pluridisciplinaires et intègrent plus ou moins explicitement les non linéarités dans la résolution numérique de problèmes complexes. Nous avons utilisé le logiciel MARCHENTAT [120] qui est totalement optimisé pour l'analyse éléments finis en régime non linéaire. Ce logiciel utilise des algorithmes mathématiques avancés et des technologies éléments finis pour obtenir systématiquement des solutions convergentes pour les problèmes fortement non linéaires impliquant des matériaux non-linéaires, de grandes déformations et de grands déplacements.

De plus les fonctionnalités du logiciel Marc incluent:

- La simulation des contacts (simulation d'un assemblage)
- Des ensembles de modèles de matériaux non linéaires
- Le maillage adaptatif pour améliorer la convergence
- La multiphysique (couplage thermomécanique par exemple)
- Le traitement en parallèle, pour réduire les temps de calcul

Le logiciel est composé d'un préprocesseur (interactif, rentrée des données de simulation) d'un bloc de calcul (non interactif calculant la matrice de raideur...) et d'un post processeur (interactif, affichage des résultats).

4.3.2. Les modèles de microstructures EF

La simulation numérique de la réponse mécanique d'un modèle de vraie mousse sous contraintes est un défi de calcul bien établie en raison de la complexité variable de la morphologie de sa microstructure [121]. Cette complexité de la microstructure croit généralement avec l'augmentation de la porosité pour une connectivité des cellules partiellement ou totalement fermée. Sachant que les études sont réalisées sur une large gamme de porosité, il est important de pouvoir identifier de manière simple et précise, à l'aide de paramètres spécifiques, chaque morphologie de microstructure. Cette caractérisation permettra en retour une étude rigoureuse et méthodique en découplant les influences de chacun de ces paramètres d'identification dans le comportement mécanique des modèles de mousses. Ainsi dans un premier temps nous allons présenter la méthodologie d'identification des morphologies de nos modèles de microstructures. Ensuite nous décrirons l'étape de maillage éléments finis en 2D et en 3D.

4.3.2.1. Paramètres d'identification de la morphologie d'une microstructure

Comme vue dans les chapitres précédents, la caractérisation de la morphologie d'une microstructure dépend principalement de la porosité, de la connectivité des cellules (cellules fermées ou ouvertes) et de la géométrie de la microstructure. Dans un premier temps nous avons caractérisé la géométrie d'une microstructure en identifiant trois types de distributions : la distribution de taille, la distribution de forme et la répartition spatiale des cellules. Notre objectif est de simplifier la caractérisation de chacun des types de distribution par des paramètres d'identification représentatifs.

4.3.2.1.1. Paramètres d'une distribution

L'identification simplifiée d'une distribution statistique donnée n'est pas aisée. Lorsque l'on est en face d'une série statistique comportant un grand nombre de termes (distribution de volume de cellules, de diamètre équivalent...), il devient difficile d'analyser directement l'ensemble des données. La représentation graphique adoptée jusque là était un moyen efficace de représenter assez fidèlement la distribution. Ici il faut prendre en considération les informations spécifiques à mettre en avant dans le but de réduire au minimum le nombre de paramètres nécessaires à l'identification précise de la distribution. Nous pouvons résumer la distribution des données à l'aide de deux paramètres :

- Le paramètre de position: C'est la valeur centrale autour de laquelle se groupent les valeurs observées. Un exemple est la moyenne arithmétique μ_x pour une distribution théorique donnée de N éléments x :

$$\mu_x = \bar{x} = (\sum_{i=1}^N x_i)/N \quad (\text{eq. 4.1})$$

- Le paramètre de dispersion: il renseigne quant à l'étalement ou l'aplatissement de la distribution des valeurs (leur dispersion) autour de la valeur centrale. L'écart-type (ou la variance) est souvent utilisée. Pour une population statistique d'effectif N dont la moyenne vraie μ est connue, on utilise la formule suivante:

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (x_i - \mu)^2}{N}} \quad (\text{eq. 4.2})$$

Un autre paramètre de dispersion utilisé est le coefficient de variation qui est défini comme le rapport entre l'écart type et la moyenne :

$$C_v = \frac{\sigma}{\mu} \quad (\text{eq. 4.3})$$

Il existe d'autres types de paramètres des distributions comme le paramètre de forme qui régit uniquement la forme de la distribution et qui ne dépend pas des deux cités plus haut [122]. Le couple de paramètres simplifié (μ, σ) peut permettre la caractérisation précise de certaines distributions statiques. Ce couple permet par exemple de définir entièrement la loi de distribution normale. Nous avons cependant adopté le couple de paramètres (μ, C_v) pour identifier chacun des types de distributions de nos modèles de microstructures. En effet le paramètre C_v permet de mieux juger de la dispersion des valeurs autour de la moyenne que l'écart-type. De plus, c'est un coefficient sans dimension ce qui en fait un choix idéal pour notre étude. Nous pourrons alors comparer des microstructures à des échelles de tailles de cellules très différentes et des distributions de formes très distinctes (comparaison de formes polygonales de cellules à des formes plus arrondies et sphériques...).

4.3.2.1.2. Identification de la géométrie d'une microstructure

Les distributions de taille, de forme et de position des cellules dans la microstructure sont caractérisées par les séries de couples de paramètres (μ, C_v) . Ainsi la mesure de la distribution de taille des cellules est donnée par le volume moyen et le coefficient de variation de volume (μ_{vol}, C_{vol}) et/ou par le diamètre équivalent moyen et le coefficient de variation correspondant. La mesure de la distribution de forme des cellules peut être identifiée par la sphéricité moyenne et le coefficient de variation de forme (μ_{sph}, C_{sph}) . Il reste alors à caractériser la répartition spatiale des cellules dans la microstructure. Dans cette optique, nous avons adopté deux stratégies différentes.

D'abord pour les morphologies réelles issues des observations microstructurales de mousses au MEB et en microtomographie X, la mesure de la répartition spatiale est donnée par deux couples de valeurs (μ_{pos}, C_{pos}) . Pour une microstructure donnée (Figure 78.a), en 2D ou en 3D une première étape est la détermination des centres barycentriques des cellules comme vue au chapitre 2 (Figure 78.b). Ensuite une distribution statistique de la répartition spatiale est obtenue en calculant pour chaque cellule donnée la distance au centre de la cellule voisine la plus proche (Figure 78.c). μ_{pos} est alors la distance moyenne entre n'importe quelle cellule et sa voisine la plus proche. Et connaissant le diamètre équivalent moyen de la distribution de

taille, ce paramètre donne une indication de l'épaisseur moyenne des parois. C_{pos} est le coefficient de variation correspondant. Dans l'exemple donné les calculs de distributions donnent $\mu_{pos} = 61,5 \mu m$ et $C_{pos} = 0.24$.

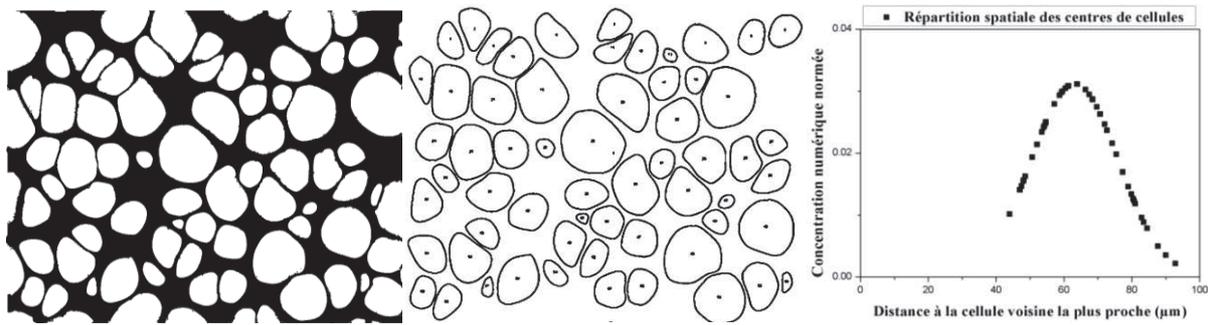


Figure 78: Mesure de la répartition spatiale des cellules des modèles réels

Pour les modèles créés numériquement à partir du générateur de microstructures l'identification de la répartition spatiale des cellules est effectuée en amont de la simulation de l'évolution de la microstructure. En effet, sachant qu'il faut idéalement découpler les influences des différents paramètres de la géométrie de la microstructure, il est relativement plus aisé et plus rigoureux de pouvoir paramétrer et contrôler la répartition spatiale des cellules avant la génération de la microstructure. Pour ce faire nous avons adopté une méthode de génération aléatoire de position de centre de cellules en fonction d'un unique paramètre α . L'idée principale est de générer une structure régulière initiale de points. Une perturbation de la structure en fonction d'un facteur donne une structure irrégulière et plus ce facteur est important et plus la répartition des points est aléatoire.

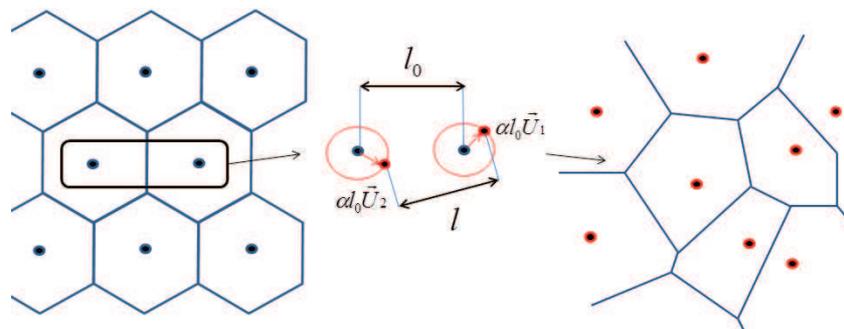


Figure 79: Paramétrage de la répartition spatiale des centres des cellules

La Figure 79 donne une illustration de la méthode de génération de structures aléatoires avec un diagramme de Voronoï représentant les partitions spatiales occupées par les points de la structure. A partir de la répartition régulière initiale d'un ensemble de points M_i donnés, le paramètre α donne une répartition différente en déplaçant tous les points suivant $\alpha l_0 \vec{U}_i$. l_0 est le paramètre de maille de la répartition régulière initiale, \vec{U}_i est un vecteur unitaire orienté aléatoirement pour le point M_i . α est sans dimension et compris entre 0 et 0.5, $\alpha=0$ correspond

à la structure la plus régulière. En 2D comme en 3D, la structure régulière adoptée est la structure cubique centrée plus représentative de la structure d'une mousse que la structure cubique simple. En 2D par exemple cela correspond à la structure « nid d'abeille ». Cette méthode est souvent utilisée dans le cadre de l'étude du comportement de modèles de mousses avec des structures types Voronoi [123],[124].

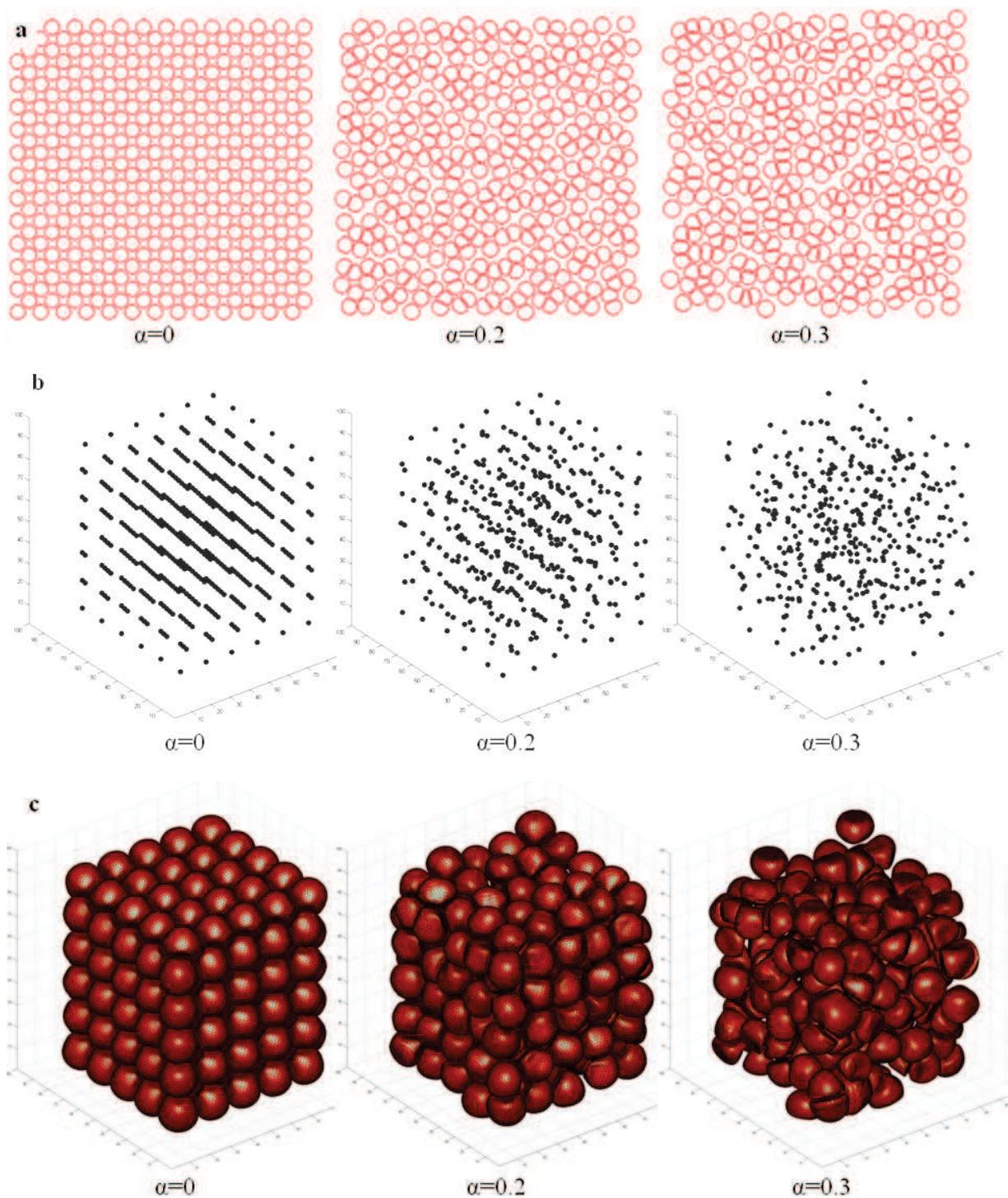


Figure 80: Modèles de microstructures en 2D (a) et en 3D à la nucléation (b) et à la fin de la simulation de la microstructure (c) pour différentes valeurs de α

Pour adapter cet algorithme de répartition des cellules dans le générateur de microstructures, toutes les cellules sont nucléées en même temps. La Figure 80 donne des exemples de microstructures générées en 2D et en 3D en faisant varier uniquement le paramètre α , les autres paramètres de distributions ainsi que la porosité étant pratiquement identiques pour chacun des modèles. En 3D, la Figure 80.b donne la répartition des cellules à leur nucléation au tout début de la simulation en fonction du paramètre α et la Figure 80.c donne les microstructures finales obtenues.

Nous avons comparé les valeurs des paramètres α fixées au début de la simulation aux coefficients de variations de la répartition de cellules calculés sur les microstructures finales. Sur ces exemples l'écart en pourcentage entre ces deux paramètres est inférieure à 2%. Le paramètre α donne ainsi une très bonne indication sur l'homogénéité de la répartition spatiale des cellules même si les centres de celles-ci se peuvent se déplacer au cours de la simulation de l'expansion de la microstructure.

4.3.2.1.3. Conclusion

Nous avons établi une série de paramètres pour pouvoir précisément identifier et caractériser une morphologie de microstructure donnée. Tous ces paramètres exceptés la valeur moyenne de la distribution de taille (μ_{vol}) sont sans dimension. Et l'adimensionnalité des paramètres d'identification nous sera très utile dans l'étude comparative de microstructures à des échelles de taille de cellules très différentes. Le volume moyen μ_{vol} peut être remplacé par le nombre de cellule N_{cel} de la microstructure en tenant compte de sa porosité et de la taille globale de l'échantillon de microstructure. Au final une identification précise de chaque microstructure est possible grâce à la connaissance de:

- La porosité P
- Des couples de coefficients (N_{cel}, C_{vol}) et (μ_{sph}, C_{sph}) identifiant les distributions de tailles et de formes des cellules, avec respectivement N_{cel} le nombre de cellules, C_{vol} le coefficient de variation de volume, μ_{sph} la sphéricité moyenne des cellules et C_{sph} le coefficient de variation correspondant.
- Le paramètre α donnant une mesure de la répartition spatiale des cellules.

Il s'agira ensuite de vérifier et de valider si tous les paramètres d'identifications retenus remplissent les conditions nécessaires et surtout suffisantes pour décrire de manière unique nos modèles de microstructures dans l'étude de leur comportement mécanique. Cette analyse sera effectuée dans le paragraphe 4.4.2.2.2.

4.3.2.2. Maillage éléments finis des modèles

La résolution d'un problème posé en simulation éléments finis est appliquée aux nœuds du maillage qui discrétise le domaine spatial étudié. Les valeurs en tout point sont déterminées en retour par une interpolation à partir des valeurs connues aux nœuds. Ainsi la réalisation préalable d'un maillage est primordiale. Le maillage des modèles de microstructures est un travail délicat et doit être mené avec le plus grand soin dans le but d'obtenir des résultats de simulation satisfaisants. Nous allons ici présenter les conditions d'obtentions d'un maillage valide et optimisé et l'application à nos modèles en 2D et 3D.

4.3.2.2.1. Les Types d'éléments d'un maillage

Un élément d'un maillage est une cellule élémentaire définie par un ensemble d'arêtes et de nœuds interconnectés en 2D (et de faces en 3D). La Figure 81 donne quelques types éléments en 2D et en 3D. Par exemple un élément linéaire a des côtés rectilignes en 2D et des faces planes en 3D. On peut aussi adopter des éléments quadratiques ou cubiques dont les lignes ou les faces sont courbées. Ces types d'éléments permettent de décrire plus fidèlement l'objet discrétisé, mais cela augmente aussi le nombre de nœuds nécessaires et donc alourdit les calculs.

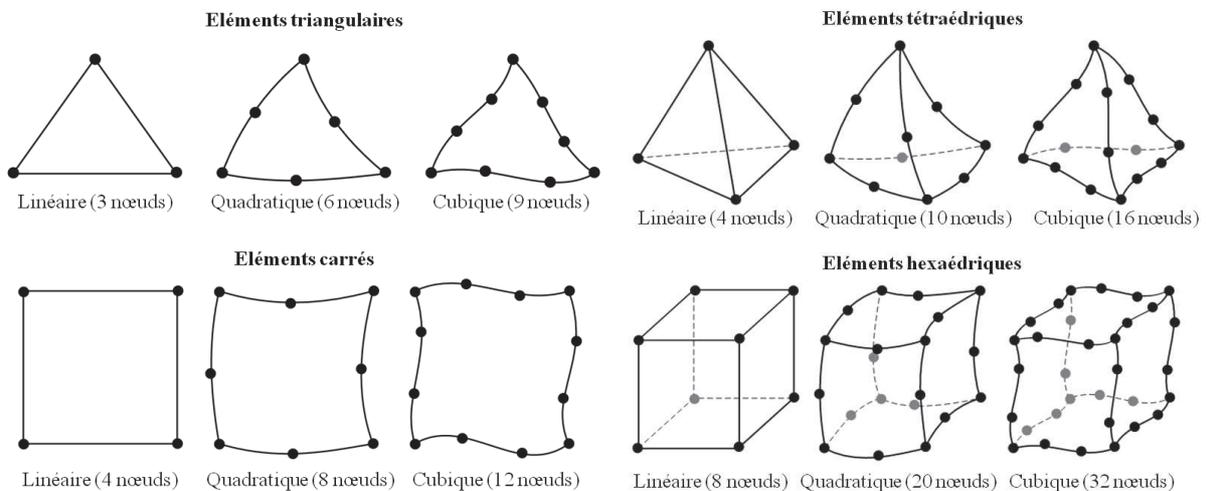


Figure 81: Quelques exemples de types d'éléments utilisés en 2D et en 3D

Les maillages les plus simples à réaliser sont les découpages en triangles (2D) ou en tétraèdres (3D) tandis que les maillages les plus efficaces sont les maillages réguliers (si possibles) ou constitués de parallélogrammes en 2D, et d'hexaèdres en 3D [125]. Leurs fonctions de base sont plus riches et peuvent représenter les gradients des contraintes et des déformations de façon plus régulière. A nombre de nœuds égal ces derniers permettent alors de mieux économiser les ressources informatiques (mémoire, temps de calcul). Une fois le maillage réalisé, il faut ensuite contrôler sa validité et l'optimiser.

4.3.2.2. Optimisation du maillage

Un maillage de mauvaise qualité peut bloquer l'exécution d'une simulation numérique ou au moins significativement affecter la précision des résultats obtenus. L'utilisation de mailleur automatique sur nos modèles de microstructures (en particuliers ceux issus des observations réelles tomographiques) engendre souvent quelques défauts de maillages et une intervention manuelle est nécessaire pour les rectifier et améliorer leur qualité. Quelques points sont à vérifier afin d'obtenir un maillage optimisé :

La géométrie du maillage :

Des critères impératifs à l'obtention d'une géométrie valide sont :

- De vérifier qu'il n'y a pas d'éléments isolés dans le modèle. Les éléments d'un même modèle doivent toujours être raccordés les uns aux autres de manière continue (nœuds, arêtes et faces communs à plusieurs éléments).
- De vérifier la non-intersection entre les éléments. Un maillage valide ne doit comporter aucune intersection entre ses éléments.
- De vérifier l'orientation correcte de toutes les arêtes et les faces des éléments contenus. Dans un modèle sans intersection, l'orientation est réglée automatiquement par le logiciel et peut facilement être modifiée si nécessaire.
- De vérifier la non-dégénérescence des éléments. Les éléments dégénérés (éléments aplatis, croisés...) sont susceptibles de conduire à un résultat de simulation faux (Figure 82)

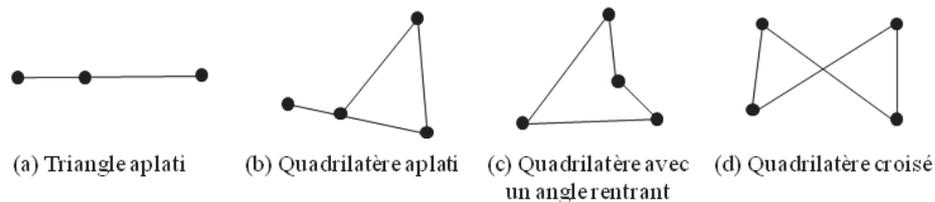


Figure 82 : Quelques exemples d'éléments dégénérés

Ces critères sont indispensables au lancement de la simulation numérique des modèles. Ensuite il s'agit de contrôler l'aspect global des éléments. Schématiquement, il s'agit de vérifier que les éléments ne sont pas trop distordus par rapport à leur géométrie de référence, c'est-à-dire que les éléments ont à peu près la même taille et une forme proche du polygone régulier. En effet, il est pratiquement impossible de créer un maillage composé d'éléments parfaits. Du fait de la complexité de la morphologie des microstructures traduite par la présence de géométries courbes, de fonctions minces et d'angles vifs, certains éléments générés vont avoir des arêtes plus longues que d'autres. La précision des résultats peut alors être grandement affectée lorsque la longueur des arêtes d'un élément varie dans de fortes proportions.

Le contrôle de l'aspect du maillage peut être obtenu par l'amélioration de deux indices : le rapport de forme des éléments (ou aspect ratio) et l'angle diédral. En 2D, l'angle diédral est l'angle formé par les côtés de deux triangles adjacents à leur bord commun. Un maillage de bonne qualité est souvent conditionné par une valeur d'angle diédral partout supérieure à 10° . L'aspect ratio d'un élément est le rapport entre le côté le plus long et le plus petit. Ce rapport est minimal et vaut 1 dans le cas d'un triangle équilatéral ou un carré ce qui définit un élément de qualité optimal non distordu (Figure 83).

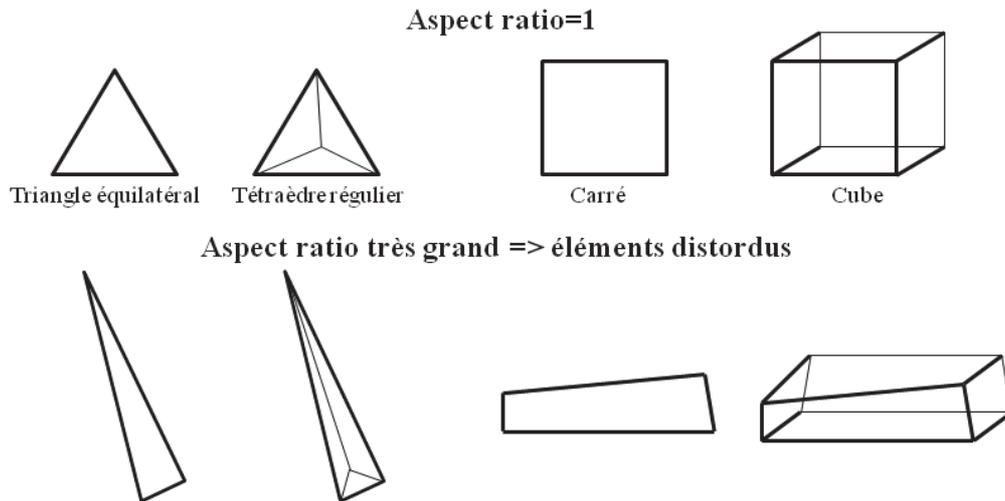


Figure 83: Variations des aspects des éléments en fonction de l'aspect ratio

Les problèmes liés à l'aspect des éléments surviennent souvent lorsque l'on tente de mailler des détails géométriques de petite taille avec des éléments trop grands. Une solution consiste alors à réduire localement la taille des éléments en subdivisant les éléments trop distordus. Dans ce cas de figure le changement de taille des éléments doit également être lissé dans tout le maillage. Il ne devrait y avoir localement de sauts brusques de la taille des éléments car cela peut entraîner des résultats erronés au niveau des nœuds à proximité. Une variation limite de 20% de la taille est souvent imposée.

La finesse du maillage :

Il s'agit ici d'optimiser le maillage global en fonction des objectifs de simulation. La taille des éléments, l'affinage et le choix d'un maillage adaptatif sont autant de facteurs influant sur la précision des résultats obtenus.

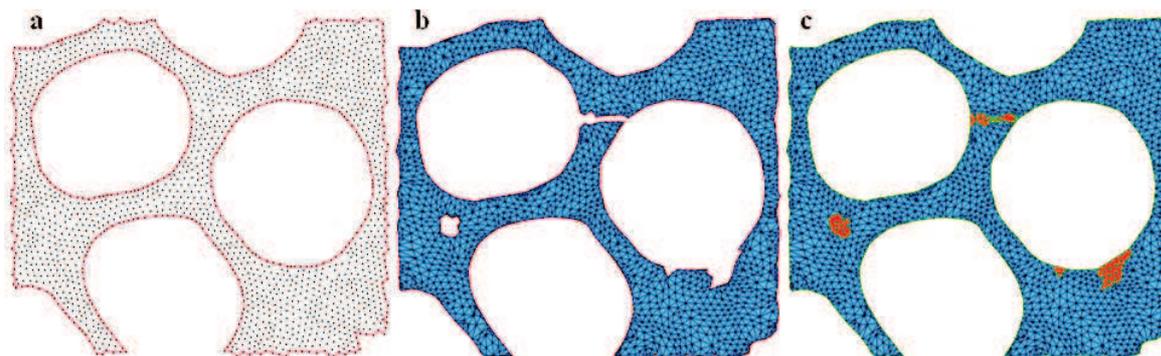
- Taille des éléments : Plus les points sont espacés, plus la simulation s'écarte de la réalité, mais à l'inverse, un maillage trop fin conduit à des temps de calculs extrêmement longs et nécessite des ressources informatiques importantes, il faut donc aussi trouver un compromis entre coût du calcul et précision des résultats.
- Raffinage du maillage dans les zones critiques et les endroits d'intérêts. Il n'est pas utile de raffiner partout le maillage de la même façon. les zones où la contrainte varie rapidement nécessitent des éléments plus fins que celles où la contrainte varie peu.

- Application d'un maillage adaptatif : Le but de cet outil est d'assurer une grande qualité au maillage au cours de la simulation numérique lorsque de grandes déformations sont appliquées. Ce qui maintient un niveau de robustesse des calculs pour atteindre de manière relativement aisée leurs convergences. Le logiciel de simulation éléments finis MARC MENTAT utilisé intègre naturellement le maillage adaptatif. Celui-ci peut être paramétré en fonction d'un nombre d'itérations seuil ou d'un seuil de déformation des éléments initialement prédéfinis.

4.3.2.2.3. Application aux modèles de microstructures

Le choix du type d'élément adéquat des maillages a été le premier point pris en compte. Il nous fallait trouver un compromis entre le temps de mise en œuvre et d'optimisation du maillage des modèles et les temps de simulation qui sont une fonction croissante du nombre d'éléments. A cause du nombre considérable de modèles de microstructures que nous avons eus à simuler et aussi des possibilités des maillages à notre disposition, notre choix s'est naturellement porté sur les éléments triangulaires en 2D et tétraédriques en 3D beaucoup plus simples à générer et à contrôler que les quadrilatères et les éléments hexaédriques. Ces types d'éléments sont ainsi adoptés pour tous nos modèles.

Pour les modèles de microstructures obtenus avec le générateur de microstructure ou ceux issus des observations réelles en tomographie X, un certain nombre de traitements est systématiquement effectué avant d'obtenir le maillage final. D'abord en 2D, les modèles générés sont enregistrés en fichier CAO mais ne contiennent qu'un ensemble de points et des éléments 1D (segments) délimitant la zone d'intérêt ainsi que les contours des microstructures (Figure 84.a). Une opération de « wrapping » génère automatiquement un modèle maillé en fonction principalement de deux paramètres : la distance minimale d'échantillonnage entre les points et le nombre minimal d'arêtes d'un polygone pour que celui ci soit considéré comme un trou de cellule.



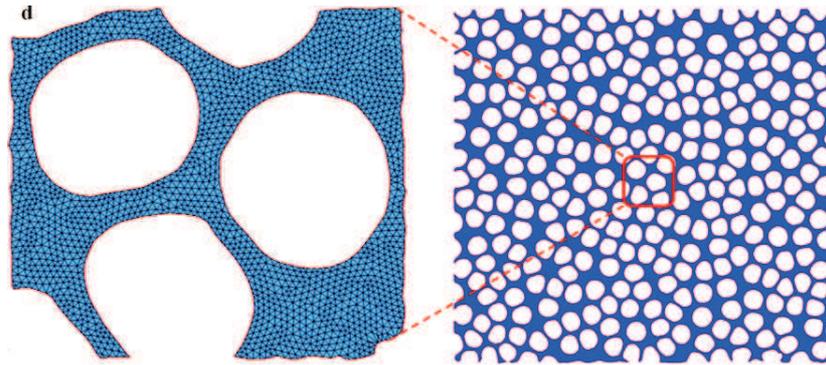


Figure 84: Maillage des modèles en 2D: (a) modèle initial obtenu après génération de la microstructure, (b) modèle maillé obtenu après une opération de « wrapping », (c) rectification du maillage, (d) remaillage final du modèle

La Figure 84.b donne un exemple de maillage automatique obtenu après cette opération. Ce maillage est loin d'être parfait et en plus des critères à contrôler cité plus haut il faut parfois remplir des zones non maillées en respectant les contours initiaux. Un remaillage et des opérations de lissage permettent d'obtenir un modèle maillé optimal. En 3D nous avons deux types de modèles de microstructures. Pour ceux générés virtuellement peu de traitements ont été nécessaires à la création d'un maillage volumique sachant que les contours des cellules sont déjà relativement bien maillés en surfacique (Figure 85.a). Les échantillons cylindriques ou cubiques sont directement maillés en volume grâce à l'utilisation du logiciel HYPERMESH ou AVIZO (Figure 85.b). Le maillage volumique des modèles réels issus des observations tomographiques a été plus fastidieux. Une analyse minutieuse des images binaires initiales et une optimisation du maillage surfacique des modèles sont d'abord requises. La Figure 85.c donne une coupe d'un modèle réel maillé graduellement en volume. La complexité de certains contours de cellules (des fines parois sont parfois très déformées) a nécessité davantage d'éléments de maillage pour une bonne définition du modèle. Pour un même nombre de cellules alvéolaires, ces modèles requièrent jusqu'à 5 fois plus d'éléments que les modèles générés virtuellement.

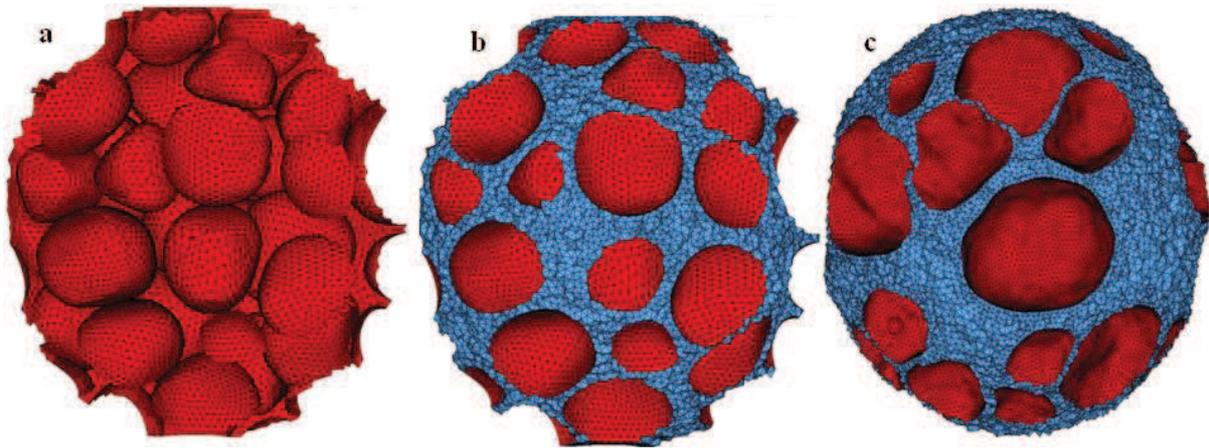


Figure 85: Maillage volumique: (a) modèle 3D initial obtenu après la génération de la microstructure et maillé en surfacique, (b) modèle 3D final après le maillage volumique, (c) modèle 3D réel issu d'observations tomographiques X avec un maillage graduel.

Le dernier point pris en compte à été le choix adéquat de la taille des éléments. La taille des éléments ainsi que le choix d'un raffinement du maillage est fonction du type d'analyse effectué. En 2D par exemple nous avons opté pour une taille unique des éléments dans tous les modèles de microstructures alors qu'en 3D un maillage graduel a plutôt été adopté. Dans le paragraphe 4.4.2.2 nous expliciterons plus en détails les raisons de ces choix.

4.3.3. La loi de comportement du matériau

Le comportement du matériau est un paramètre d'entrée incontournable dans la simulation numérique des microstructures de mousses. La principale difficulté réside dans le choix d'un modèle de comportement plus ou moins complexe, supposé reproduire de façon suffisamment précise le comportement du matériau réel dont la microstructure de la mousse à simuler est faite. Les paramètres contrôlant le modèle doivent être ajustés au préalable à partir de données expérimentales et il est essentiel de s'assurer que le modèle de loi de comportement final est pertinent pour l'ensemble du domaine de sollicitations caractérisant l'étude.

Le logiciel Marc offre la possibilité de modéliser une large gamme de matériaux, y compris les métaux, les alliages à mémoire de forme, des matériaux superplastiques, composites, bois, plastiques, caoutchoucs, verre, béton, poudre, métaux... Les modèles tiennent compte des effets de la température, des effets de taux, et des dommages afin qu'ils puissent prédire avec précision le comportement tout au long de la plage de fonctionnement d'un produit. Il donne également la possibilité de mettre en œuvre assez aisément de nouveaux modèles de comportement de matériaux. Le logiciel prend en compte les courbes contrainte-déformation dites « ingénieur » ou conventionnelle. Les courbes contraintes-déformations obtenues après les essais expérimentaux du matériau massif dans plusieurs modes de déformation (traction, compression, cisaillement) sont nécessaires pour capturer le vrai comportement et définir suffisamment les variables dans le modèle de matériau [126]. Cependant les modèles de microstructures sont tous simulés en compression non linéaires, seule la courbe de compression est obligatoire à intégrer dans le modèle de comportement. Deux types de lois de comportement sont adoptés dans la simulation numérique de nos modèles de microstructures : une loi élasto-plastique isotrope et un modèle de loi de comportement ajusté directement sur la courbe expérimentale (Figure 86).

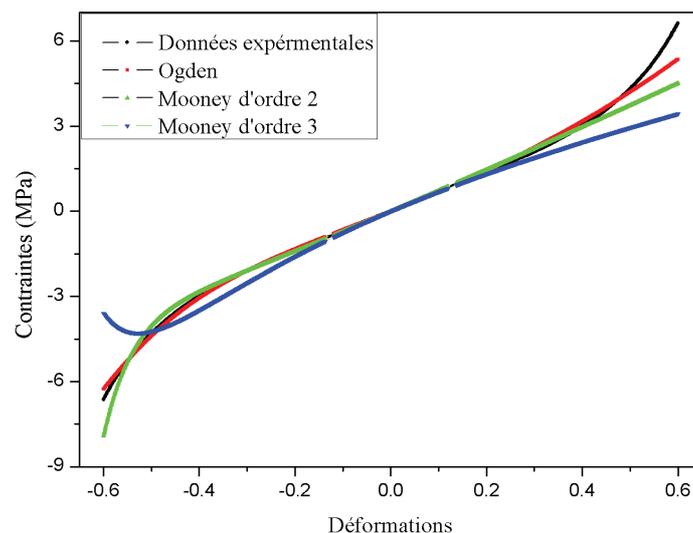


Figure 86: Courbe expérimentale contrainte-déformation en traction et compression et modèles de lois de comportement

La loi élasto-plastique est la loi la plus simple pour simuler le comportement élastique non linéaire du matériau massif élastomère. Pour les sollicitations modérées ce matériau admet un comportement élastique linéaire et le modèle de comportement est juste défini par un module de Young et un coefficient de Poisson. Le module de Young calculé à moins de 5% de déformation est de 6.8 MPa et le coefficient de Poisson de 0.4. La plasticité est ensuite prise en compte en intégrant dans le simulateur la plage de déformation plastique de la courbe contrainte-déformation. Le second modèle de loi de comportement est un modèle paramétrable ‘fitté’ sur la totalité de la courbe contrainte-déformation du matériau massif. Le comportement du matériau massif des mousses se rapproche à celui d’un élastomère qui est hyper élastique. La Figure 86 montre plusieurs modèles de comportement possibles. Les modèles de Mooney sont aussi souvent adoptés dans la simulation de mousses polymère [127], [128]. Le modèle le plus fidele ici est le modèle d’Ogden [129] et requière deux paramètres de fit. Cependant ces modèles alourdissent grandement les temps de calcul de la simulation numérique. De ce fait et en fonction de l’étude menée, nous avons souvent opté pour une loi élasto-plastique.

4.3.4. Les conditions aux limites

Ici, il s’agit de bien définir les conditions initiales, les conditions aux bords et les contacts entre les corps rigides et déformables. Dans la simulation numérique de la compression d’un modèle de microstructure, celui-ci est positionné entre deux plans rigides modélisant les mors. Le plan supérieur, mobile peut être piloté en position, en vitesse ou en chargement. Ce plan se déplace suivant la direction de chargement comprimant le modèle bloqué en translation par le plan inférieur fixe (Figure 87).

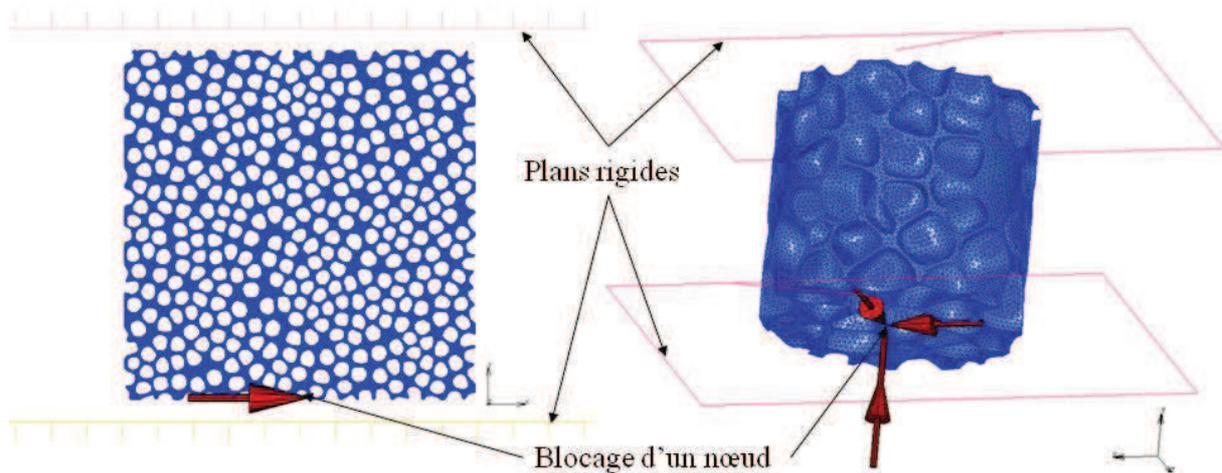


Figure 87: Plans de contacts et conditions aux limites en 2D (à gauche) et en 3D (à droite)

Les conditions initiales regroupent les possibilités de déplacement initiales du modèle et les actions mécaniques. Tous les mouvements de corps rigide du modèle sont bloqués, sinon le système d’équations n’est pas inversible et le calcul est donc impossible. Le modèle ne doit pas pouvoir se translater ni tourner sans se déformer. Ainsi en 2D un nœud est bloqué en

translation transversale (perpendiculaire a la direction de charge). En 3D c'est les deux translations transversales et la rotation suivant la direction de charge qui sont bloquées. De plus des nœuds peuvent être bloqués lorsque l'on utilise des symétries ou invariances pour ne modéliser qu'une partie du problème et il faut imposer des conditions aux limites sur le champ de déplacement conformément à ces symétries. Les actions mécaniques sont soit de contacts soit à distances. Nous avons négligé l'influence des forces volumiques à distance telle que la gravité. Les actions de contacts sont les chargements appliqués sur le plan supérieur rigide. Celui est piloté en position afin de fixer une limite de déformation des modèles.

Les conditions aux bords rendent compte de l'interaction entre le modèle de déformation et le milieu extérieur environnant. Il s'agit principalement du gaz dans les cellules qui peut jouer un rôle dans la réponse du matériau, en particulier à des vitesses de déformation élevées. Le logiciel multi-physique permet la simulation de structures solides renfermant un milieu gazeux dans un certain nombre d'inclusions (max 100 cavités). Cependant comme la plupart de nos modèles contiennent plus de 100 cellules la seule alternative est de modéliser le gaz à l'intérieur des cellules comme un corps solide à part entière et défini avec son propre modèle de loi de comportement. Cette méthode complexifie encore plus les modèles de simulation EF et augmente considérablement le nombre d'éléments des maillages. De ce fait dans les études menées en statique nous n'avons pas modélisé le gaz à l'intérieur des cellules (excepté dans un cas particulier d'étude en 3D).

Dans la modélisation du contact il faut prendre en compte les interactions individuelles entre le modèle de microstructure déformable et les deux plans rigides. Nous utilisons des tables de contact définissant :

- Le contact entre le plan supérieur rigide et le modèle
- Le contact entre le plan inférieur rigide et le modèle
- Le contact entre le modèle et lui-même

En effet, à partir d'un seuil de déformation initiant la densification de la microstructure du modèle simulé, les parois internes commencent à rentrer en contact. Il faut donc préalablement définir les critères d'interaction dans le modèle et prendre en compte le frottement. Le logiciel propose trois types de contacts bien définis : sans contact, contact de type « touching » et contact de type « glue ». Nous avons adopté un contact de type touching unique pour toutes les tables. Celui-ci est mieux adapté sachant que les points de contacts entre les corps ne sont pas fixes et se déplacent au fur et à mesure des déformations du modèle. Cependant nous n'avons pas eu l'opportunité de caractériser les frottements du matériau massif et un coefficient de frottement de 1 est établi dans un premier temps pour chacune des tables de contacts.

4.3.5. Organigramme de simulation

La Figure 88 est un organigramme illustrant les étapes de la simulation numérique d'un modèle de microstructure donnée.

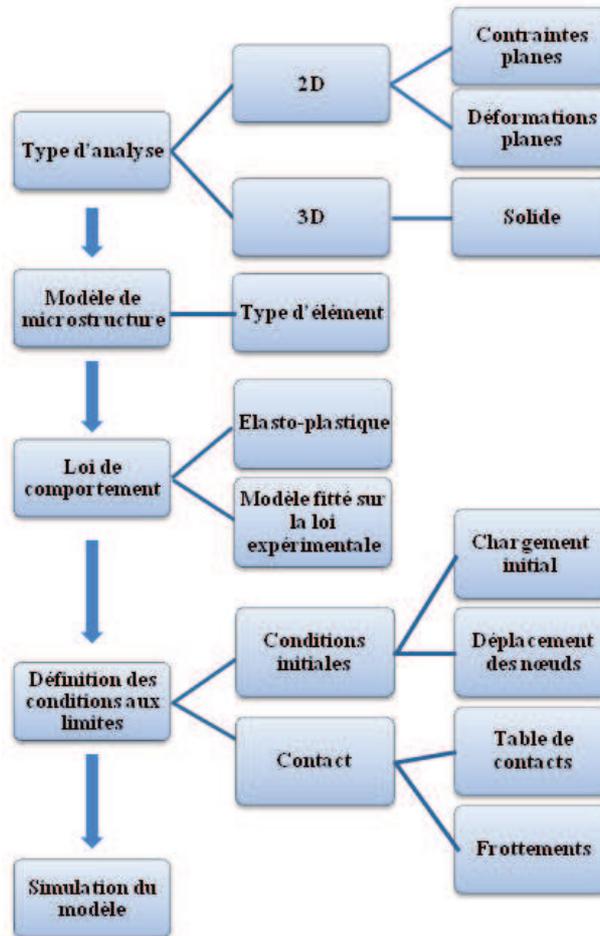


Figure 88: Organigramme générale d'un modèle de simulation numérique

En conclusion il faut définir l'objectif de l'étude qui conditionne pratiquement tous les paramètres de simulation. Pour des analyses en deux dimensions le simulateur offre la possibilité de modéliser la géométrie du modèle en contraintes planes ou en déformations planes. En contraintes planes, il n'y a pas de contraintes suivant l'axe perpendiculaire au plan de chargement (supposées nulles) alors qu'en déformations planes c'est la déformation suivant cet axe qui est nulle. En trois dimensions le modèle microstructural est simplement défini par une géométrie solide avec des éléments linéaires tétraédriques. Les lois de comportement et les conditions aux limites sont appliquées en fonction des besoins de l'étude.

Par ailleurs toutes les simulations sont effectuées en statique. La méthode implicite adoptée parcourt la solution jusqu'à ce qu'elle converge, à chaque étape itérative de la simulation numérique. Les erreurs et la convergence de la simulation numérique restent alors le dernier point à analyser.

4.3.6. Erreurs, convergence et précision des calculs

4.3.6.1. Erreurs et convergence de la simulation

Il peut arriver que le calcul échoue à cause le plus souvent d'un problème mal défini du modèle élément fini. Ce sont des erreurs de modélisation qui requièrent une attention particulière car ils surviennent occasionnellement dans la simulation numérique de nos nombreux modèles 2D et 3D. Il est alors important de bien identifier ces types d'erreurs et de savoir comment les éviter et/ou les minimiser.

Dans la résolution d'un problème de simulation numérique le logiciel construit un système d'équations, correspondant aux équations d'équilibre des nœuds et aux déplacements nodaux imposés. C'est l'étape de prétraitement. Le système d'équations peut être globalement écrit sous la forme matricielle $[F] = [K][U]$. Le vecteur U donne les champs de déplacement des nœuds tandis que F est défini par les forces de contact. La matrice K est appelée matrice de rigidité. Elle est symétrique, définie positive et donc inversible. F , U et K sont définis en chaque nœud. On obtient l'existence et l'unicité du champ de déplacement $[U] = [K]^{-1}[F]$. La résolution de ce système d'équations permet ainsi d'obtenir les déplacements nodaux et les efforts nodaux de liaison (correspondant aux déplacements imposés). Finalement une étape de post-traitement permet la reconstruction et l'affichage des résultats demandés (champs de déplacement, de déformation et de contrainte...). Ces calculs sont effectués à chaque itération en réactualisant continuellement les charges appliquées, les conditions initiales et aux limites par rapport au modèle déformé.

Les principales sources d'erreurs généralement observées dans ces calculs sont les suivantes :

Erreurs	Causes	Solution
Singularité de la matrice $[K]$	Eléments mal définis, Existence de modes rigides, Intégration numérique,	Modifier la topologie du maillage, Modifier les liaisons, Modifier le nombre de points d'intégration
Résolution des équations	Arrondi numérique, Non convergence	Travailler en double précision, Changer d'algorithme, augmenter le nombre d'itérations, Affiner le maillage et réduire le nombre d'éléments distordus

Tableau 3 : Sources d'erreurs de la simulation numérique et solutions

L'erreur la plus habituelle est la rencontre d'un point de singularité. Une singularité de la matrice $[K]$ correspond à l'existence de points où la solution n'est pas entièrement définie. La plupart du temps, la contrainte et la déformation tendent vers l'infini lorsque l'on s'approche

du point singulier. Il faut alors souvent remailler le modèle et en particulier les éléments frontaliers aux bordures de la microstructure en augmentant par exemple le degré de ces éléments. Le simulateur permet de rendre compte de cette singularité en donnant un ratio de singularité à chaque itération.

Il peut arriver aussi que les calculs ne convergent plus au bout d'un certain nombre d'itérations car le solveur n'arrive plus à résoudre le système d'équations sous les paramètres imposés. Là aussi le solveur donne un ratio de convergence qui mesure la précision des calculs à chaque itération. Il y a trois types de critères de convergences possibles : convergence en déplacement, résiduelle ou en énergie. Par exemple la convergence en déplacement est assurée lorsque l'écart maximal des déplacements entre deux itérations successives est inférieur à une valeur seuil. Le ratio de convergence serait alors le rapport entre cet écart et le déplacement théorique imposé entre ces deux itérations. Au delà d'un ratio seuil les calculs échouent, le plus souvent à cause d'éléments trop distordus (la qualité du maillage diminue au cours de la déformation de la microstructure) ou d'un nombre insuffisant d'itérations. La solution est alors de remplir principalement deux conditions : vérifier la qualité du maillage et définir un nombre suffisant d'itérations. Le nombre d'itérations fixe l'intervalle de temps entre deux itérations de la simulation. Le temps total de simulation, défini en paramètre d'entrée, étant celui au bout duquel les chargements appliqués atteignent leur consigne finale. Plus le nombre d'itérations est petit et plus les calculs ont de chance de converger. Le logiciel de simulation MARC offre la possibilité de gérer automatiquement le nombre d'itérations en adaptant si nécessaire l'intervalle de temps entre les itérations. Cette méthode adaptative nous a été d'une grande utilité et a été adoptée pour la plupart de nos modèles. La qualité du maillage peut être revue en hausse en remaillant entièrement le modèle (en cours de simulation) pour un même nombre d'éléments.

Il faut cependant noter que la correction de ces erreurs ne permet d'obtenir qu'une simulation du modèle abouti par rapport aux chargements imposés. Par exemple un modèle peut remplir tous les critères de convergences fixés et donner cependant un résultat de simulation imprécis. Aussi, il faut étudier la précision des calculs effectués.

4.3.6.2. Précision des calculs

La finesse de la discrétisation joue un rôle essentiel dans la précision des résultats obtenus. Il est important de trouver une estimation juste de l'erreur liée à la discrétisation et montrer que le modèle converge, c'est-à-dire que l'erreur des calculs tend vers 0 si la finesse du maillage tend elle aussi vers 0. Dans ce but nous avons effectué une étude de convergence de maillage d'un modèle de microstructure contenant assez de cellules pour être suffisamment représentatif d'une microstructure de mousse (voir paragraphe 4.4.1) . Les principales étapes de cette étude sont :

- La création d'un maillage initial en utilisant un nombre raisonnable d'éléments, puis la simulation du modèle

- Le remaillage du modèle en augmentant la densité de maillage (et donc en diminuant la taille moyenne des éléments) puis de simuler ce nouveau modèle
- La comparaison des résultats entre les deux calculs
- La répétition itérative des deuxièmes et troisièmes étapes et la vérification à chaque itération que les résultats convergent de manière satisfaisante.

Cette méthode de mesure de la convergence du maillage est très utilisée dans les bureaux d'études de CAO [130]. L'étude est menée sur des microstructures ayant de très faibles épaisseurs de parois. La taille adéquate des éléments du maillage de ce modèle sera alors adaptée aux microstructures de plus grande densité. Le modèle de microstructure ainsi testé a une porosité de 80 % et admet environ 300 cellules (Figure 89.a).

Le nombre d'éléments du maillage évolue de 50 000 à 400 000 avec une taille relativement homogène. Les modèles sont simulés conformément aux paramètres de simulation établis plus haut avec une loi de comportement de type élasto-plastique.

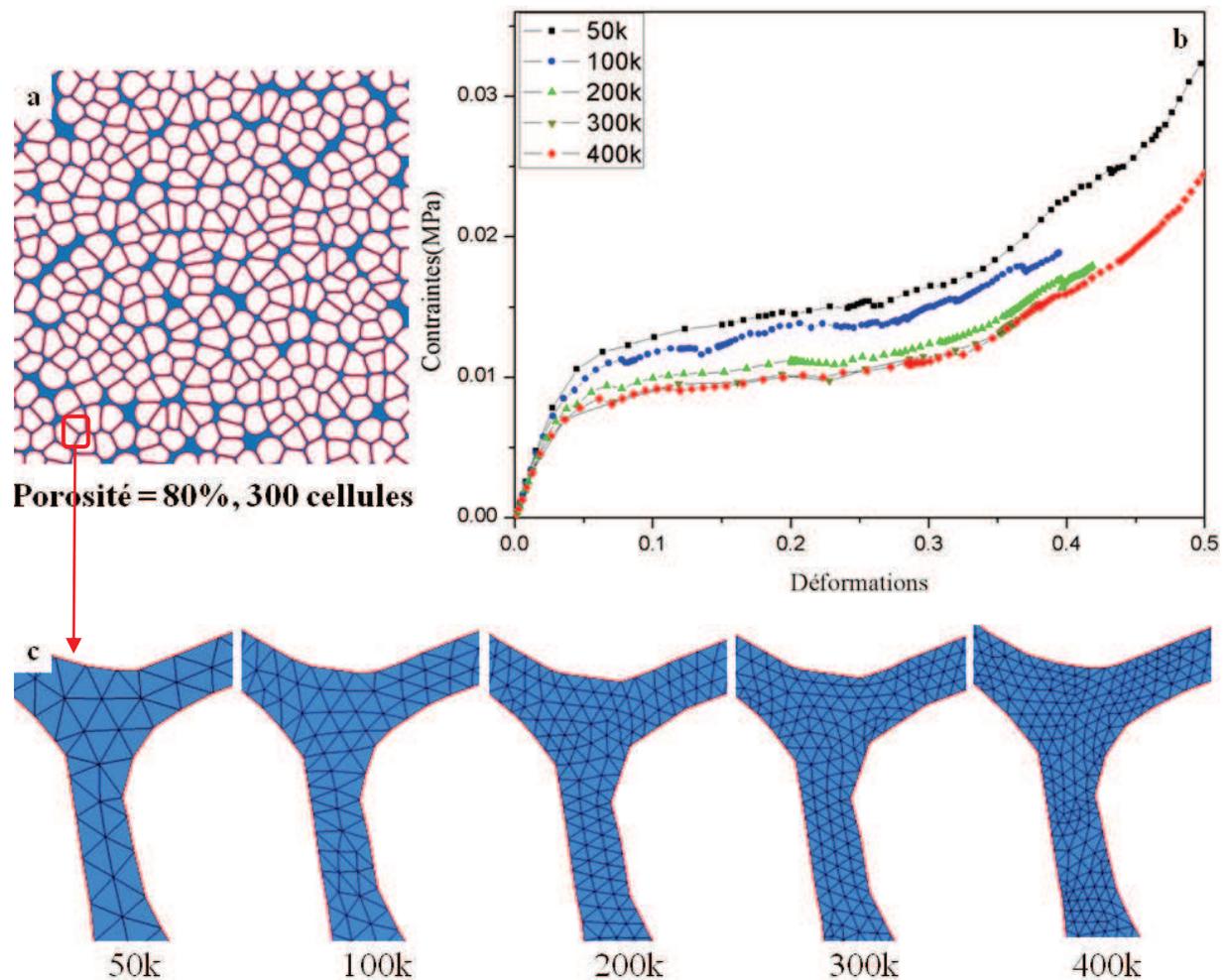


Figure 89: Influence du maillage dans la précision des calculs: (a) Le modèle de microstructure testé ; (b) comparaison des courbes contraintes-déformations ; (c) taille des maillages par rapport aux parois

Nombre d'éléments	50k	100k	200k	300k	400k
Erreur de mesure à 30 % de déformation (en %)	48	35	11	3	-
Temps de simulation (en heures)	4h	6h	12h	17h	27h

Tableau 4: Erreurs de mesure relative et temps de calcul des modèles en fonction du nombre d'éléments de maillage

La Figure 89.b montre les courbes contraintes-déformations des résultats de simulation. Le logiciel garantit une reproductibilité quasi parfaite des résultats de simulation pour un même modèle et de ce fait les différences observées sont directement imputables à la finesse du maillage. Nous observons bien leur convergence au fur et à mesure que la densité de maillage augmente. Le Tableau 4 donne l'erreur de mesure relative de chaque modèle comparé au modèle à 400k éléments. Cette erreur est calculée à 30% de déformation. Ainsi le modèle 50k est le moins précis avec une imprécision de 48% et un temps de calcul très faible de 4h. Le modèle 300k admet une erreur de seulement 3% pour un temps de calcul de 17h.

On estime généralement que le maillage est « bon » lorsqu'un raffinement important (une augmentation de 100% par exemple) entraîne une variation faible du résultat (inférieure à 5%). D'un autre côté, plus le maillage est important et plus le temps de calcul est long. Il faut donc trouver un bon compromis entre le temps de calcul et une précision satisfaisante. Le modèle de microstructure avec 300k éléments nous paraît être un bon choix (compromis). Il correspond à une taille d'élément défini et permet de mailler finement les parois les plus minces de nos microstructures (Figure 89.c). Par la suite nous adopterons cette taille d'élément dans tous nos modèles de microstructures 2D.

4.4. Analyses en 2D

Dans cette partie nous présentons les résultats des simulations numériques effectuées en 2D. L'analyse en 2D concerne principalement :

- L'homogénéisation de l'étude par la recherche d'un volume élémentaire représentatif
- L'étude et la comparaison méthodique de plusieurs modèles de microstructures par la donnée des courbes contrainte-déformation, des champs de contraintes et de déformations et des modules d'élasticité. L'objectif étant de déterminer l'impact de la morphologie de la microstructure sur le comportement global des mousses

A cause de contraintes de temps, l'impact de la distribution de la forme des cellules n'a pas été étudié. Chaque microstructure est alors identifiée par quatre paramètres spécifiques: la

porosité P , le nombre de cellules N_c , la mesure de l'homogénéité de la répartition spatiale donnée par α , et la variation (ou dispersion) de la taille des cellules donnée par C_{vol} (voir paragraphe 4.3.2.1). Par la suite nous référencerons donc chaque modèle grâce à ces paramètres.

4.4.1. Homogénéisation et calcul du volume élémentaire représentatif

A l'échelle macroscopique les mousses polymères paraissent être un milieu continu homogène et sont juste caractérisées par leur densité relative ou leur porosité, tandis qu'à l'échelle fine de leur microstructure elles affichent un milieu très fortement hétérogène en fonction de la structuration irrégulière des cellules dans leur matériau massif. A cause de la très grande complexité des microstructures, il est nécessaire de travailler avec des volumes suffisamment petits afin de pouvoir disposer d'une puissance de calcul suffisante pour la résolution des simulations numériques et suffisamment grands pour rendre compte du comportement global des modèles. La méthode d'homogénéisation permet de passer de l'échelle micro à l'échelle macro en donnant les propriétés homogènes équivalentes d'un modèle de mousse donné à partir des caractéristiques de sa microstructure hétérogène.

Pour passer de l'échelle micro à l'échelle macro nous avons recherché le volume élémentaire représentatif (VER). Nous pouvons citer ici les travaux de Rodney Hill [131], Kroner [132], Sab, K. [133] et Zaoui [134]. R. Hill définit le VER comme un échantillon hétérogène d'un matériau qui est tout à fait typique de la totalité du mélange en moyenne et contient un nombre suffisant d'inclusions pour que les propriétés équivalentes telles que le module de Young soient indépendantes des contraintes et déformations appliquées sur l'échantillon, du moment que celles ci sont macroscopiquement uniformes. En clair la réponse mécanique de l'échantillon au VER doit être équivalente à celle du matériau global quelles que soient les conditions aux limites appliquées. Cette définition exclut donc la possibilité de paver un petit volume initial en exploitant par exemple les conditions aux limites périodiques de nos modèles de microstructures générés.

Pour trouver le nombre de cellules alvéolaires nécessaire et suffisant que doit contenir les modèles nous devons analyser tout le spectre de morphologies de microstructures. Deux types de microstructures peuvent se présenter : périodique ou aléatoire. Si la distribution des constituants est périodique le volume nécessaire se réduit à une cellule élémentaire permettant de reconstituer l'ensemble de la microstructure par simple pavage (Figure 90). Pour les structures irrégulières, des caractéristiques morphologiques de la microstructure telles que la porosité, la distribution de taille des cellules ainsi que leur répartition spatiale sont à prendre en compte dans la détermination du VER. En effet comme Riyadh Al-Raoush et al. le montrent dans leur étude du VER de milieux poreux grâce à la tomographie [135], celui-ci évolue en fonction de la porosité et surtout dépend de l'hétérogénéité de la microstructure. Dans nos modèles cette hétérogénéité est caractérisée par la dispersion de taille des cellules

donnée par C_{vol} et la mesure de l'uniformité de la répartition spatiale donnée par le paramètre α . Plus le paramètre α augmente plus la microstructure est hétérogène et plus le VER augmente. Dans un premier temps nous avons étudié ce VER dans le cas d'une distribution de type mono disperse. Pour ce faire nous avons généré initialement deux modèles de microstructures sous 2 différentes porosités. Ces modèles contiennent 1000 cellules chacun et ont un coefficient α de 0.2 (b) et 0.3 (c) ($\alpha=0.3$ est la valeur maximale dans tous nos modèles générés). Nous supposons donc que le VER en 2D admet moins de 1000 cellules quelle que soit la microstructure. Des modèles contenant 1000 à 100 cellules sont découpés aléatoirement à partir de la structure initiale (Figure 90) et une simulation numérique de compression est effectuée sur chacun de ces modèles afin de comparer leur réponse mécanique.

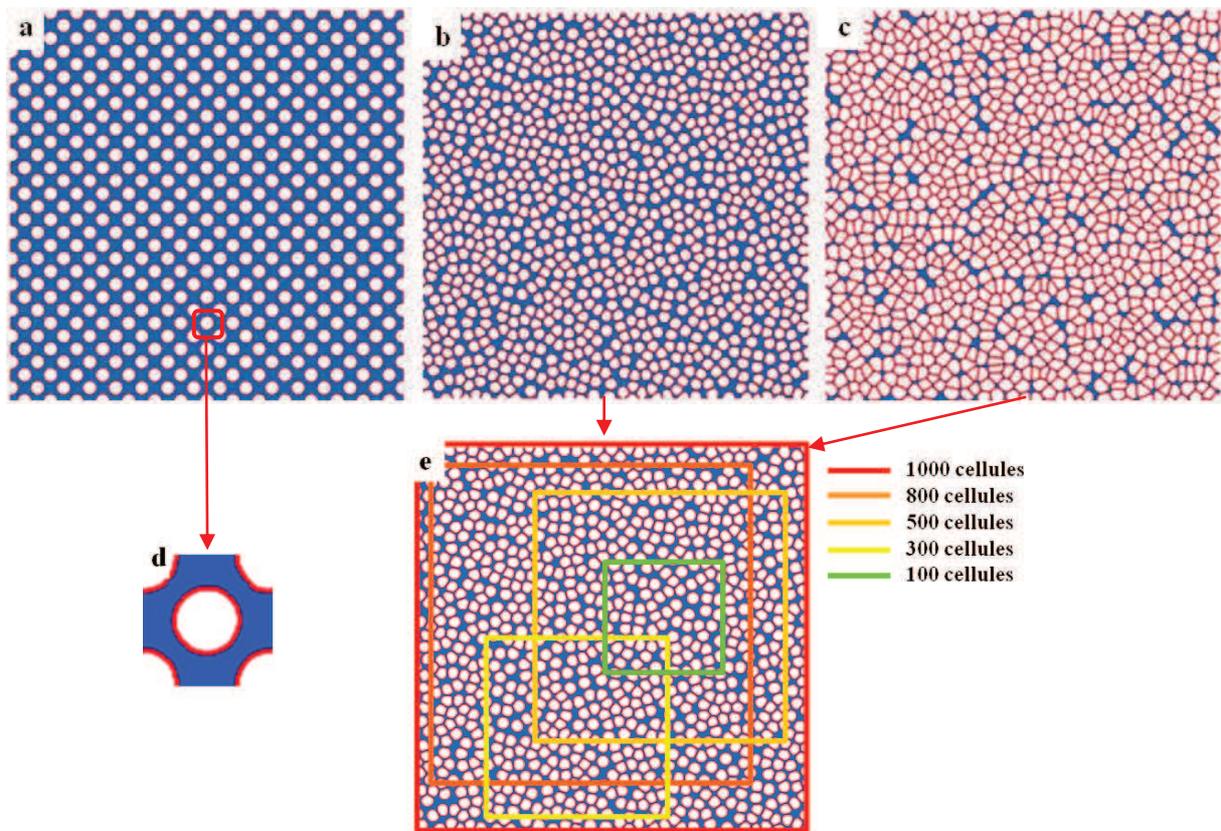


Figure 90: Détermination du VER en fonction de la morphologie de la microstructure: (a) structure périodique et son volume élémentaire (d) ; (b) et (c) structures aléatoires de différentes porosité et différents coefficient α ; (e) méthodologie de calcul du VER

Les Figure 91.b et c donnent les courbes contrainte-déformation des modèles pour les structure (b) et (c). La structure (b) a une porosité de 60% et un coefficient $\alpha=0.2$. Nous observons que les réponses en compression sont quasiment identiques pour les différents modèles de 100 à 1000 cellules. Pour ce type de morphologie, un nombre d'inclusions de 100 cellules ou moins peut être suffisante. Cependant nous obtenons des résultats différents pour la structure (c). Celle-ci a une porosité de 90% et un coefficient $\alpha=0.3$. Les réponses mécaniques sont très similaires entre 1000 et 300 cellules malgré quelques oscillations dues à

l'hétérogénéité de la géométrie, plus importante. Le comportement du modèle à 100 cellules diffère des autres dès 3% de déformation et l'écart relatif augmente sensiblement à 25% de déformation.

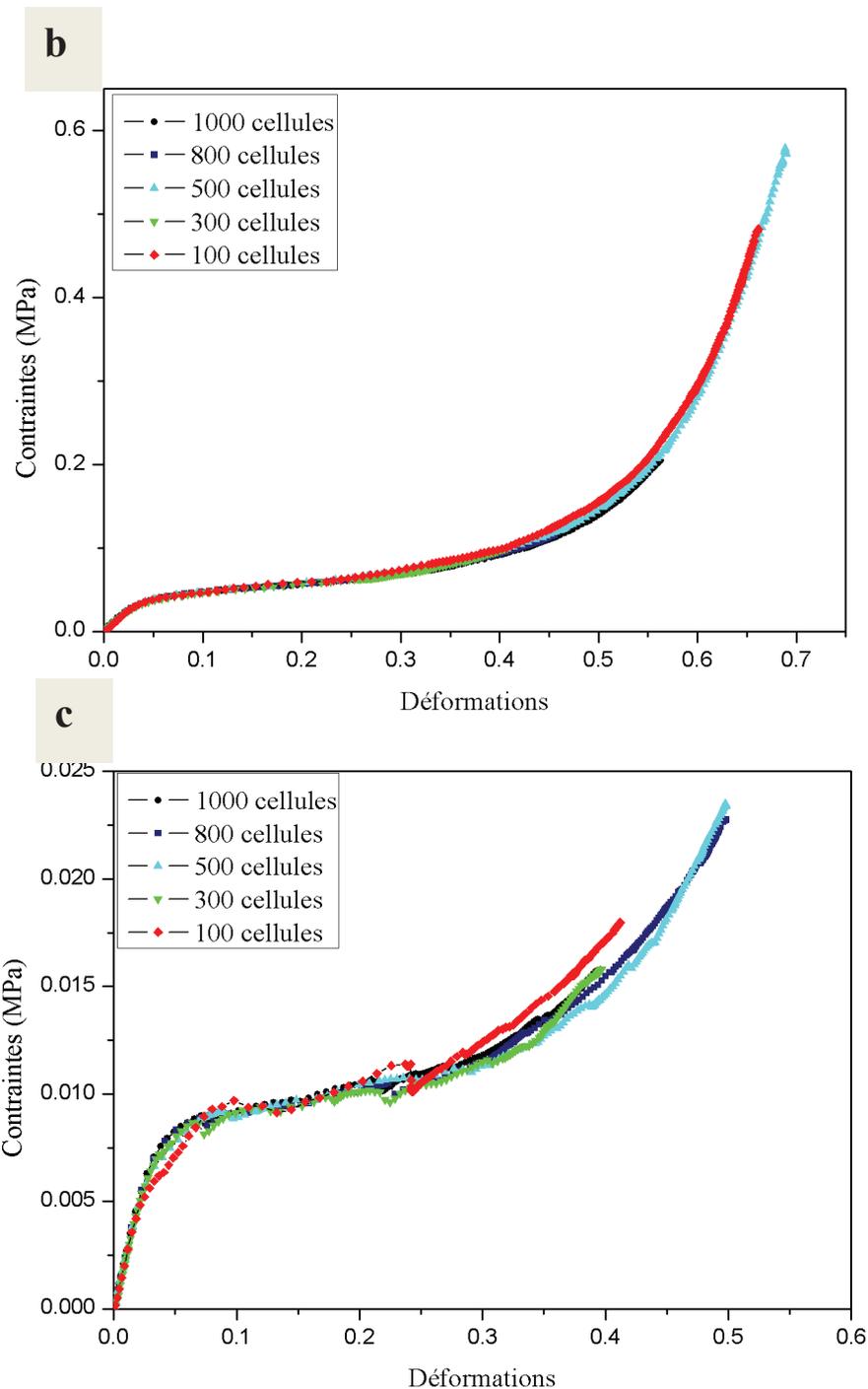


Figure 91 : Etude du VER : (b) Porosité de 60% et coefficient de répartition spatiale α de 0.2 ; (c) Porosité de 90 % et coefficient de répartition spatiale α de 0.3

Dans le cas d'une distribution poly-disperse, l'étude du VER est plus complexe à effectuer. En effet il faut prendre en compte à la fois la variation de taille des cellules et leur répartition

spatiale. Nous avons simplifié et réduit cette étude au cas de deux tailles de cellules uniques et différentes. Là aussi nous obtenons des résultats très similaires. Ainsi nous avons fixé au final un volume élémentaire contenant un minimum de 300 cellules. Ce volume est très représentatif des comportements mécaniques globaux des microstructures générées indépendamment de leur morphologie.

4.4.2. Etude numérique de l'influence de la morphologie de la microstructure

4.4.2.1. Modèles de microstructures

Les modèles étudiés en 2D sont tous issus du générateur de microstructures. En effet pour étudier les effets découplés de la porosité, de la distribution de taille ainsi que de la répartition spatiale des cellules il faut disposer de microstructures ne se différenciant les unes des autres que d'un paramètre morphologique à la fois. Les dispositifs expérimentaux pour fabriquer les mousses correspondantes étant pratiquement impossibles ou extrêmement complexes à mettre au point, seul notre générateur de microstructures nous a offert cette possibilité.

Le choix des paramètres doit être assez diversifié pour nous permettre d'étudier différentes morphologies de microstructures similaires à celles de vraies mousses (Figure 92). Nous avons ainsi généré des microstructures en fonction des paramètres P , N_c , α , C_{vol} sachant que chacun de ces paramètres peut être contrôlé en amont mais aussi être modifié indépendamment les uns des autres. Tous les autres paramètres du générateur de microstructures étant fixes.

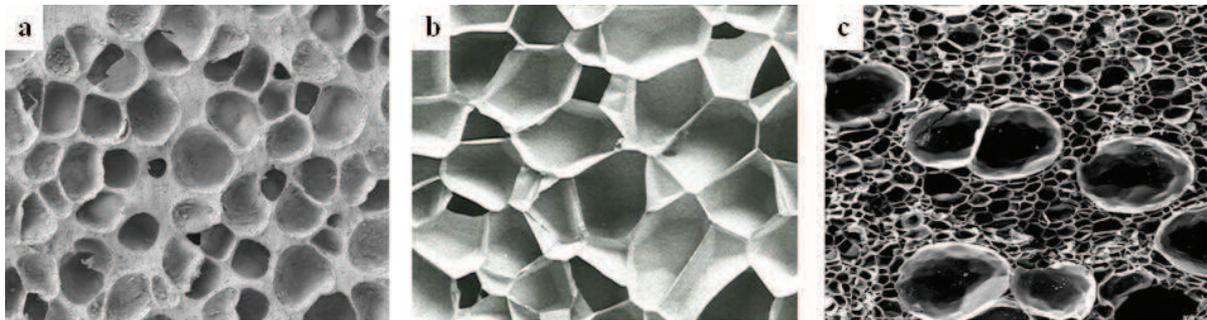


Figure 92: Différentes morphologies de microstructure: (a) mousse EPDM avec une porosité moyenne de 60% et une répartition aléatoire de cellules ($\alpha \approx 0.2$) ; (b) mousse PU de grande porosité (>90%) ; (c) mousses avec deux tailles distinctes de cellules [27]

Les modèles sont obtenus de la manière suivante :

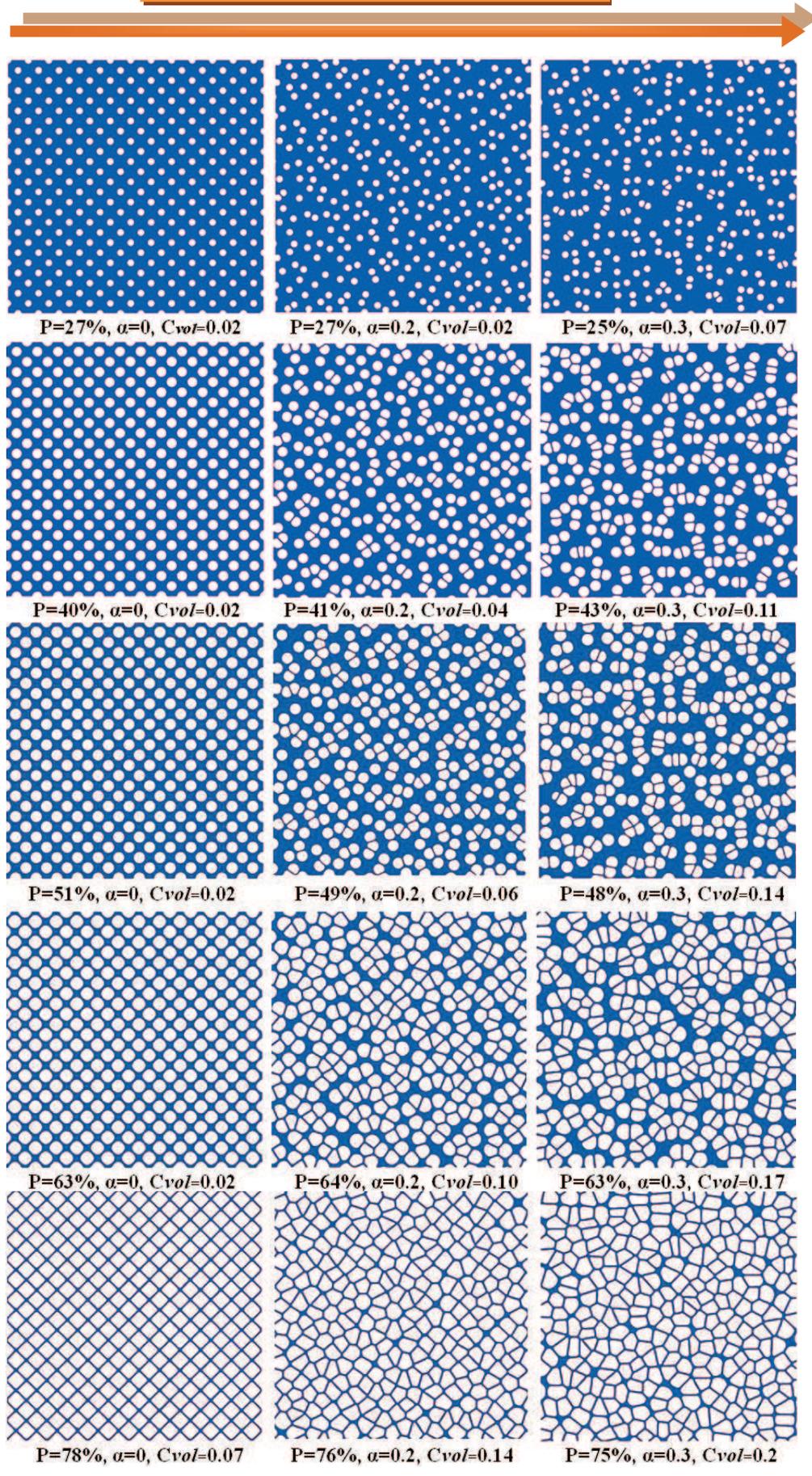
- Cinq catégories de modèles avec une porosité P différente : 25%, 40%, 50%, 60%, 75%
- Pour chacune de ces catégories de porosité il y a trois différentes valeurs de paramètres α : 0, 0.2, 0.3. La distribution de tailles des cellules de chacun de ces modèles est de type mono disperse avec un coefficient de dispersion C_{vol} très petit.

Pour étudier l'impact de la distribution de taille des cellules nous avons généré trois types de modèles avec aussi cinq catégories de porosité :

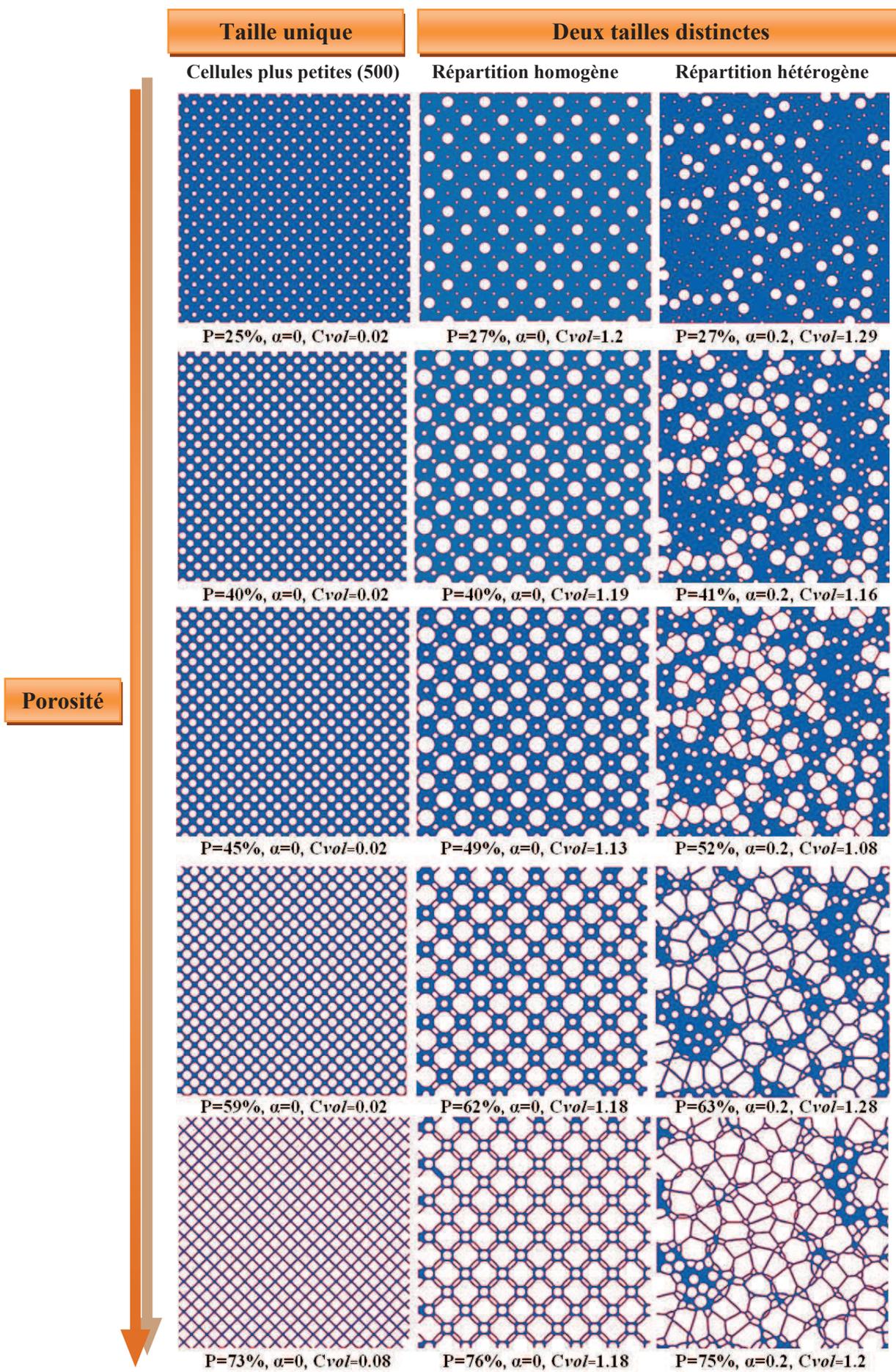
- Le premier type de modèle admet une taille de cellule unique et plus petite donnant à porosité égale un plus grand nombre de cellules ($N_c = 500$).
- Dans les deux derniers types de modèles le coefficient de dispersion de taille des cellules C_{vol} est très grand (>1). Ces modèles contiennent deux tailles de cellules très distinctes donnant une structure poly disperse. Nous les avons cependant distingués par la répartition spatiale des cellules. D'abord une répartition homogène des petites et des grandes cellules avec un paramètre α valant zéro et une répartition hétérogène avec $\alpha=0.2$. Dans cette répartition hétérogène la même structure a été adoptée pour les différentes porosités.

Le paramètre α peut aller théoriquement jusqu'à 0.5. Cependant, à cause de la taille initiale de nucléation des cellules dans la génération de nos modèles et surtout en tenant compte de l'épaisseur minimale entre les parois des cellules, ce paramètre ne doit pas dépasser 0.3 pour éviter que les cellules ne se touchent et ne fusionnent entre elles. Les modèles sont de forme carrée avec une taille unique ($1\text{ mm} \times 1\text{ mm}$). Le nombre de cellules N_c de chacun de ces modèles est fixé à 300 à la suite du calcul du VER. La Figure 93 donne les 30 modèles de microstructures générés.

Répartition spatiale : $\alpha=0, 0.2, 0.3$



Porosité



Porosité

Figure 93 : 30 modèles de microstructures 2D en fonction de 5 catégories de porosités : $P=25\%$, 40% , 50% , 60% , 75% ; 3 types de répartition spatiale : $\alpha=0$, 0.2 , 0.3 et différentes tailles de cellules.

Il est important de savoir bien interpréter les différences de comportement des modèles dans les résultats de simulation. Ainsi nous allons d'abord présenter notre approche de travail pour une identification méthodique des paramètres microstructuraux impactant le comportement mécanique ainsi que les mécanismes de déformation des mousses.

4.4.2.2. Méthode d'identification par approche inverse

4.4.2.2.1. Définition du problème

D'après le mathématicien J.B. Keller [136] deux problèmes sont dits inverses l'un de l'autre si la formulation de l'un implique tout ou partie de la solution de l'autre. M. Kern [137] en donne une autre définition plus opérationnelle qui est qu'un problème inverse consiste à déterminer des causes connaissant des effets. Ainsi, ce problème est l'inverse de celui appelé problème direct, consistant à déduire les effets, les causes étant connues. Nous sommes d'habitude plus habitués à étudier des problèmes directs. En effet nous avons appris à poser, puis résoudre des problèmes pour lesquels les causes sont données, et l'on cherche les effets. Un exemple type du problème direct est la prédiction de l'état futur d'un système physique connaissant son état actuel. Dans le même genre d'exemple un problème inverse serait de reconstituer l'état passé d'un système connaissant son état actuel. Il peut alors y avoir plusieurs solutions et nous pouvons facilement imaginer que les mêmes effets peuvent provenir de causes différentes. C'est la principale difficulté de l'étude des problèmes inverses qui risquent souvent d'être des problèmes mal posés. Il est nécessaire de disposer d'informations supplémentaires pour discriminer entre elles toutes les solutions possibles.

Dans notre étude, la méthode d'identification s'applique principalement en 2D. Nous simulons et comparons les réponses mécaniques (globales et à l'échelle fine) de différents modèles de microstructures. Ces modèles sont tous intégralement issus du générateur de microstructure et ils sont caractérisés par un certain nombre de paramètres morphologiques. Connaissant les réponses mécaniques nous voulons remonter aux causes des différences de comportement entre ces modèles. C'est un problème inverse relativement simple à résoudre. En effet nous souhaitons que les paramètres morphologiques des modèles de microstructures soient les seuls paramètres sensibles du problème. Il faut alors déterminer et imposer certaines contraintes sur tous les facteurs qui ont une influence sur le résultat de simulation. Ensuite il faudra s'assurer de l'unicité des solutions au problème posé. Les facteurs sensibles de la simulation sont :

- La morphologie de la microstructure
- Le maillage par éléments finis du modèle
- La loi de comportement du matériau utilisée
- Les conditions initiales et aux limites

Tous ces facteurs ont un impact distinct sur les résultats et ils peuvent être étudiés séparément les uns des autres. Pour minimiser l'impact du maillage sur les simulations des différents modèles, nous avons adopté la même taille d'éléments pour un maillage uniforme. Cela permet d'avoir la même densité des éléments d'un modèle à un autre. Dans le paragraphe 4.3.6.2 nous avons montré l'influence de la finesse du maillage sur la précision des calculs et avons déterminé une taille minimale des éléments pour mailler finement n'importe quelle paroi des modèles avec une grande précision de calcul. De même nous avons adopté une loi de comportement du matériau unique pour tous les modèles. La loi de comportement doit être choisie en adéquation avec le comportement non linéaire des matériaux massifs de mousse. Ainsi une loi de comportement simple de type élasto-plastique à été choisie (voir paragraphe 0). Les conditions aux limites ainsi que les autres paramètres de simulation sont aussi identiques pour tous les modèles.

Au final seule la morphologie de la microstructure impacte les résultats de simulation. En considérant que la réponse mécanique d'un modèle correspond à une morphologie de microstructure unique, il s'agit alors de vérifier que les paramètres morphologiques P , N_c , α , C_{vol} sont nécessaires et surtout suffisants pour identifier de manière unique nos modèles de microstructures.

4.4.2.2.2. Etude de l'unicité des paramètres morphologiques

Les paramètres P , N_c , α , C_{vol} sont tous des paramètres sensibles. Ils sont tous nécessaires à l'identification de nos microstructures. Dans le cas de vraies mousses ces seuls paramètres d'identifications peuvent ne pas être suffisants (impact de la forme des cellules, nécessité d'une corrélation entre les distributions ...) pour caractériser de manière unique la morphologie de leur microstructure. Cependant les 30 modèles d'études ne se différencient uniquement que par ces paramètres tout du moins avant la génération de la microstructure.

Afin de s'assurer que ces seuls paramètres sont suffisants il faut montrer que les modèles de microstructures générés avec les mêmes paramètres morphologiques ont un comportement au delà du VER identique et ce, quelles que soient les morphologies des modèles. Pour ce faire nous simulons et comparons les réponses de deux microstructures générées avec les mêmes valeurs de paramètres. Cette simulation est effectuée pour toutes les valeurs de paramètres possibles utilisées (Tableau 5).

$C_{vol} = 0$	$\alpha=0$	$\alpha=0.2$	$\alpha=0.3$
$P=25\%$	–	×	×
$P=75\%$	–	×	×

$C_{vol} > 1$	$\alpha=0$	$\alpha=0.2$	$\alpha=0.3$
---------------	------------	--------------	--------------

P=25%	–	×	–
P=75%	–	×	–

Tableau 5 : Etude de l'unicité des paramètres morphologiques : (×) morphologies de microstructures étudiées

Au lieu de balayer toute la plage de porosité, nous choisissons les deux porosités $P=75\%$ et $P=25\%$, soit les porosités minimales et maximales de l'étude en 2D. Pour $\alpha=0$ la structure est régulière, les microstructures générées sont alors très identiques et les paramètres P , N_c , α et C_{vol} suffisent pour très exactement caractériser ces morphologies. Dans le cas des structures poly-disperses ($C_{vol} > 1$), l'étude en 2D se limite à la valeur $\alpha=0.2$ (voir 4.4.2.1). Nous avons alors au final 6 morphologies de microstructures différentes à étudier (Figure 94).

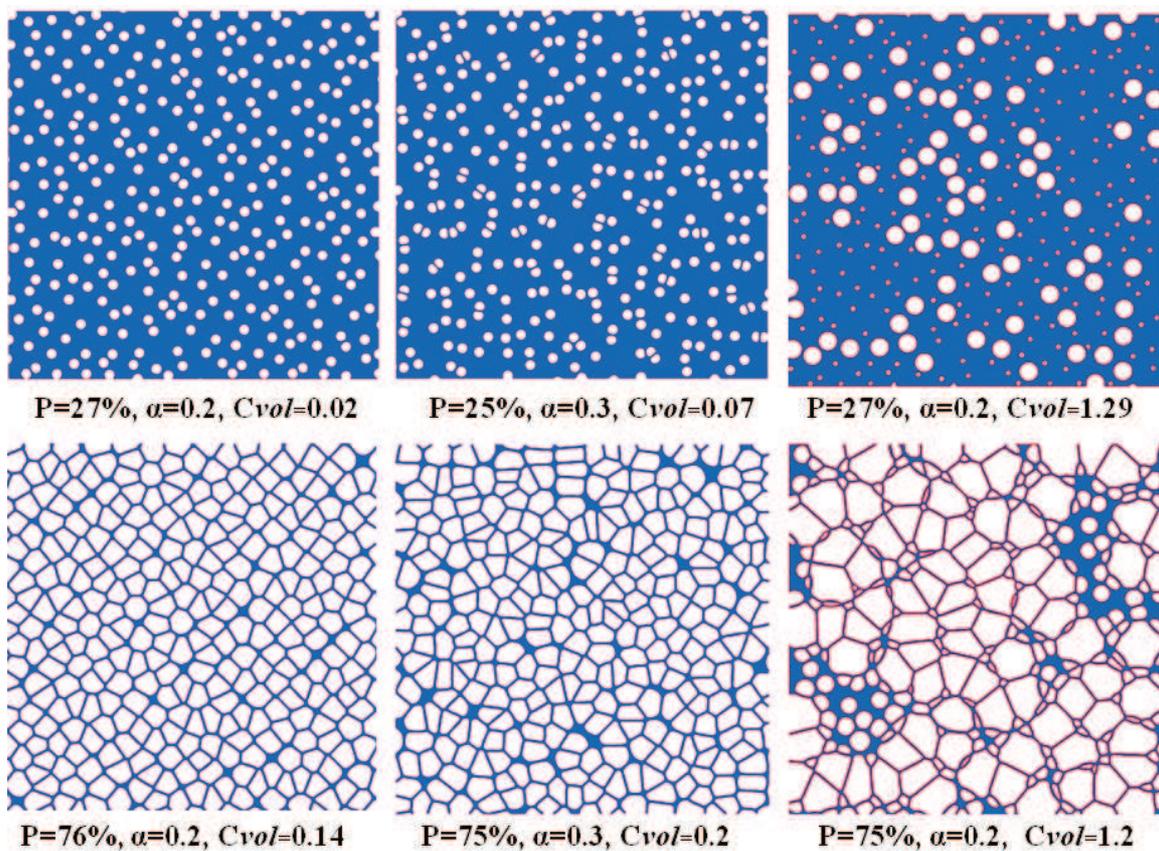


Figure 94: Les différentes modèles de microstructures simulés pour étudier l'unicité des paramètres morphologiques P , N_c , α et C_{vol}

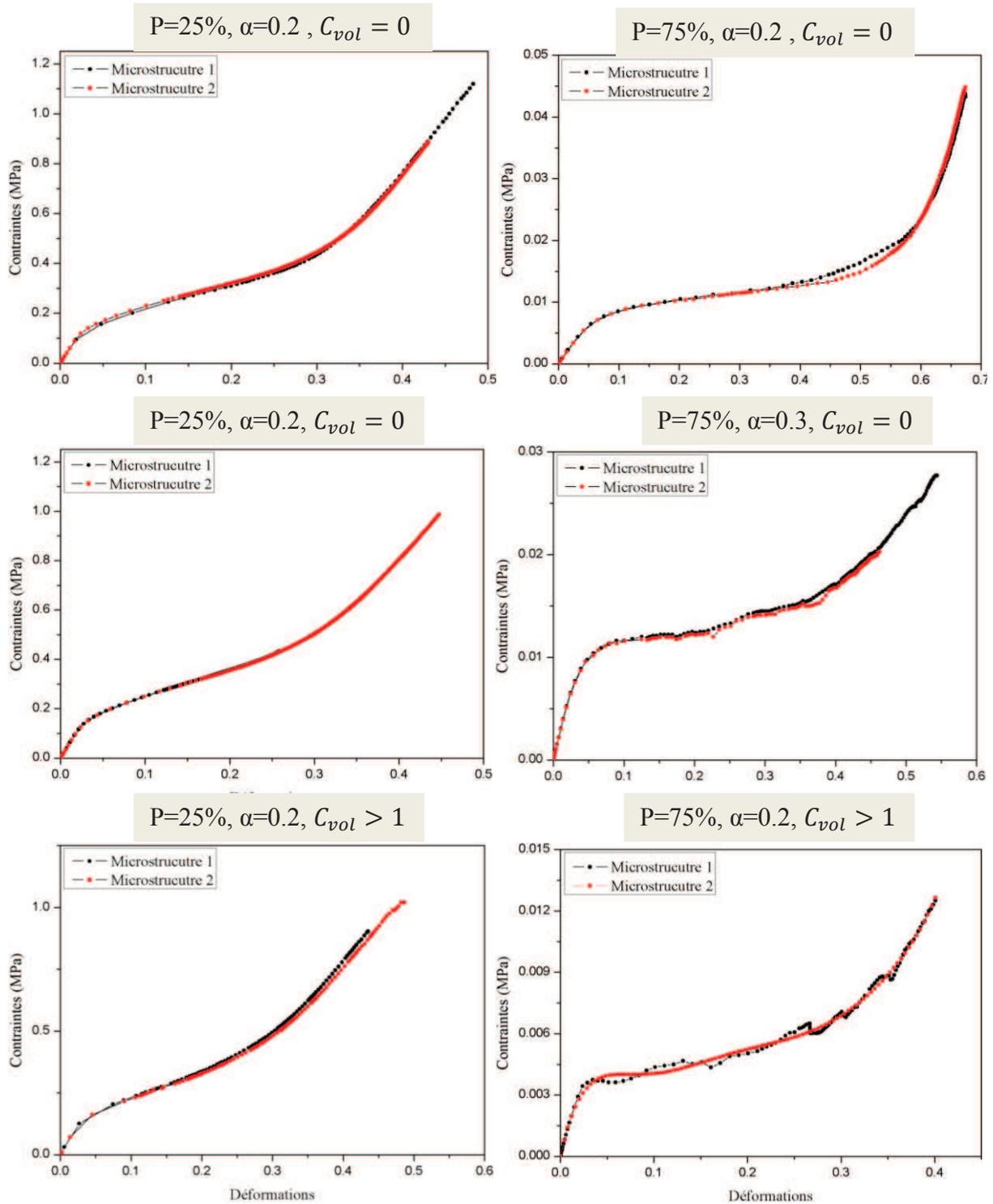


Figure 95 : Etude de l'unicité des paramètres morphologiques : Comparaison des réponses contrainte-déformation de microstructures ayant les mêmes paramètres P , N_c , α et C_{vol}

La Figure 95 compare les courbes contrainte-déformation des microstructures avec les mêmes paramètres morphologiques. Pour $P=25\%$, les comportements sont quasi identiques. Quelques petits écarts sont cependant à noter pour les structures poly disperse ($C_{vol} > 1$) et très irrégulières ($\alpha=0.3$). Nous verrons par la suite que le comportement de la microstructure en grande déformation est très sensible à ces deux paramètres qui caractérisent l'hétérogénéité de

la microstructure et un léger écart entre les valeurs de α et/ou de C_{vol} entre les microstructures comparées peut générer des différences conséquentes dans les réponses mécaniques.

En conclusion, deux microstructures avec les mêmes paramètres P , N_c , α et C_{vol} ont le même comportement mécanique et inversement. Ces quatre paramètres permettent de bien identifier la morphologie d'une microstructure. Pour les structures très hétérogènes ou plus complexes (vraies mousses), un cinquième paramètre de corrélation peut être rajouté à α et C_{vol} pour une identification plus précise (voir 0).

4.4.2.3. Résultats de simulation

Nous avons tracé les courbes contraintes-déformations pour chacun des microstructures de la Figure 93. Les courbes obtenues sont classées en fonction de la porosité P , de la répartition spatiale α et de la distribution de taille des cellules C_{vol} (Figure 96). Par soucis de clarté et de lisibilité des courbes, les porosités affichées ici sont les valeurs nominales. Les vraies valeurs sont données sur la Figure 93.

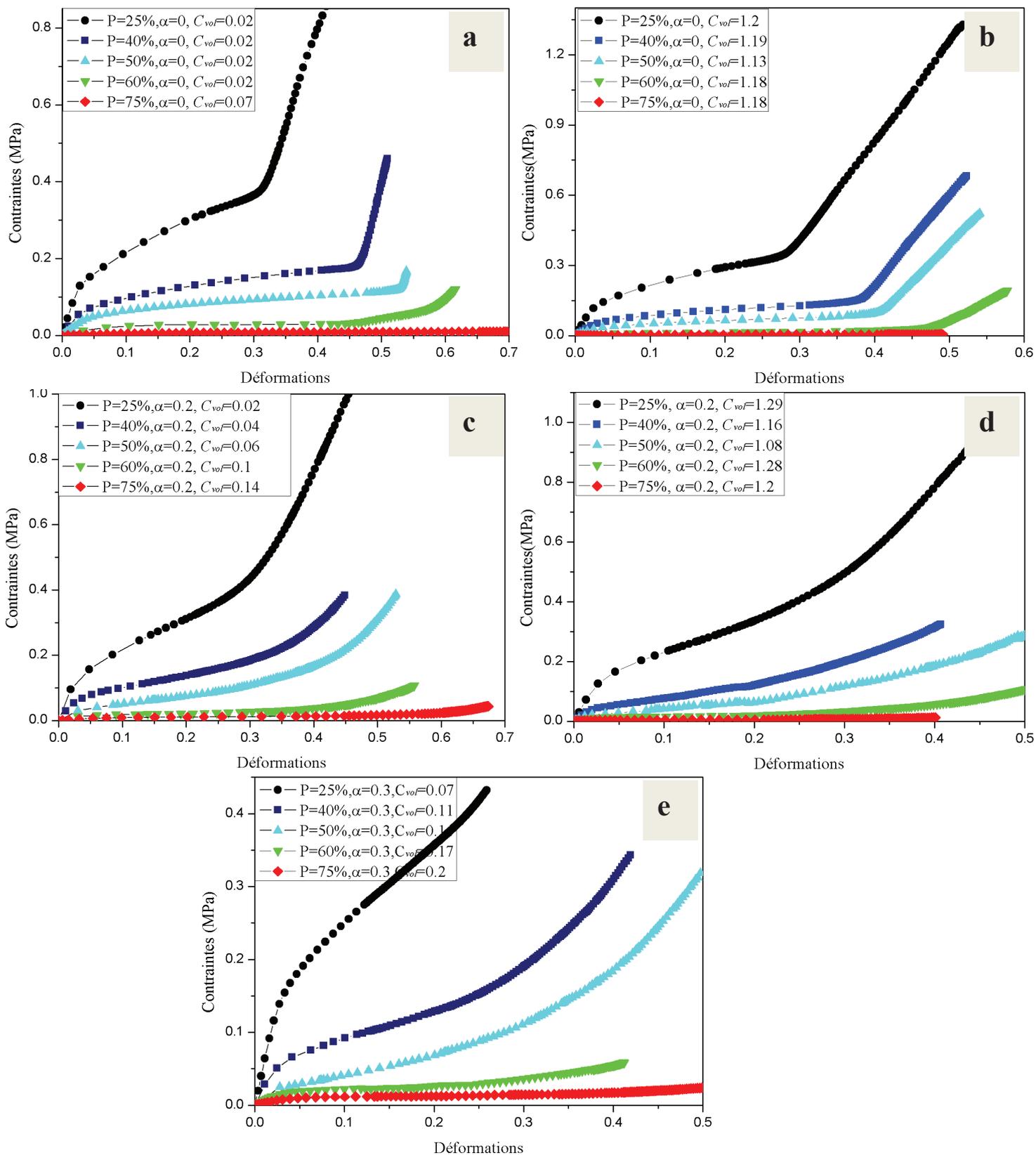
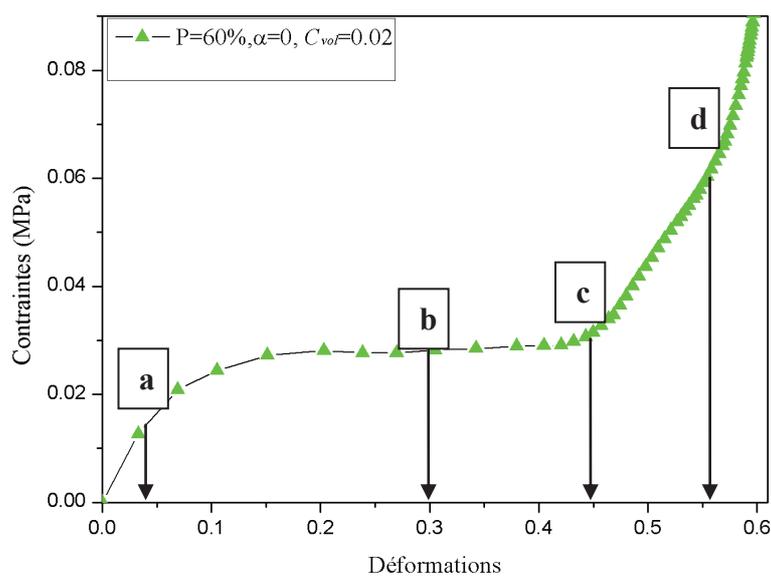


Figure 96: Courbes contraintes-déformations des modèles simulés

4.4.2.3.1. Observations générales

Nous observons bien les trois plages de déformations pour chacun des modèles simulés: le régime linéaire, le plateau de stress (le régime de plateau) et la densification. La plage de densification est particulièrement identifiable dans les Figure 96.a et Figure 96.b avec une pente assez raide à partir d'une déformation seuil variable. Ces courbes correspondent aux modèles avec une répartition spatiale régulière des cellules ($\alpha=0$). Pour décrire l'évolution de la microstructure suivant les plages de déformations nous avons alors pris en exemple le modèle à structure régulière avec une porosité de 60% pour analyser les champs de contraintes locaux (Figure 97).



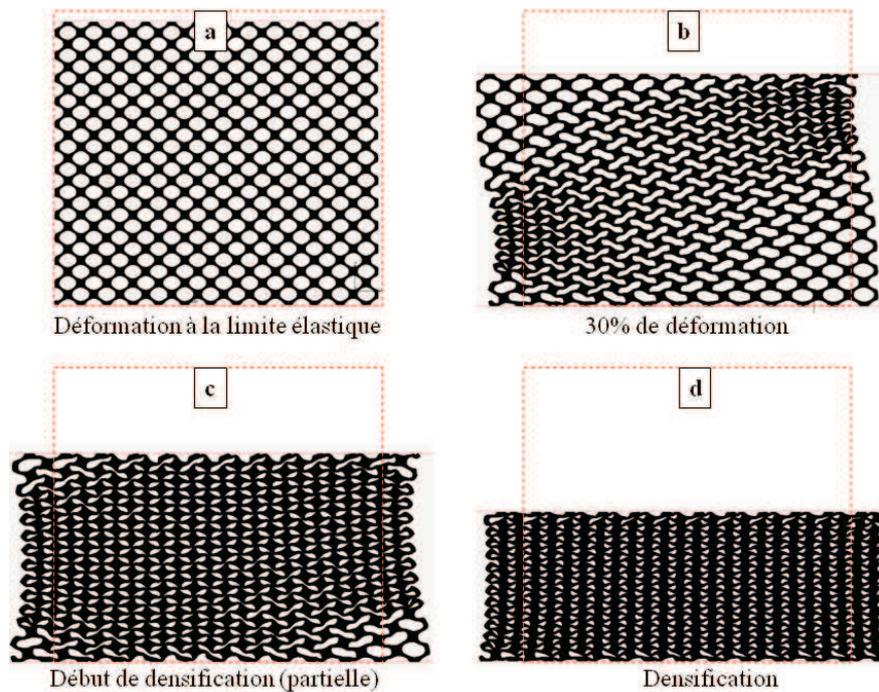


Figure 97: Différentes étapes de déformations d'un modèle de microstructure à structure régulière : (a) déformations à la limite élastique, (b) Plateau de déformation (exemple à 30% de déformation), (c) le début de densification partielle, (d) le début de la densification totale

Nous avons distingué ici quatre étapes dans la déformation la microstructure. Pour chacune des étapes nous donnons aussi les champs de contraintes normales, tangentiels et la contrainte équivalente de Von Mises pour une analyse à l'échelle microstructurale. Le niveau de couleur va du bleu au jaune et donne l'intensité de ces champs. Pour les champs de contraintes normales et tangentiels les maxima et les minima sont de signe opposés.

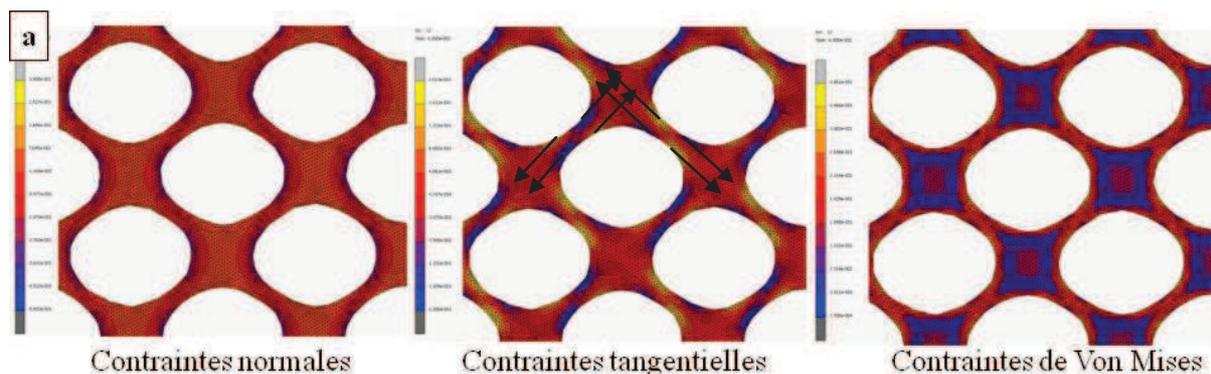


Figure 98: Champs de contraintes à la limite élastique

La première étape est la déformation à la limite élastique. Pour ce modèle elle correspond à une déformation de 4%. Au niveau de la microstructure cela se traduit par des contraintes maximales de 0.3 MPa en valeur absolue inférieures à la limite élastique du matériau. Les cellules gardent toujours une forme convexe mais les parois commencent à être cisailées (en jaune et en bleu) principalement dans deux directions spécifiques (Figure 98).

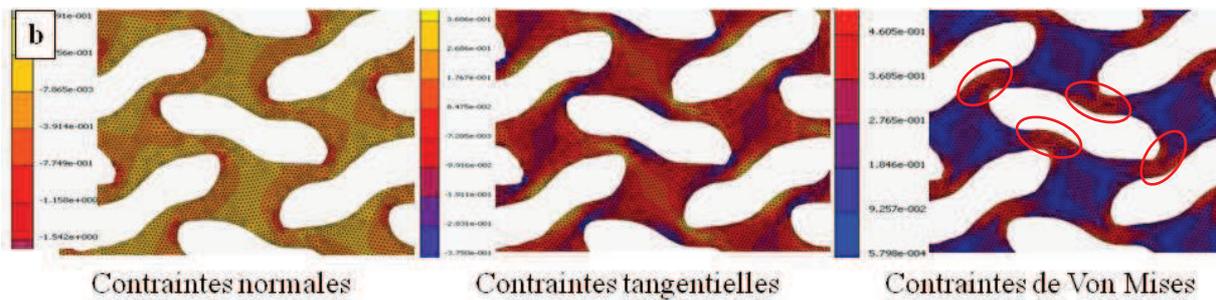


Figure 99: Champs de contraintes à 30% de déformation

La deuxième étape est un exemple de déformation dans le plateau de stress (30%). Nous observons des plans de cisaillement (Figure 97.b) qui accroissent la déformation des cellules sur certains endroits spécifiques de la microstructure. A une plus petite échelle nous remarquons que :

- Les contraintes normales sont maximales sur certaines zones spécifiques pour chaque cellule. Ces zones dépendent de la distribution des cellules frontalières et pas forcément de l'épaisseur locale des parois (Figure 99). Les contraintes étant aussi maximales sur les zones de forte densité.
- Les zones de faibles épaisseurs de parois sont fortement cisillées.

Le champ de contraintes de Von de Mises permet de mieux définir les zones de fortes contraintes. C'est un champ scalaire défini positif. L'analyse montre que les parois de plus faibles épaisseurs sont les zones de plus fortes contraintes et c'est ce qui engendre les bandes de déformations dans toute la microstructure. Il y a deux bandes symétriques. La génération numérique de la microstructure ainsi que le maillage E.F engendrent de très faibles irrégularités dans la géométrie des contours du modèle et donc de sa morphologie. Ce qui au final privilégie une bande de cisaillement plutôt qu'une autre.

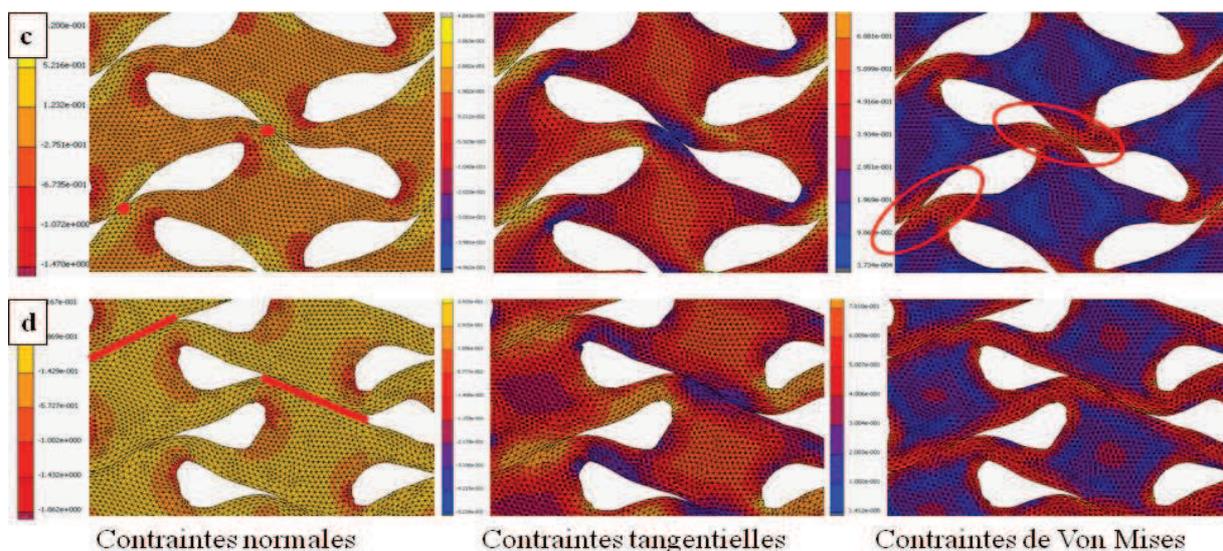


Figure 100: Champs de contraintes au début de la densification

Les troisième et quatrième étapes illustrent le début de la densification. Dans la Figure 97.c nous avons d'abord une première densification aux alentours de 43% de déformation avec une augmentation brusque des contraintes. Nous l'observons sur seulement certains endroits de la microstructure. Au niveau microstructural ces endroits correspondent aux zones fortement contraintes où les parois des cellules commencent à rentrer en contact (Figure 100.c). Sur les endroits externes de la microstructure, moins contraints, ces contacts ne sont pas encore initiés. C'est une densification partielle qui est dans la continuité de l'augmentation des bandes de cisaillement. A partir de 55% de déformation toutes les parois rentrent en contact, les contraintes augmentent aussi sensiblement (Figure 97.d et Figure 100.d). Les contacts ne sont plus ponctuels au centre mais plans. Il y a alors d'énormes frottements de glissement et les propriétés du matériau telles que son coefficient de frottement jouent un rôle prépondérant dans la cohérence des résultats de simulation par rapport au comportement de vraies mousses.

En conclusion, durant toute la déformation de la microstructure, les parois de plus faibles épaisseurs sont les zones les plus fortement cisillées et sont aussi les zones de plus fortes contraintes. La contrainte équivalente de Von Mises montre également que les zones de plus faibles contraintes ne sont pas les centres de densité locale (les jonctions où se rejoignent plusieurs cellules) comme nous pouvions nous y attendre. Les zones de plus faibles contraintes sont des calottes concentriques situées à une certaine distance de ces jonctions. Les contraintes normales y sont très grandes mais elles sont par contre très peu cisillées.

4.4.2.3.2. Impact de la porosité

Afin de mieux étudier l'impact de la porosité nous avons distingué le domaine élastique et le domaine plastique.

4.4.2.3.3. Domaine élastique

Dans le domaine élastique nous avons déterminé l'évolution du module d'Young en fonction de la porosité. Ainsi quelle que soit la morphologie de la microstructure (répartition uniforme ou aléatoire des cellules, structure mono ou poly-disperse) le Module d'Young E diminue en fonction de la porosité (Figure 101).

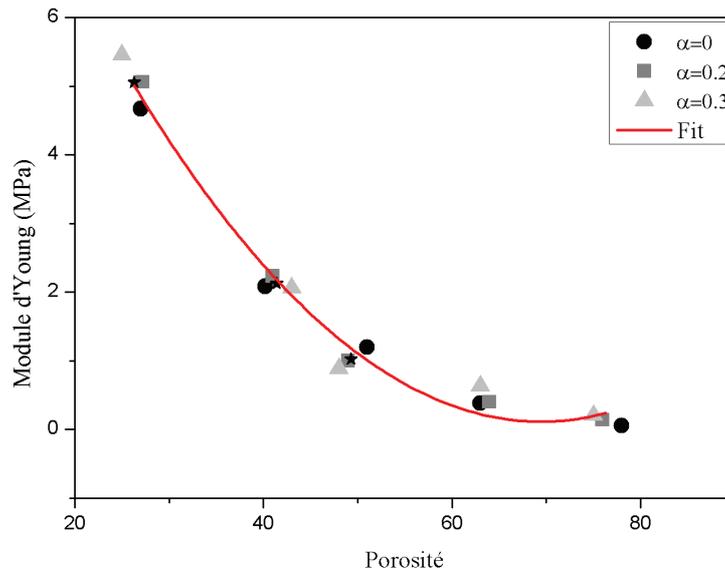


Figure 101 : Evolution du module d'Young en fonction de la porosité pour différentes répartitions spatiales de cellules

La répartition spatiale n'influe pas sur le module de Young et un fit polynomial d'ordre 2 moyenné sur l'ensemble des modèles de microstructures est une bonne estimation qui montre que le module diminue en fonction du carré de la densité relative d (inverse de la porosité P):

$$E \propto d^2; \quad d = \frac{1}{P}$$

Plusieurs études ont déjà démontré ce résultat pour différentes morphologies de mousses [138] [35]. Dans le chapitre 1, les modèles d'Ashby et Gibson donnaient un module de Young en fonction du carré de la densité relative de la mousse en régime linéaire. Bien que ces modèles soient adoptés pour des microstructures de très faibles densités relatives c'est un modèle de loi de comportement cohérent pour déterminer le module élastique de mousses de différentes porosités et de différentes morphologies.

4.4.2.3.4. Domaine plastique

Dans le domaine plastique nous pouvons distinguer le plateau de stress de la densification. Le plateau de stress peut être caractérisé par sa pente moyenne. En effet pour toutes les courbes observées le plateau de stress est pratiquement linéaire. La Figure 102 donne ainsi l'évolution de la pente en fonction de la porosité. Celle ci diminue effectivement en fonction de la porosité. Par rapport à la littérature il n'existe pas à notre connaissance de modèles de lois de comportements pouvant décrire l'évolution du plateau de stress en fonction de la porosité. Cependant la porosité n'est pas la seule caractéristique impactant l'allure des courbes en grande déformation. Nous allons par la suite développer plus en détails les influences des autres paramètres morphologiques dans le plateau de stress et la densification.

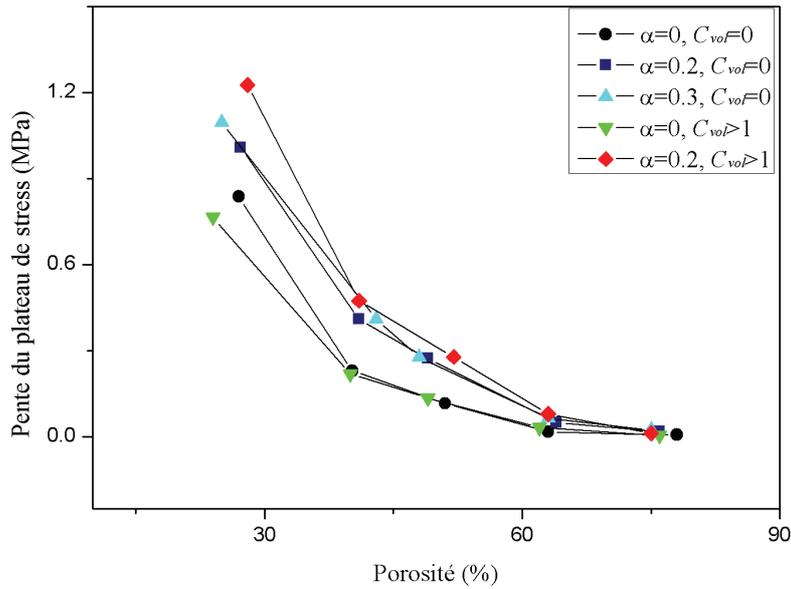
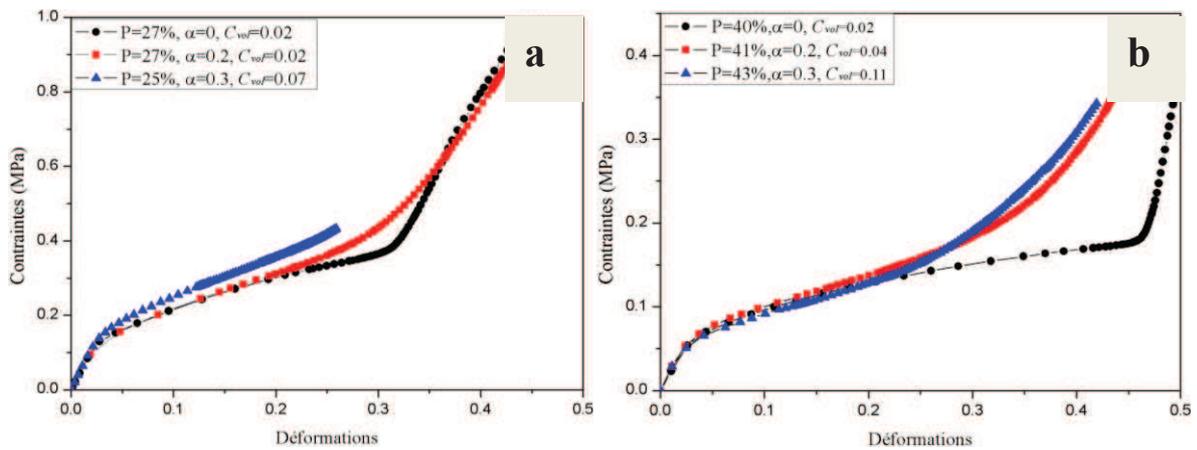


Figure 102: Evolution du plateau de stress en fonction de la porosité

4.4.2.3.5. Impact de la répartition spatiale

Nous avons tracé les courbes contrainte-déformation des modèles en fonction du paramètre α qui donne une mesure de l'homogénéité de la répartition spatiale des cellules (Figure 103). Les courbes (a) à (d) correspondent à une distribution mono disperse ($C_{vol} \approx 0$) et les courbes (e) à (h) une distribution poly disperse ($C_{vol} > 1$). Les légères différences de porosités entre certains des modèles (<3%) influent sensiblement sur leur réponse mécanique, principalement sur le plateau de stress.

Globalement les réponses mécaniques sont similaires jusqu'aux alentours de 20% de déformation. Ensuite, et au fur et à mesure de la déformation, les modèles avec une répartition irrégulière des cellules ($\alpha = 0.2$ et $\alpha = 0.3$) ont un comportement plus résistant et leur densification est plus amortie que celle du modèle régulier ($\alpha = 0$).



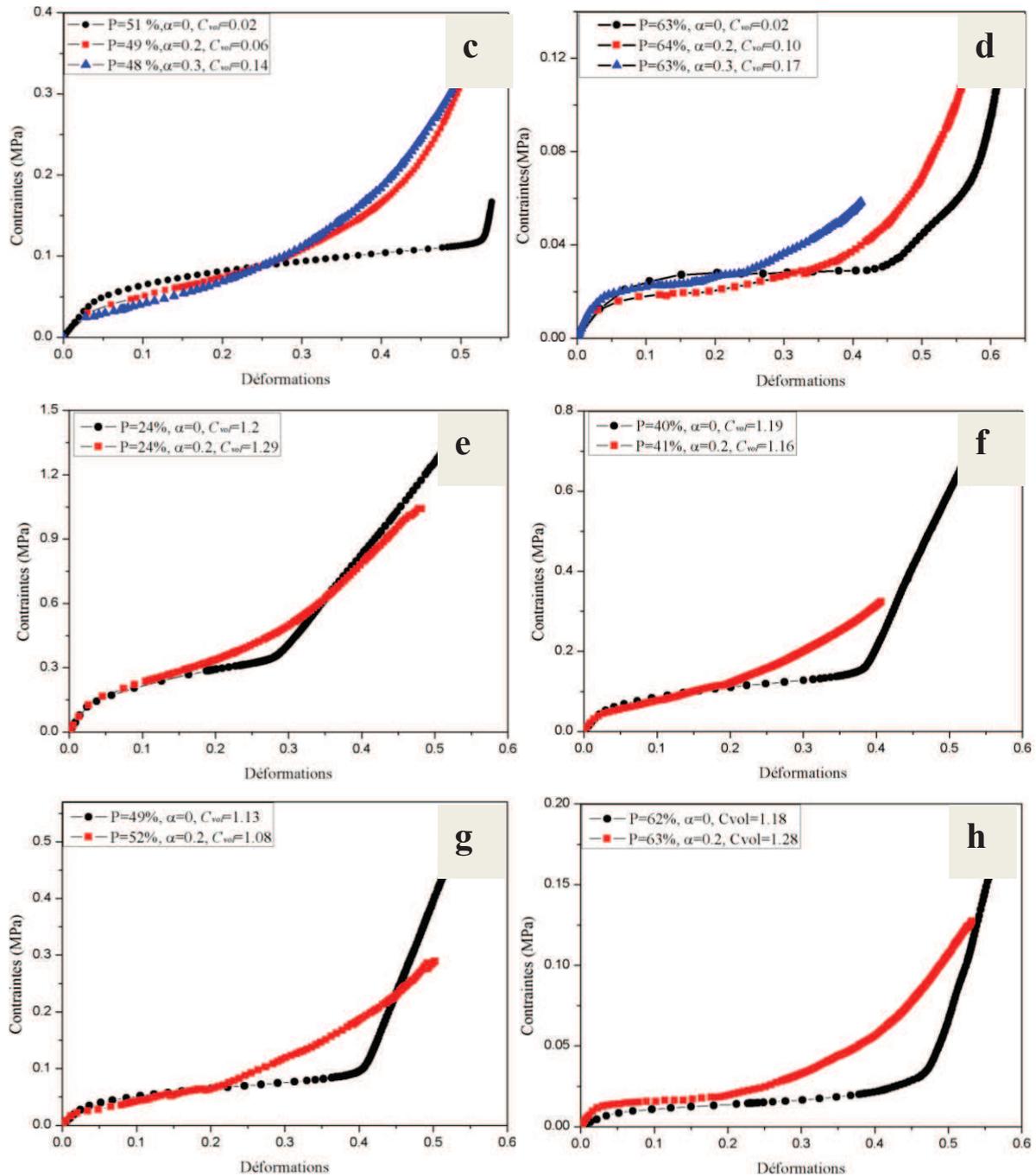


Figure 103: Influence de la répartition spatiale pour différentes porosité : de (a) à (d) structures mono disperse ($C_{vol} \approx 0$), de (e) à (h) structures poly disperse ($C_{vol} > 1$)

La répartition spatiale influe faiblement sur le plateau de stress. La Figure 104 donne l'évolution de la pente du plateau de stress en fonction de la porosité pour les trois modèles. A porosité égale, plus la microstructure est hétérogène et plus la pente est grande. Elle montre cependant que l'impact est sensiblement plus important à faible porosité.

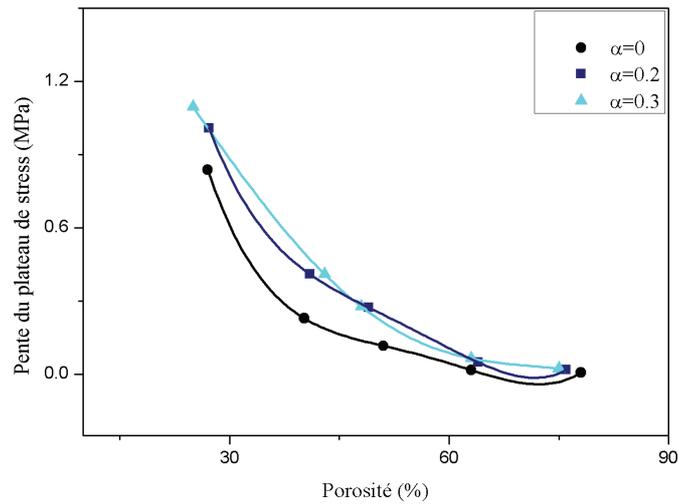


Figure 104: Evolution plateau de stress en fonction de la répartition spatiale des cellules : (a) structures mono disperse ($C_{vol} \approx 0$)

Afin de mieux nous rendre compte de l'impact de la répartition spatiale, nous avons comparé les déformations de certains modèles à l'échelle microstructurale suivant les trois plages de déformations (Figure 105).

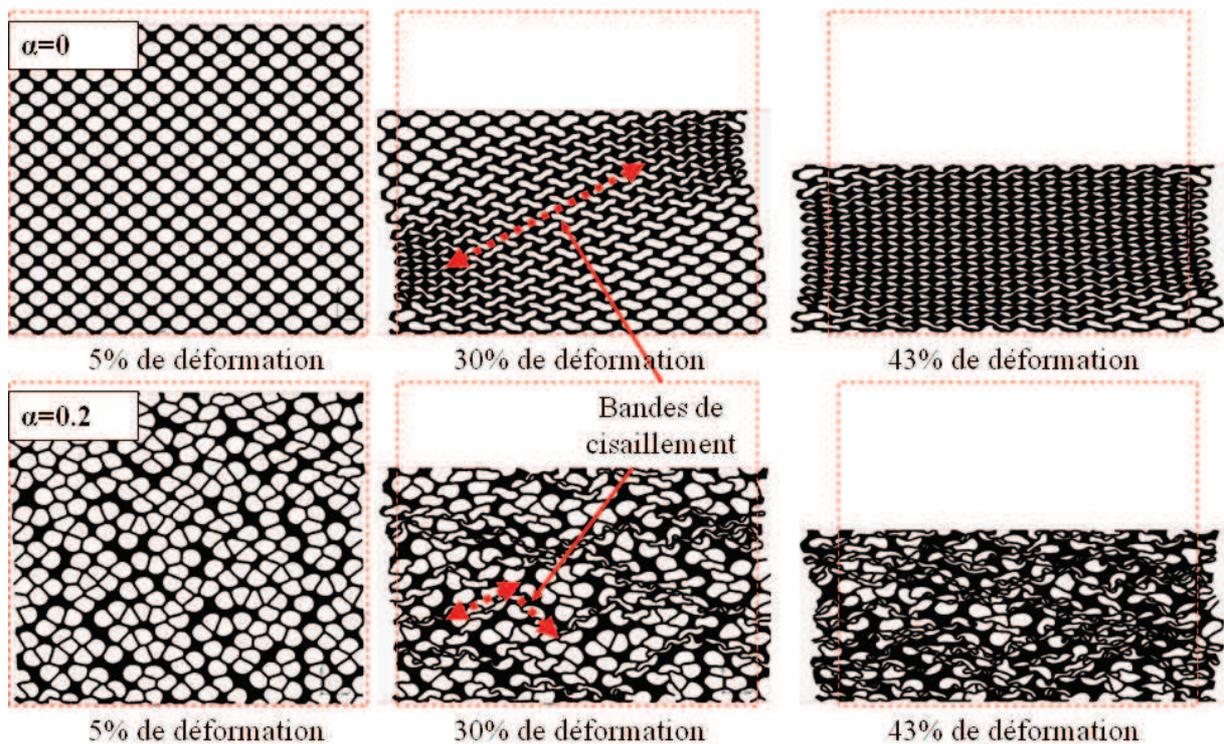




Figure 105: Comparaison à différentes étapes de déformation entre les modèles mono disperse de 70% porosité ($\alpha=0$, $\alpha=0.2$ et $\alpha=0.3$)

❖ **Domaine linéaire**

Dans le domaine linéaire, les parois des cellules sont très peu déformées même si on peut déjà observer pour les deux structures irrégulières un début de flambement sur une infime proportion de parois. Nous avons globalement un comportement identique entre les modèles et la répartition spatiale des cellules n'a pratiquement pas d'impact sur le module de Young (Figure 101).

4.4.2.3.6. Plateau de stress et densification

Dans le plateau de stress, le modèle régulier est caractérisé par une bande de cisaillement homogène qui se propage progressivement dans toute la structure. Pour les deux modèles irréguliers il y a cependant plusieurs bandes de cisaillement (hétérogènement) aléatoirement réparties dans la microstructure et interconnectées les uns aux autres. Ces bandes de cisaillement augmentent sensiblement en même temps que le paramètre α . Afin de déterminer l'origine de la formation de ces bandes nous avons extrait les champs de contraintes de Von Mises suivant plusieurs étapes dans la déformation d'un des modèles irréguliers et mono disperse ($P=64\%$, $\alpha=0.2$ et $C_{vol}=0.1$), (Figure 106). L'analyse montre que ces bandes de cisaillement correspondent aux régions de plus fortes contraintes qui sont les parois de plus faible épaisseur. Le suivi de la déformation confirme ainsi que la microstructure se déforme en suivant les régions les moins denses (voir paragraphe 0), ce qui engendre un enchevêtrement des parois. De plus nous observons différentes vitesses de déformations localement au niveau des bandes. En effet certaines bandes sont très vite déformées dès le début de la plastification et atteignent un certain niveau de densification. Ces régions se déforment ensuite très lentement malgré l'augmentation des contraintes locales. C'est alors d'autres régions qui à leur tour se densifient, les parois de leur cellules rentrant en contact et ainsi de suite. Finalement la microstructure s'effondre par paliers en fonction des bandes de cisaillement.

De ce fait pour les structures irrégulières le plateau de stress et la densification sont des étapes inséparables qui ont lieu simultanément. La densification est progressive et plus la structure

est irrégulière et plus celle-ci est amortie (Figure 105 et Figure 106). Au contraire, la densification du modèle régulier correspond à un effondrement quasi simultané des cellules avec les parois qui rentrent en contact en même temps pour la majorité des cellules.

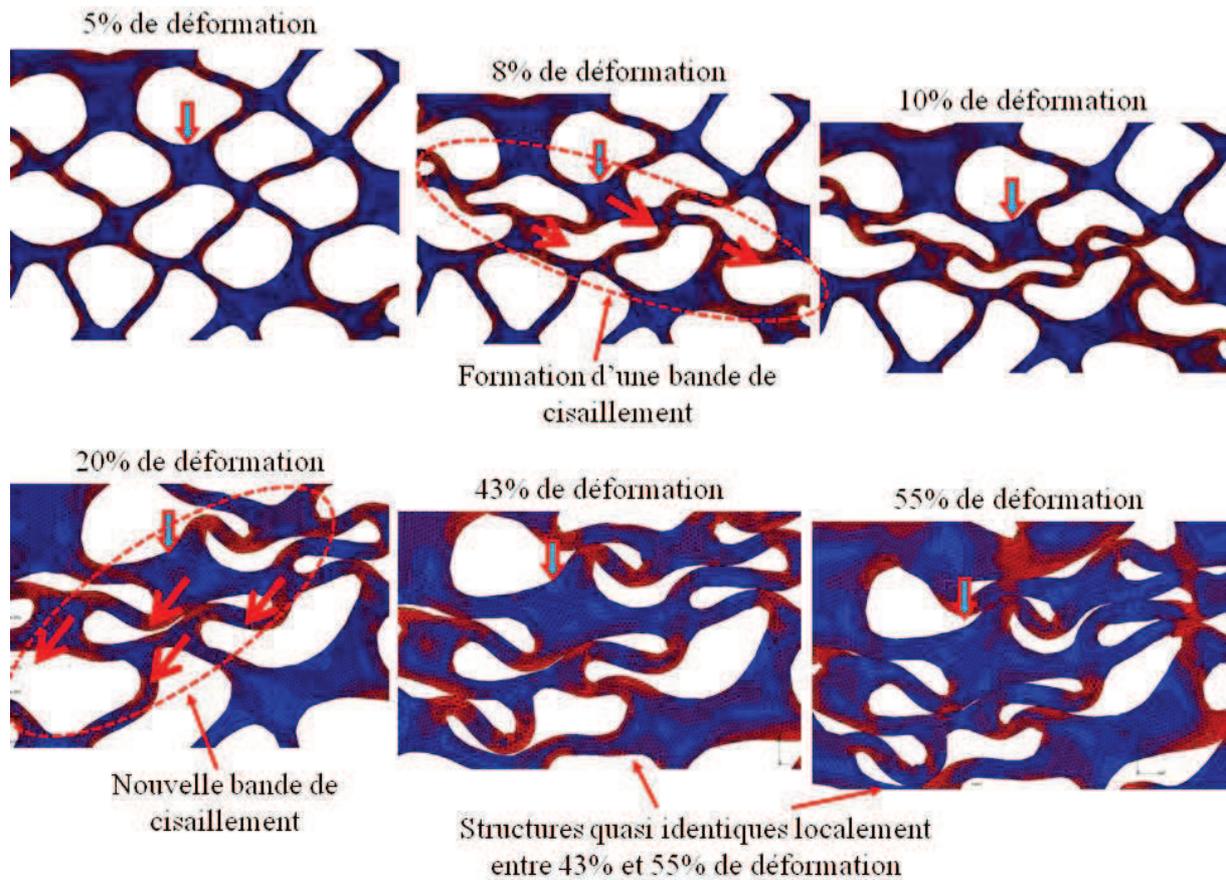


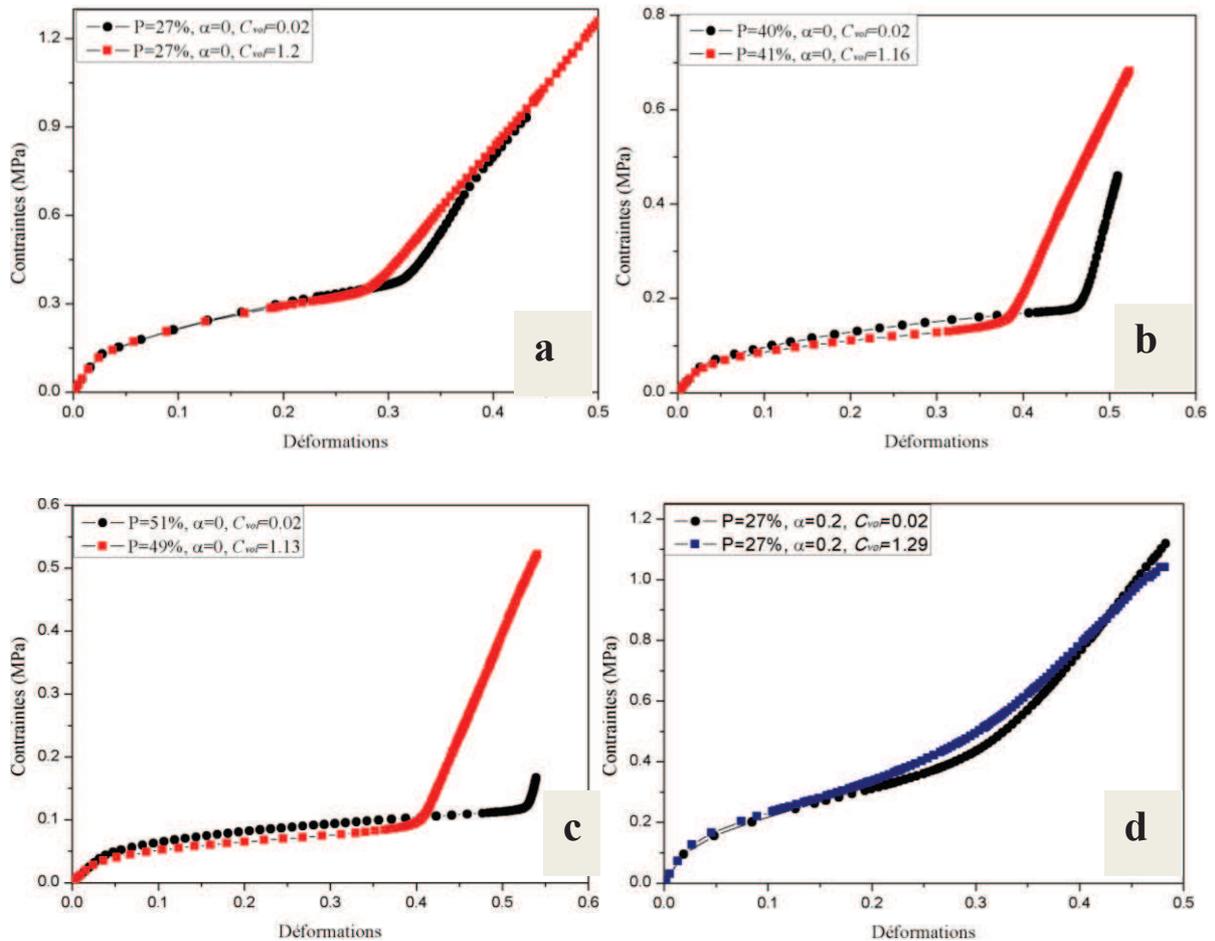
Figure 106: Champs de contraintes de Von Mises d'un modèle irrégulier pour différent paliers de déformations : en rouge les régions de plus fortes contraintes. La flèche au centre indique la région suivie

Nous observons les mêmes effets du paramètre α sur les modèles de microstructures poly-disperse (Figure 105 courbe (e) à (f)). Cependant sur ces types de structures la densification est moins raide (pente de la plage de densification sensiblement plus faible). En effet, comme nous le verrons sur le paragraphe suivant, la différence de tailles entre les cellules augmente encore plus l'hétérogénéité de la microstructure. De ce fait, durant la compression, les bandes de cisaillement sont encore plus aléatoires que pour les structures mono-disperse ce qui homogénéise « mieux » la déformation de la microstructure et donne donc un comportement plus lisse.

4.4.2.4. Impact de la distribution de taille

Ici nous avons étudié l'impact de la taille moyenne et de la dispersion des cellules dans une microstructure.

La dispersion de taille des cellules influe grandement sur le comportement des mousses. Nous avons comparé sur la Figure 107 les modèles de microstructure mono-disperses aux modèles poly-disperses pour une porosité et une répartition spatiale des cellules identiques. Ainsi de (a) à (c) nous avons des structures régulières et de (d) à (f) des structures irrégulières.



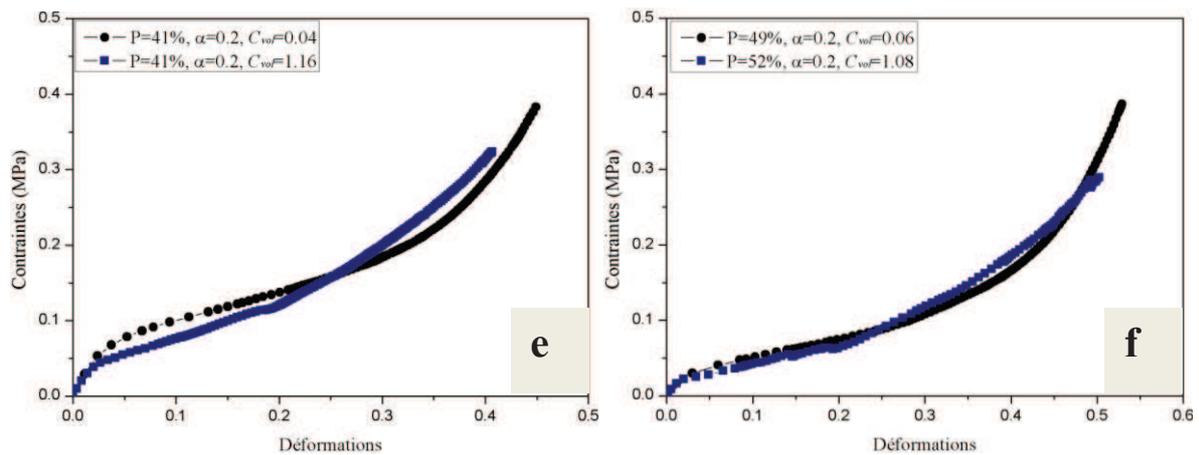


Figure 107 : Influence de la dispersion de taille des cellules pour différentes porosité : de (a) à (c) structures régulières ($\alpha=0$), de (d) à (f) structures irrégulières ($\alpha=0.2$)

❖ Domaine linéaire

Dans le domaine linéaire et à l'échelle de la microstructure, nous avons un comportement identique entre les modèles quelle que soient la porosité et la répartition spatiale des cellules. La dispersion de taille entre les cellules n'a pas d'impact sur le module de Young.

❖ Domaine plastique

Dans le domaine plastique nous n'observons pas les mêmes comportements selon que les modèles de microstructures sont réguliers ou irréguliers. Pour les modèles réguliers la dispersion de tailles des cellules n'a pas d'influence sur le plateau de stress (Figure 107.a, b et c). Cependant la densification n'est pas la même. Les structures poly-disperses densifient plus tôt et moins vite avec une pente sensiblement moins raide. La Figure 108 montre deux modèles réguliers de 50% de porosité à leur début de densification. Ce début correspond à 53% de déformation pour le modèle mono disperse et à 40% de déformation pour le modèle poly-disperse. Localement, cette différence vient du fait que certaines des petites cellules du second modèle ne se sont pas encore totalement déformées. En mesurant les distances entre les cellules voisines, nous observons deux tailles de parois très distinctes. Les contraintes sont maximales sur les parois les plus étroites et très faibles sur les régions denses qui entourent elles mêmes des petites cellules. Ces cellules s'effondrent alors très tardivement sous de très fortes contraintes. Pour le modèle mono-disperse il existe une taille unique de parois de cellule plus grande et la densification arrive simultanément pour toutes les cellules.

Quand la différence de taille entre les parois des modèles poly-disperses augmente la densification débute encore plus tôt. Nous observons ainsi un écart croissant de début de densification entre les modèles mono et poly-disperse des Figure 107 de (a) à (c).

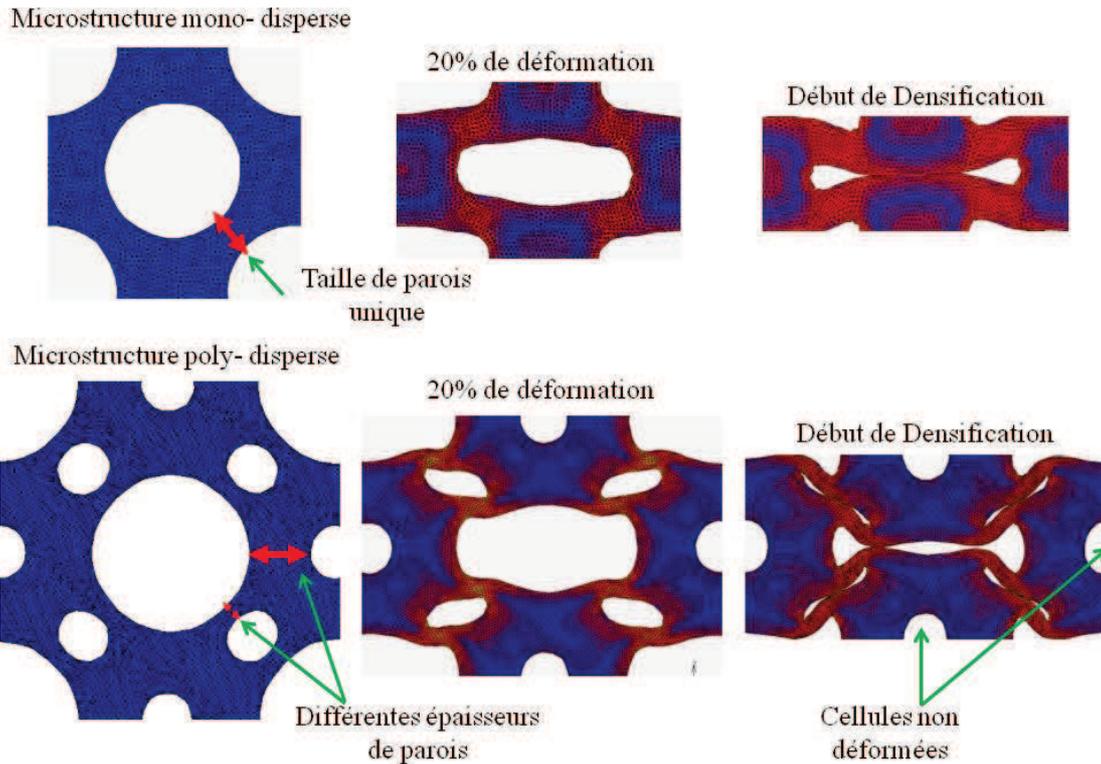


Figure 108: Champs de contraintes de Von Mises des deux modèles de 50% de porosité, mono et poly-disperse pour différents paliers de déformations ; en rouge les régions de plus fortes contraintes

L'impact de la variation de tailles des cellules dépend de la répartition spatiale des cellules. De ce fait les modèles poly-disperses irréguliers sont tous générés à partir de la même structure que les modèles mono-disperses. Ces modèles ont donc très exactement les mêmes répartitions spatiales des centres des cellules. Ceci a eu pour principal but de réduire au maximum les bruits de mesures générés par une différence entre les irrégularités spatiales des modèles comparés. En effet les réponses mécaniques sont très sensibles à l'hétérogénéité de la microstructure caractérisée principalement par la répartition spatiale des cellules qui peut masquer les effets de leur variation de taille.

La Figure 107 (d) à (f) montre que pour les structures irrégulières la réponse mécanique change peu. Pour un paramètre α valant 0.2 les réponses des modèles mono-disperses sont déjà très amorties, les modèles poly-disperses sont juste légèrement plus lissés entre le plateau de stress et la densification. A l'échelle de la microstructure nous observons cependant quelques différences dans les mécanismes de déformations. La Figure 109 compare les champs de contraintes de Von Mises pour les deux modèles mono- et poly- disperse suivant le même pourcentage de déformation. Les régions en rouges sont les zones de plus fortes contraintes.

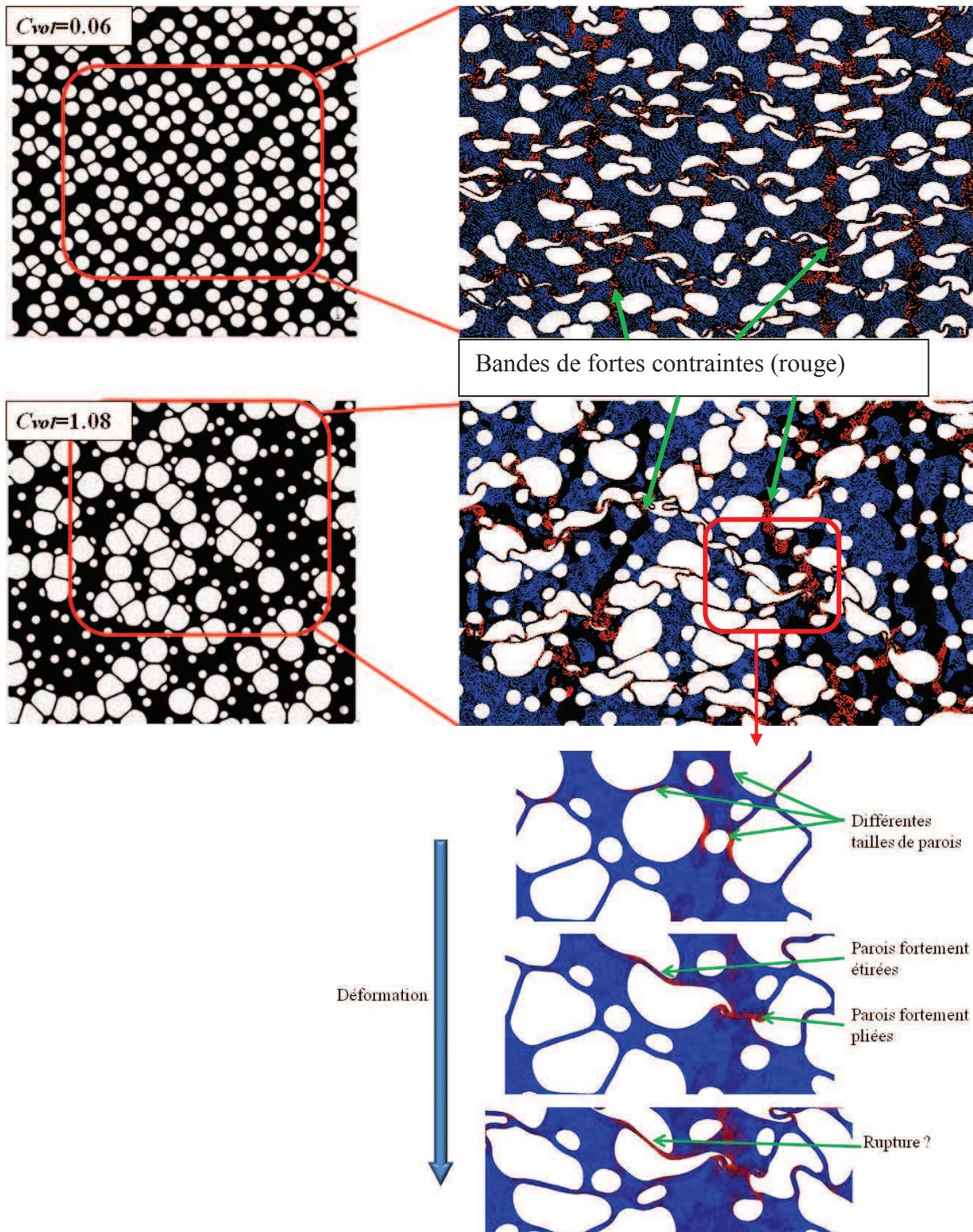


Figure 109: Modèles de 50% de porosité mono et poly disperse et champs de contraintes de Von Mises ; mécanismes de déformations du modèle poly-disperse et impact de la taille des parois

Si pour le modèle mono-disperse nous observons plusieurs bandes de fortes contraintes réparties dans toute la microstructure, dans le modèle poly-disperse il y en a largement moins et les bandes sont très aléatoirement réparties. Ici aussi la différence de tailles entre les parois

joue un rôle majoritaire. Les parois peuvent être très fines et/ou très longues. Certaines parois flambent totalement pendant que d'autres sont très étirées. Et si la déformation des unes s'arrête après une densification complète, les autres sont très proches de la rupture.

4.4.2.5. Conclusion de l'analyse en 2D

Dans un premier temps la simulation numérique a permis de confirmer l'influence de la porosité sur le comportement des microstructures de mousses. Cette influence porte sur les trois plages de déformation : régime linéaire, plateau de stress et densification. Nous avons aussi étudié l'influence de la répartition spatiale des cellules ainsi que leur variation en taille sur différents modèles de microstructures pour des porosités allant de 25% à 75%. Ces deux paramètres morphologiques caractérisent l'hétérogénéité de la microstructure. La répartition spatiale des cellules impacte sur les mécanismes de déformation des mousses à l'échelle de leur microstructure et aussi leur comportement mécanique macroscopique quelle que soit la porosité et la distribution de taille des cellules. Ces impacts spécifiques concernent principalement le plateau de stress et la densification. L'impact de la variation de taille des cellules porte principalement sur la plage de densification. Globalement nous observons les mêmes tendances que pour la répartition spatiale des cellules et à l'échelle de la microstructure les mécanismes de déformations sont très diversifiés selon la taille et la position des parois.

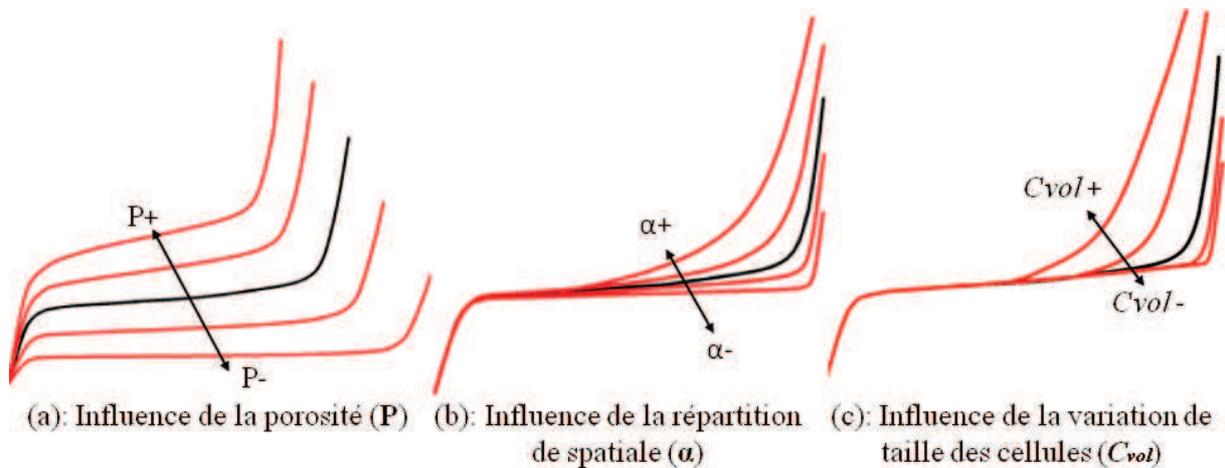


Figure 110: Influence des paramètres morphologiques sur le comportement mécanique global des mousses

La Figure 110 illustre l'influence des trois paramètres morphologiques étudiés. La porosité est le premier paramètre influant sur le comportement des mousses. Le module d'Young diminue suivant le carré de la densité relative de la mousse de même que la pente du plateau de stress. A même densité et même nature de matériau des parois, nous avons le même module d'élasticité, confirmant ainsi la théorie d'Ashby [1] selon laquelle, le module élastique, serait indépendant de la topologie de la mousse. Le début de la densification correspond à une déformation de seuil qui augmente avec la porosité. A l'échelle de la microstructure les parois de plus faibles épaisseurs sont les régions les plus contraintes et les plus cisailées. C'est donc

ces régions qui cèdent les premières et la microstructure se déforme suivant des bandes de cisaillement. Plus la porosité est grande et plus les parois sont fines et plus le plateau de stress est grand.

Plus la répartition spatiale des cellules est désordonnée et plus la réponse mécanique en compression est amortie. La pente du plateau de stress augmente légèrement indiquant une densification plus progressive. Ces deux étapes de déformation sont inséparables et ont lieu simultanément. Localement plusieurs bandes de cisaillement se forment sur les régions de plus faibles épaisseurs. Certaines bandes apparaissent dès les débuts de la plastification. Nous observons alors plusieurs vitesses de déformation. Les bandes se forment progressivement et aléatoirement en fonction de l'irrégularité de la microstructure.

La variation de la taille des cellules a un impact similaire. En effet celle-ci rajoute une hétérogénéité de la distribution des cellules dans la microstructure. De ce fait plus la structure observée est homogène et plus l'impact de la variation de taille des cellules est visible et important. Il est donc maximal dans le cas d'une répartition régulière des cellules. Pour ces structures nous observons les mêmes comportements dans le régime linéaire et le plateau de stress. Cependant la densification arrive bien plus tôt à cause de l'épaisseur des parois. De manière générale nous observons différentes tailles de parois dans les structures poly-disperses (parois fines ou épaisses, longues ou courtes). Les parois les plus étroites supportent plus de contraintes et la microstructure se déforme en suivant les régions de plus faibles épaisseurs. La flexion et l'étirement des parois sont les principaux mécanismes de déformations.

La différence de taille entre les parois traduit aussi l'hétérogénéité de la structure. Le paramètre α ainsi que le paramètre C_{vol} permettent de caractériser cette hétérogénéité qui au final impacte fortement le comportement mécanique des mousses en grande déformation, à l'échelle de la microstructure et à l'échelle globale.

4.4.2.6. Prédiction de la réponse mécanique d'une microstructure de mousse

L'étude en 2D a montré qu'il était difficile de caractériser analytiquement le comportement mécanique en grande déformation des mousses. En effet même si la limite d'élasticité peut être déterminée (expérimentalement ou théoriquement), la déformation au début de la densification ainsi que l'allure de la plage correspondante n'ont pas pu être analytiquement caractérisées en fonction des paramètres morphologiques. Cependant il est possible de donner une tendance précise de la réponse mécanique en fonction de la morphologie de la microstructure en :

- Simulant à porosité égale une structure régulière au VER correspondant. Cette structure prend en compte la dispersion de taille de cellules. A la suite de cette

simulation nous obtenons une courbe contrainte déformation d'un modèle avec la même porosité et la même dispersion de taille que le modèle à caractériser.

- L'impact de la répartition des cellules peut être pris en compte en paramétrant les pentes des plateaux de stress et de densification qui définissent les asymptotes de la réponse mécanique de la microstructure dans le domaine plastique.

4.5. Simulations en 3D

La simulation 3D est dans la continuité de la simulation 2D. A cause des très long temps de calculs des simulations, nous n'avons pas repris les études déjà menées en 2D. Les objectifs de la simulation 3D sont :

- De valider la pertinence de la simulation numérique en comparant la simulation d'un modèle 3D à la compression expérimentale d'un échantillon de mousse en tomographie X. Cette étude a permis par la même occasion de compléter la caractérisation expérimentale en donnant les champs de contraintes et de déformations dans la compression de la mousse.
- D'étudier le volume élémentaire représentatif en 3D
- De valider le réalisme des microstructures générées et aussi de vérifier si la seule connaissance des distributions de taille, de forme et de position des cellules est suffisante pour précisément décrire la morphologie des microstructures de mousse. Comme étudié dans le chapitre 3, nous avons pu générer des modèles de microstructures statistiquement très représentatifs de vraies microstructures 3D obtenues en tomographie RX. Les modèles générés ont les mêmes distributions de volumes, de formes et de position des cellules en moyenne et en écart-type que les vraies structures. Les distributions de taille et position des cellules sont de plus corrélées. Il s'agit alors de comparer les réponses mécaniques de la simulation numérique d'un modèle 3D réel à un modèle généré à partir des mêmes distributions.

4.5.1. Comparaison de la compression in situ en tomographie X d'un échantillon de mousse à la simulation du modèle correspondant

Dans le chapitre 2 nous avons étudié la compression in situ en tomographie X d'un échantillon de mousse *B*. A défaut de pouvoir calculer les champs de déformations 3D réels de l'échantillon avec une méthode de corrélation volumique par exemple, une analyse statistique a été effectuée donnant quelques informations sur la déformation des cellules et des parois. Dans ce paragraphe nous comparons les résultats de la simulation numérique réalisée

sur le même modèle maillé à la compression de la mousse réelle. Le modèle est simulé en compression sans prise en compte du gaz dans les cellules. Le modèle de loi de comportement utilisé est tiré des résultats expérimentaux de la compression de l'équivalent massif de la mousse *B*. La Figure 111 donne le modèle simulé et le modèle expérimental suivant différents paliers de déformations allant de 0 à 20%. Le champ de contraintes de Von Mises est calculé sur le modèle simulé donnant en rouge les régions de plus fortes contraintes.

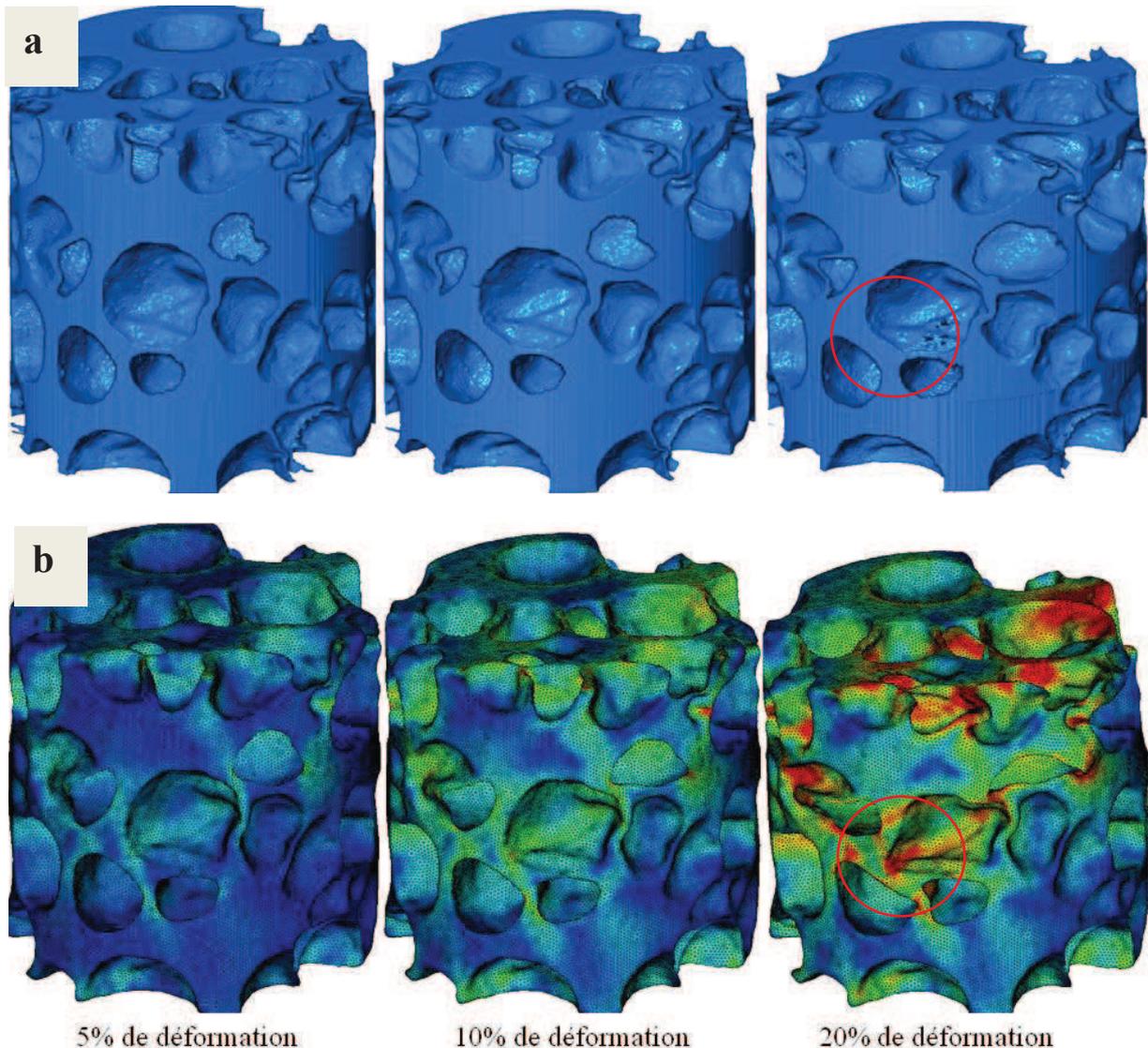


Figure 111 : Comparaison simulation numérique et expérience pour différents paliers de déformation : (a) modèle expérimental ; (b) champs de contraintes de Von Mises sur le modèle simulé

A 5% et à 10% de compression les modèles simulé et expérimental ont un comportement globalement identique. Les parois se déforment de la même manière dans les deux modèles. Cependant à 20% de compression nous observons quelques petites différences dans la déformation des bordures extérieures (cercles rouges). Sur le modèle simulé, certaines des parois les plus fines commencent rapidement à flamber alors que ces mêmes parois ne se sont pas encore déformées sur la mousse expérimentale. Ces différences proviennent

principalement des conditions aux limites différentes entre les deux modèles. En effet la mousse expérimentale est un petit volume pris à l'intérieur de l'échantillon de mousse scannée. Même si la mousse a été virtuellement découpée pour chacun des paliers de déformation, il ya une continuité des champs de contraintes et de déformations. Pour le modèle simulé nous n'avons pas utilisé de conditions aux limites spéciales pour simuler le modèle au sein d'un volume plus grand ou infini (grâce à un pavage par exemple). En effet les conditions aux limites périodiques nécessitent des plans de symétries spécifiques. Or la forme du modèle est cylindrique, une forme cubique aurait été plus adaptée pour permettre un pavage du modèle dans toutes les directions. D'autre part le choix d'une forme cubique implique le redécoupage du modèle 3D reconstruit réduisant notablement le volume d'observation. De plus, pour des microstructures très hétérogènes, le pavage 3D à partir d'un modèle cubique n'est pas une méthode réaliste de représentation de la morphologie de la microstructure.

Une analyse statistique à été effectuée afin de comparer les distributions des cellules des deux cas suivant leur déformation. Afin de réduire les erreurs générées par les conditions aux bords, seules les cellules internes dans chaque cas ont été prises en compte. Nous avons comparé l'évolution de la porosité, de la sphéricité moyenne et du volume moyen des cellules pour les différents paliers de déformations de 0%, 5%, 10% et 20% (Figure 112).

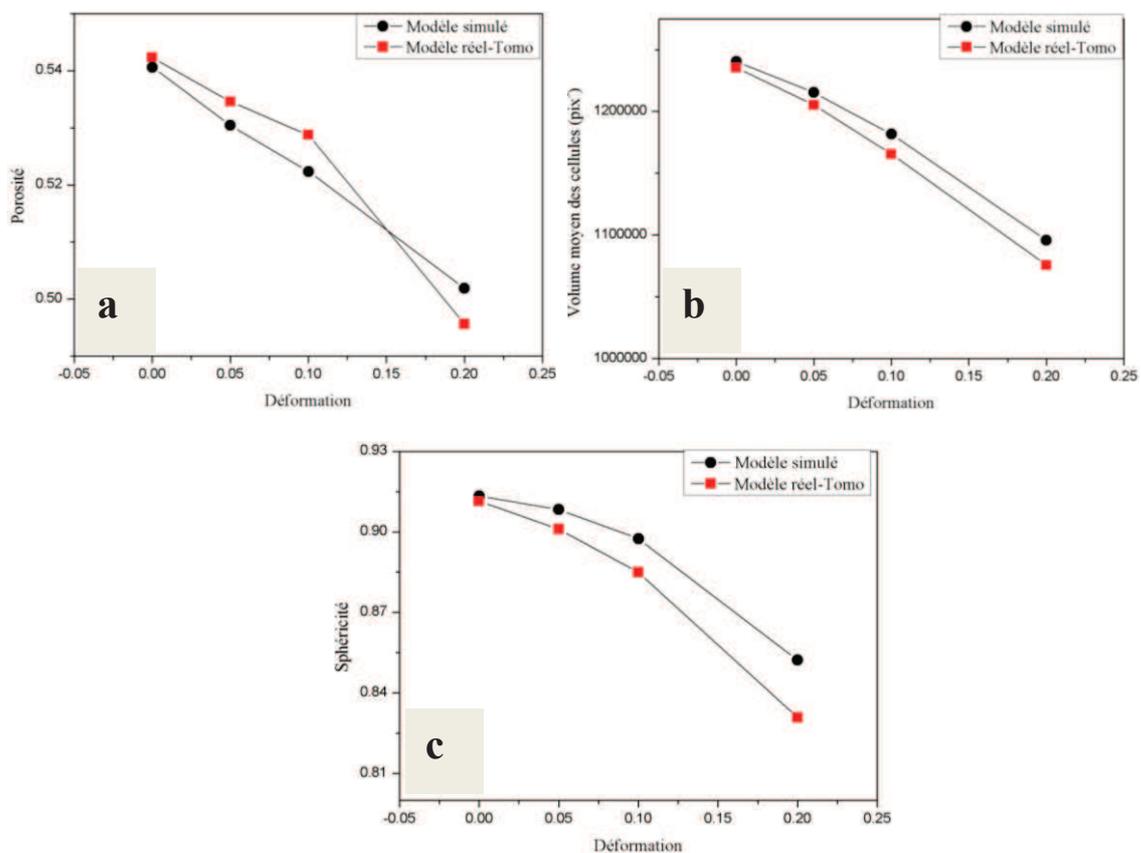
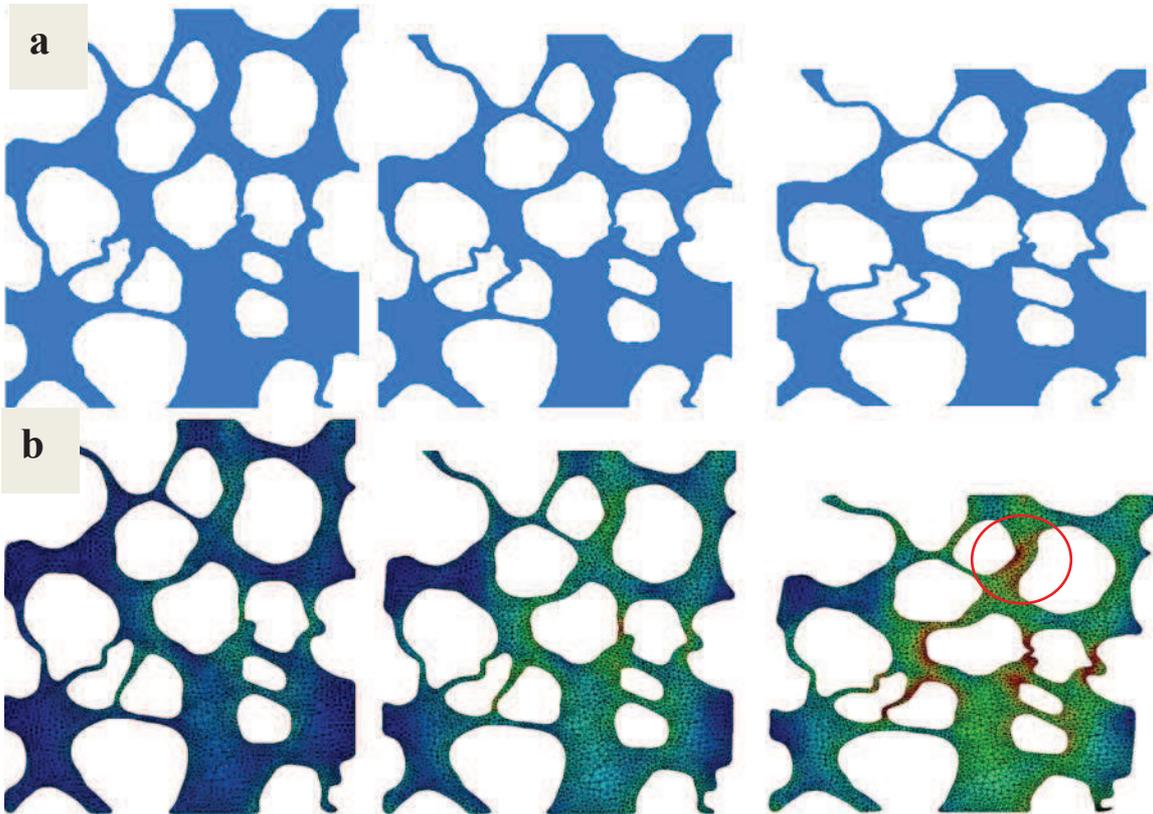


Figure 112 : Comparaison simulation numérique et expérience : évolution de la porosité (a), du volume (b) et de la sphéricité moyenne des cellules internes (c).

Ces courbes démontrent les similitudes entre simulation et expérience. Les légers écarts observés augmentent cependant au fur et à mesure de la déformation. Cela peut être dû soit au modèle de loi de comportement utilisé inadapté soit à l'impact du gaz dans les cellules qui augmente sensiblement la résistance de la mousse dans le plateau de stress et la densification. En perspective une analyse inverse doit être adoptée pour minimiser les erreurs de simulation et mieux caler l'analyse élément fini sur la mousse expérimentale (paragraphe 5).



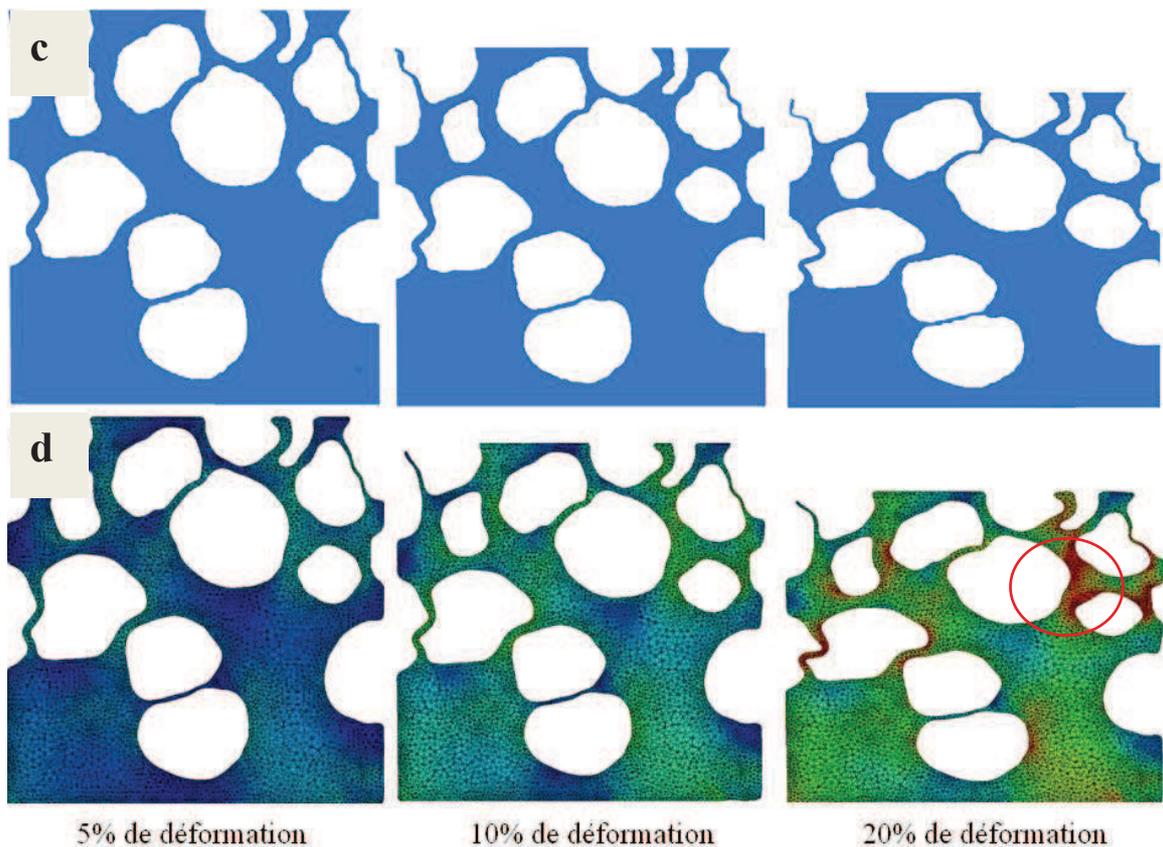


Figure 113 : Comparaison simulation numérique et expérience pour différents paliers de déformation : (a) et (b) première coupe longitudinale entre mousse expérimental et champs de contraintes de Von Mises sur le modèle simulé ; (b) et (c) deuxième coupe longitudinale

Nous avons aussi comparé des coupes longitudinales 2D prises aléatoirement entre les modèles (Figure 113). Nous remarquons ainsi que, sur les centres, les mécanismes de déformation sont rigoureusement identiques suivant les paliers de compression observés. Les légères différences de déformations des parois se situent sur les bords, ce qui était tout à fait prévisible. Ici aussi les parois de plus faibles épaisseurs sont souvent les régions les plus fortement contraintes. Les bandes de cisaillement sont données par ces régions qui s'effondrent les premières. Les Figure 113.b et d (cercles rouges) ainsi que d'autres coupes 2D ont montré l'irrégularité des bandes de cisaillement qui n'apparaissent pas forcément sur les parois les plus fines. Comme l'étude en 2D l'a montré, l'hétérogénéité de la microstructure en est la principale cause. D'autre part la déformation des parois ne se fait pas forcément dans la direction de compression. Certaines parois, en plus de s'étirer et de fléchir sous les contraintes, se tordent légèrement, ce qui a pour effet de déformer et de déplacer les cellules latéralement. Sur les coupes 2D ces cellules apparaissent alors plus petites ou plus grandes.

Au final la simulation numérique effectuée est très réaliste et représente bien le comportement de la mousse. D'un point de vue statistique et géométrique nous observons pratiquement les mêmes déformations de la microstructure sur les régions au centre. Les champs de déformations et de contraintes normales calculés sont alors un complément important à

l'étude en permettant de bien caractériser les mécanismes de déformations à l'échelle fine de la microstructure de la mousse.

4.5.2. Etude du VER

Afin de pouvoir comparer les comportements mécaniques de modèles 3D nous avons étudié le volume élémentaire représentatif (VER). Comme vu dans le paragraphe 4.4.1 le VER dépend de la densité relative de la mousse et surtout de l'hétérogénéité de la microstructure. L'étude du VER en 2D donnait un volume contenant pas moins de 300 inclusions dans le cas d'une distribution mono-disperse et très irrégulière ($\alpha=0.3$). Un modèle 3D cylindrique de $300 \times \pi \approx 950$ cellules contiendrait des coupes 2D de 300 cellules soit un volume représentatif du comportement global du modèle de mousse. Nous avons ainsi généré au départ 1000 cellules avec un paramètre $\alpha=0.3$ et une porosité de 60%. Ensuite nous avons extrait plusieurs modèles de microstructures (Figure 114.b). Pour chacun des modèles, une analyse statistique de la distribution des cellules est effectuée.

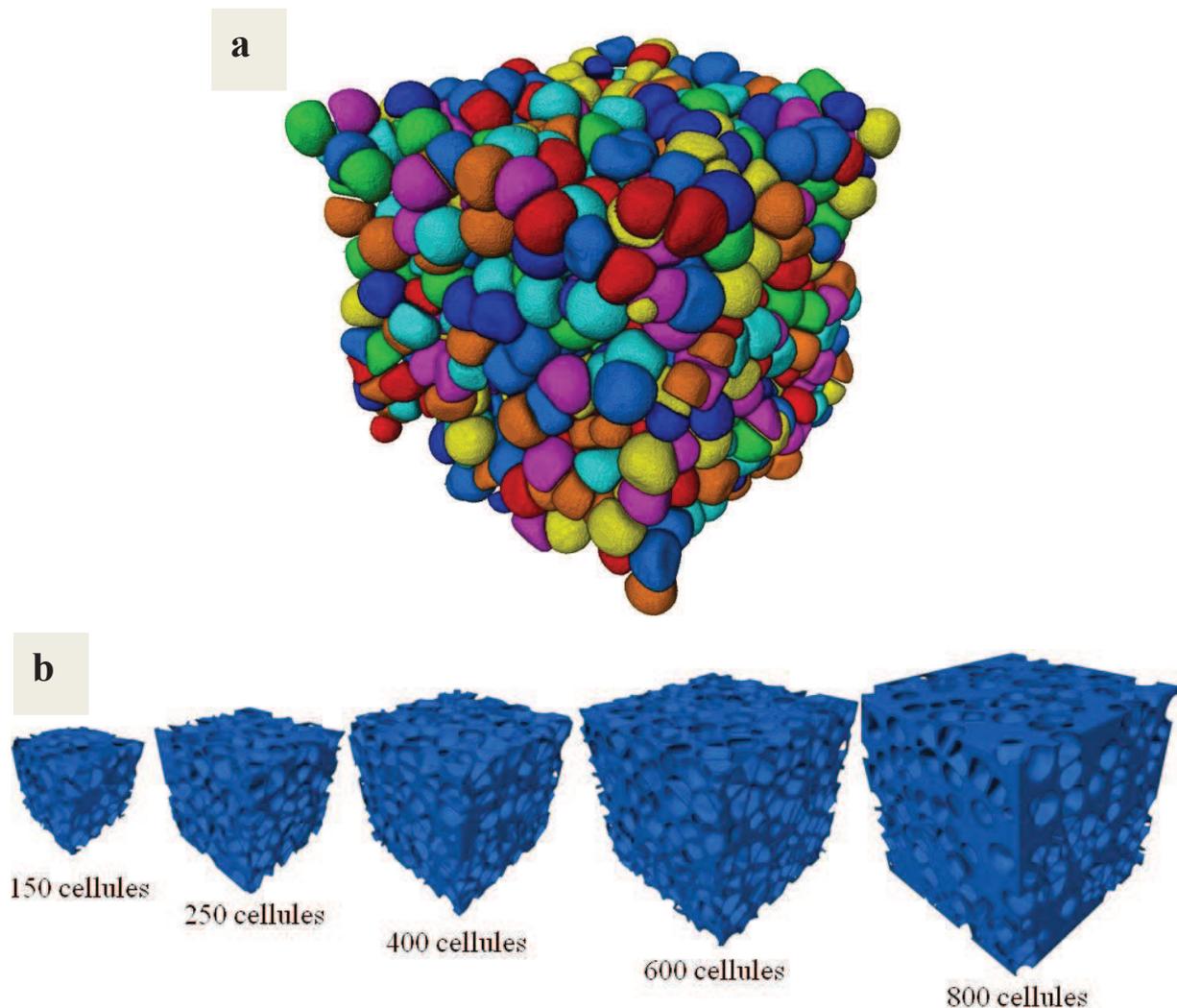


Figure 114 : Etude du volume élémentaire représentatif en 3D : (a) Simulation d'une structure irrégulière à 1000 cellules ; (b) différents modèles extraits

La Figure 115.a donne les distributions du volume des cellules entre les modèles. Le volume moyen des cellules varie de $2.14 \times 10^6 (pix^3)$ pour le premier modèle à 800 cellules à $1.6 \times 10^6 (pix^3)$ pour le dernier modèle à 150 cellules. Les écarts type entre les distributions sont par contre pratiquement identiques. Les porosités varient aussi très peu de 60.3% à 61.3%.

La simulation numérique de ces modèles requière une puissance de calcul assez importante et/ou des temps de calculs très élevés. Le maillage doit être assez fin pour minimiser les erreurs, et en gardant les mêmes densités de maillage entre les modèles on arrive très vite à un nombre d'élément à la limite des capacités de calculs à notre disposition. De ce fait nous avons plutôt utilisé un maillage adaptatif et avons essayé de réduire le nombre d'éléments au minimum. Jusque là nous avons simulé les trois plus petits modèles (150, 300 et 400 cellules). La Figure 115.b donne les résultats des courbes contraintes-déformations obtenus.

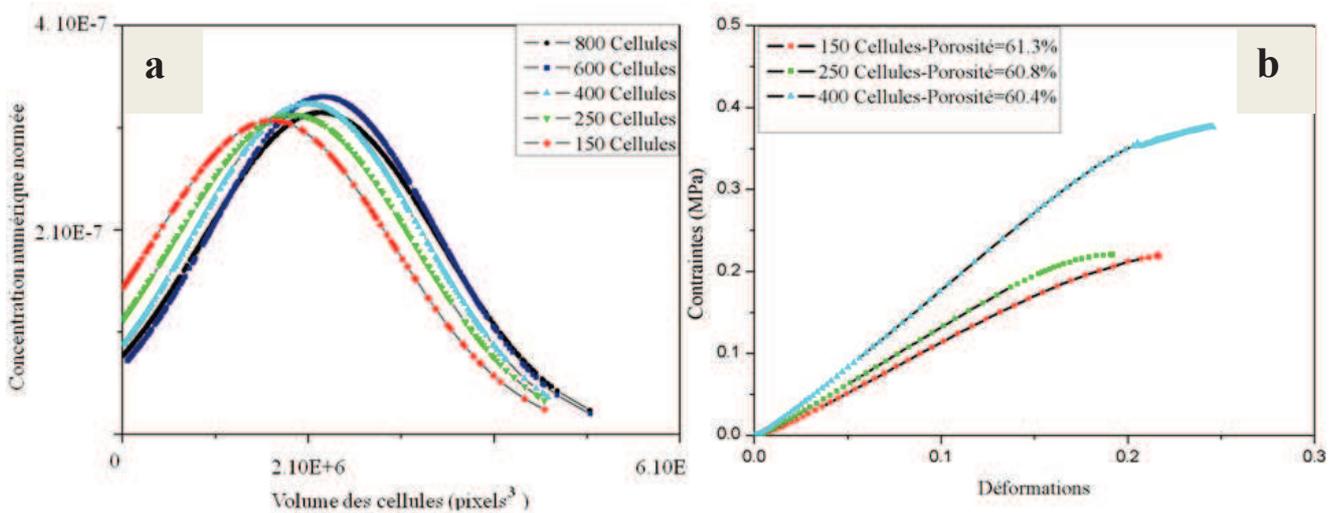
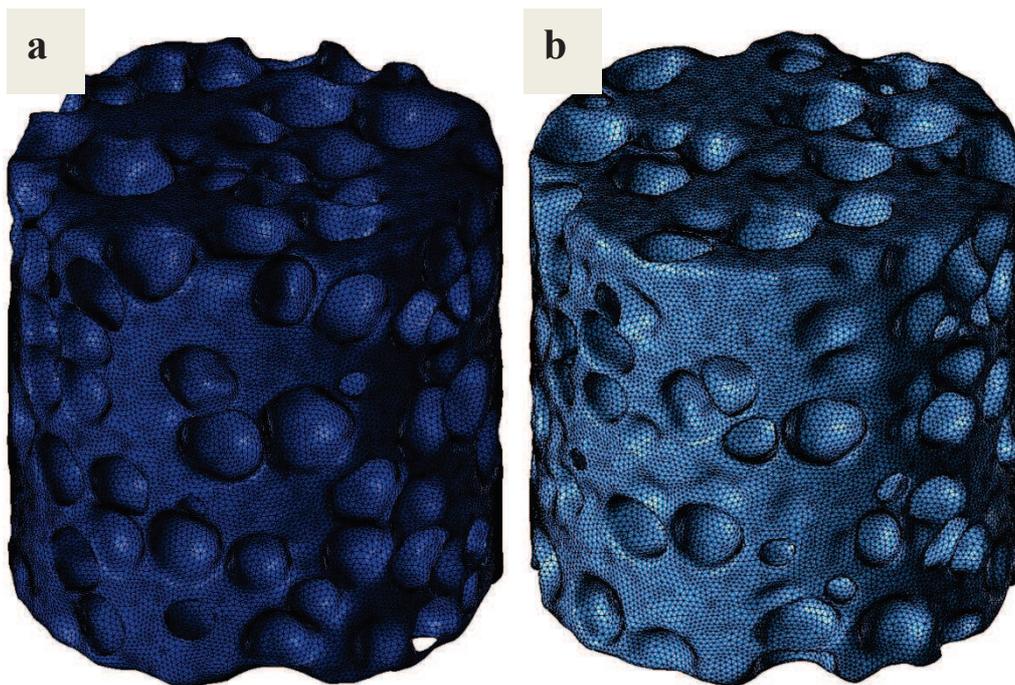


Figure 115 : Distribution de taille des cellules entre les modèles à gauche et premiers résultats de simulations à droite

Les différences dans les réponses peuvent être causées par la finesse des maillages, les petits écarts de porosité entre les modèles ou simplement la variation de la morphologie de la microstructure. Nous n'avons pas encore fixé suffisamment de contraintes pour précisément déterminer le VER. Par ailleurs, d'un point de vue statistique, il y'a peut de différences entre le modèle à 800 cellules et le modèle à 400 cellules. Les porosités et les distributions de volume de cellules sont similaires (Figure 115.a). Nous adopterons par la suite des microstructures à 400 cellules notamment pour comparer nos modèles 3D générés à la microstructure réelle.

4.5.3. Comparaison d'une microstructure réelle issu d'observations tomographiques à un modèle généré à partir des mêmes distributions

Dans cette partie nous avons comparé la microstructure réelle obtenue en tomographie X à un modèle 3D obtenu avec notre générateur de microstructure. Le but est d'une part de valider le réalisme et la cohérence physique des modèles de microstructures générées (voir chapitre 3) et d'autre part de vérifier si la seule connaissance des distributions de taille, de forme et de position des cellules est suffisante pour précisément décrire la morphologie des microstructures de mousse. En effet, les mousses polymères sont souvent caractérisées par une analyse statistique de leur microstructure, donnant différentes distributions sur la géométrie des cellules (ou des parois pour de très grandes porosité). Pour des microstructures très complexes (comme pour les mousses D4 ou NBR 414 au chapitre 2), cette méthode de caractérisation peut ne pas être suffisante. Pour ces mousses il faudrait bien corrélérer entre elles les distributions calculées sur les cellules et sur les parois, tenir compte de l'anisotropie...



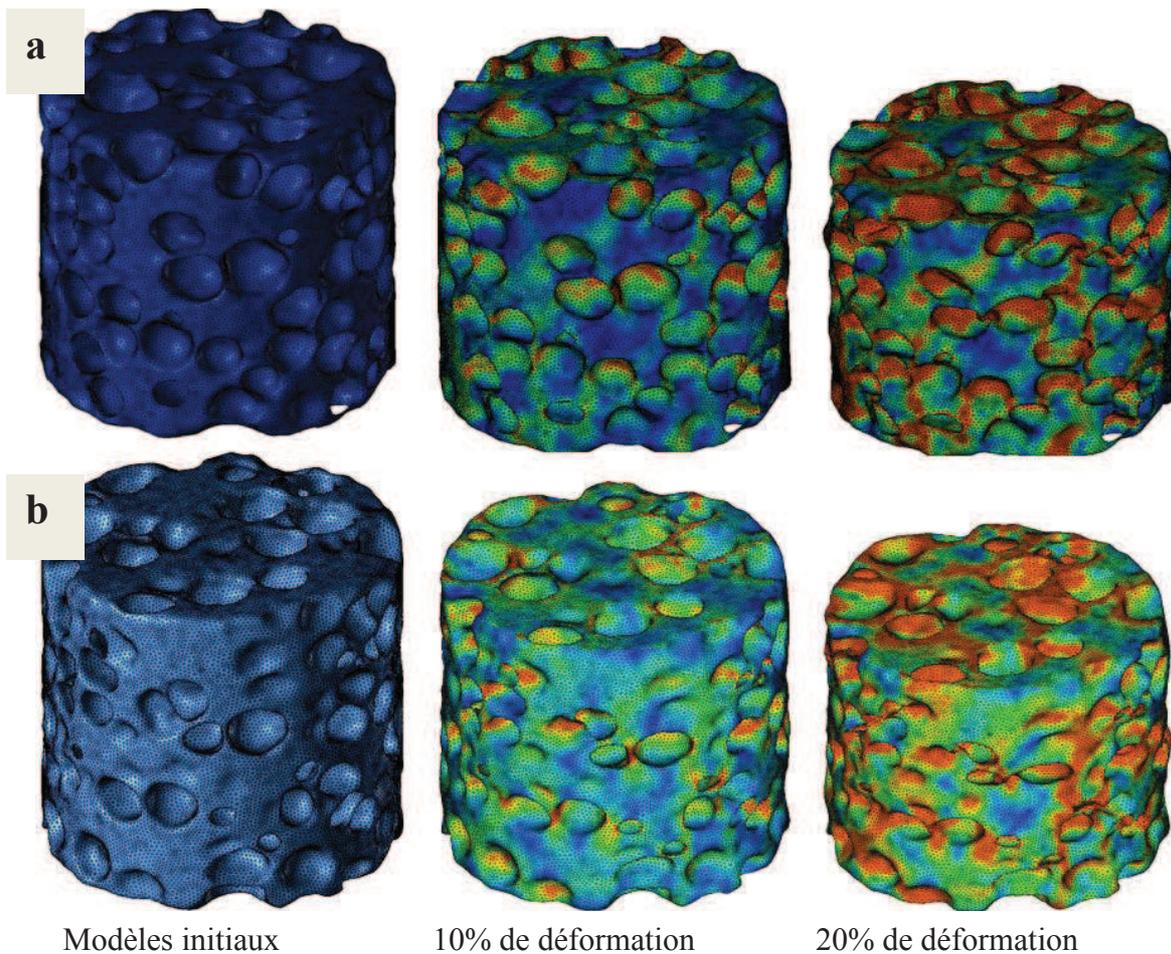


Figure 116 : Comparaison simulation numérique : (a) microstructure réelle reconstruite et maillée ; (b) modèle généré suivant les mêmes paramètres morphologiques

Notre cas d'exemple est une mousse A relativement homogène. La dispersion de taille entre les cellules est de 0.6 et le paramètre alpha calculé est de 0.24. Avec une porosité de 56%, la microstructure est faite de parois pas très étroites permettant de distinguer aisément les contours de chaque cellule, ce qui donne une microstructure reconstruite en tomographie X très fidèle (Figure 116.b). Nous avons généré un modèle 3D à partir des mêmes distributions de tailles et de répartition spatiale des cellules (Figure 116.a). Sachant que la taille et la position des cellules sont fidèlement corrélées, une première analyse statistique donnait une distribution de forme de cellules similaires entre les deux résultats (voir paragraphe 3.4.2). Les deux structures ont pratiquement la même porosité, le même nombre de cellules (400) et les mêmes distributions de taille, de forme et de position des cellules.

Nous avons analysé les réponses mécaniques de la simulation des deux microstructures ainsi que leurs mécanismes de déformations. La Figure 118 compare la contrainte équivalente de Von Mises entre les mousses générées et réelles. L'intensité des contraintes est donnée en niveau de couleur discrète par paliers de 10% (10 niveaux de couleurs allant du bleu au rouge). Nous observons que les régions sont plus ou moins contraintes de la même manière.

Plus les régions se ressemblent et plus l'intensité des contraintes et les déformations de ces régions sont similaires. Le modèle de vraie mousse admet un champ de contraintes maximales plus dense et mieux reparti dans la structure. Ces observations à l'échelle de la microstructure sont confirmées dans les réponses mécaniques des deux modèles (Figure 117).

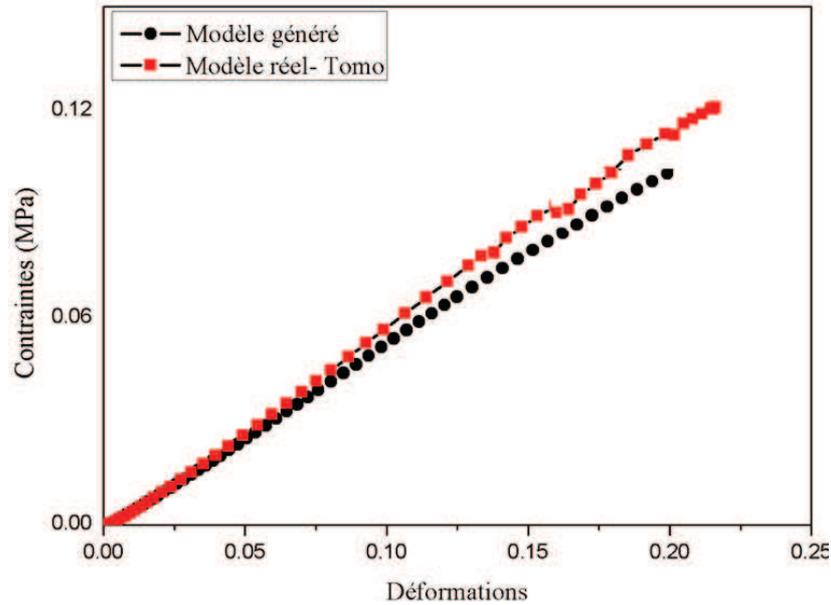


Figure 117 : Comparaison modèle généré et mousse réel : Courbes contrainte-déformation

Les deux courbes ont la même pente à l'origine donnant exactement le même module de Young. Un léger écart de 0.08 MPa est cependant constaté à 20% de déformation soit une erreur relative de 8%. Sachant que la densité de maillage est identique pour les deux structures, cette erreur peut être due soit à la petite différence de porosité (de 56% pour la vraie mousse et 58.5% pour la mousse générée) soit aux différences perceptibles de la morphologie des deux microstructures. La microstructure de la vraie mousse est plus complexe et plus hétérogène. Et les études précédentes ont montré que l'hétérogénéité de la microstructure tend à la rendre plus résistante.

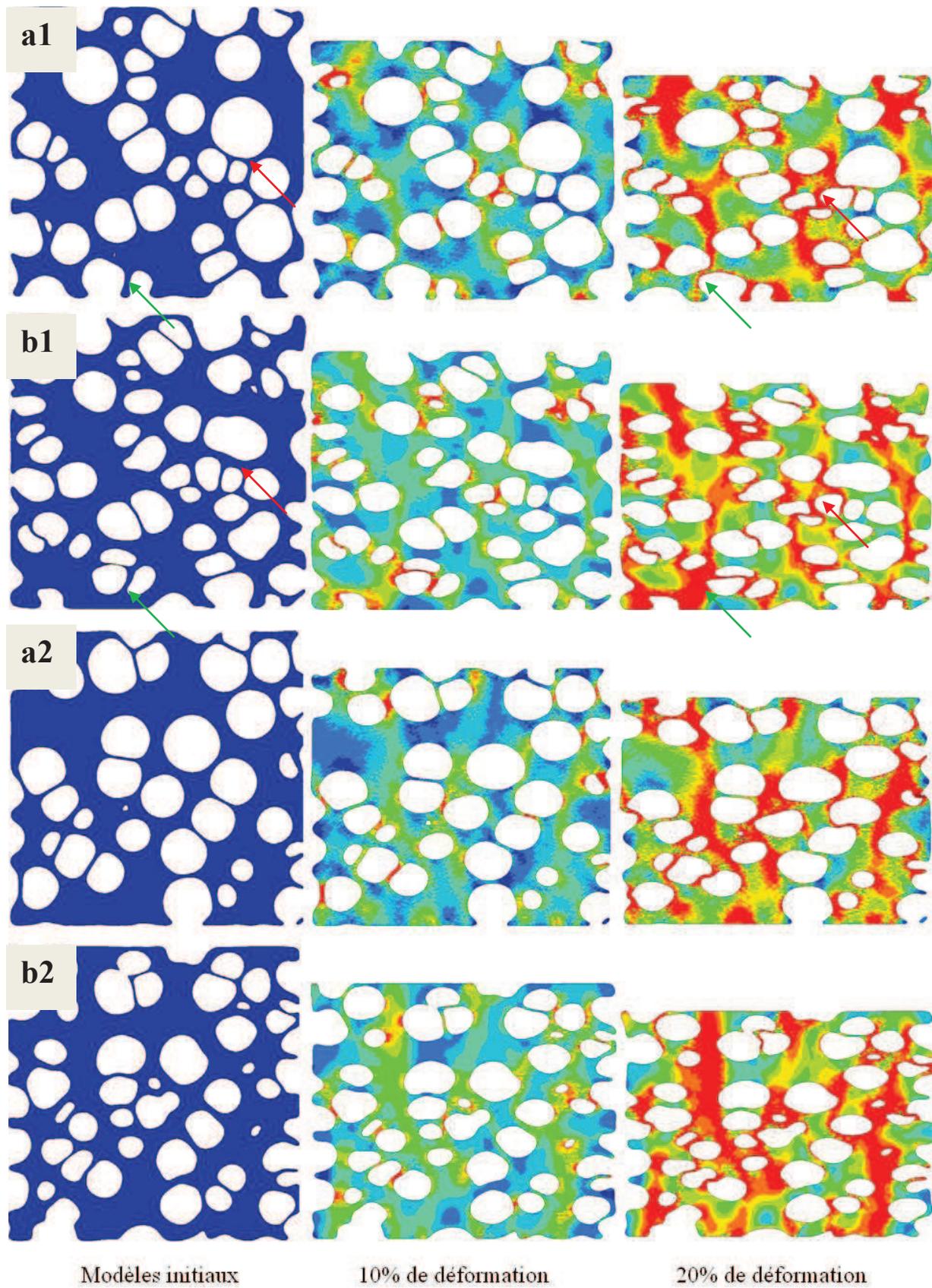


Figure 118 : Champs de contraintes de Von Mises calculés sur deux coupes longitudinales différentes (a1 et b1 suivant XZ, a2 et b2 suivant YZ) des microstructures générés (a) et réelles (b) suivant

différents paliers de déformation. Les flèches montrent de grandes ressemblances (rouges) ou de grandes différences (vertes) entre les deux microstructures

4.5.4. Simulation mousse polyuréthane

En complément de l'étude 3D, nous avons aussi simulé la mousse de polyuréthane. Une loi simple de type élasto-plastique a été utilisée avec un module de Young de 2400 MPa, un coefficient de Poisson de 0.38 et une limite d'élasticité de 40 MPa [35]. Le modèle éléments finis a été créé à partir de la reconstruction d'un échantillon en micro tomographie X (Figure 119). A cause de la très grande porosité de la mousse (95%), le maillage volumique du modèle n'est pas forcément une solution adaptée. Dans la plupart des analyses numériques effectuées une structure de type coque ou poutre est utilisée réduisant considérablement les temps de calculs. Cependant nous avons expressément modélisé la mousse reconstruite par des éléments 3D solides. En effet nous voulions particulièrement analyser et distinguer les mécanismes de déformation des faces et des arêtes. Comme la mousse est fortement poreuse et anisotrope, l'analyse de coupes en 2D donne très peu d'informations. De ce fait nous avons utilisé l'outil développé au paragraphe 2.2.2.6 dans le chapitre 2. Cet outil permet grâce à un ensemble de traitements d'images de séparer la microstructure suivant l'épaisseur des parois.

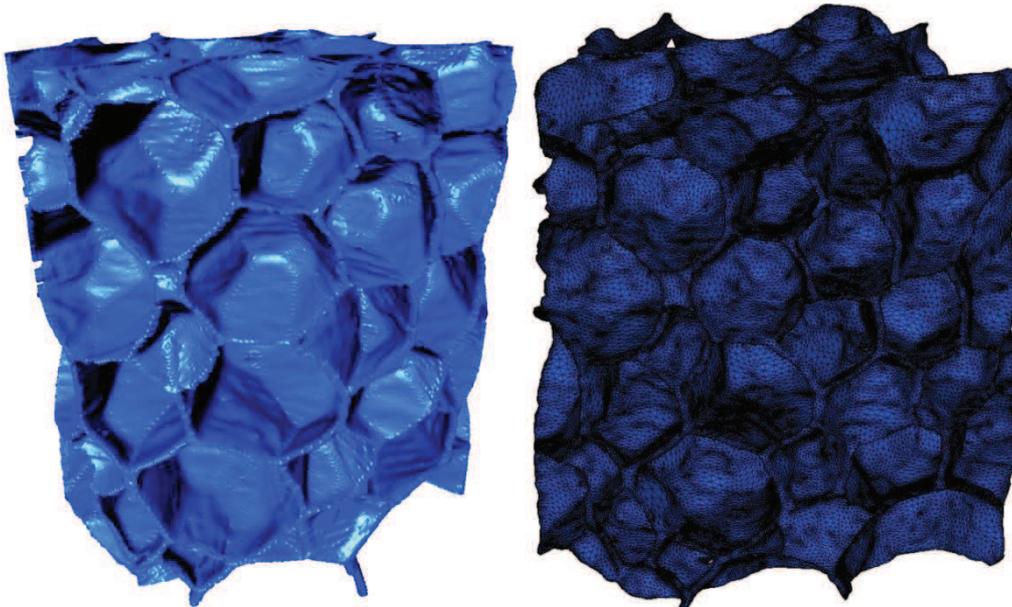


Figure 119 Simulation modèle polyuréthane: (a) microstructure réelle reconstruite; (b) modèle éléments finis maillé en volume

La Figure 120 donne la compression du modèle de polyuréthane suivant différents paliers de déformation allant de 10 à 40%.

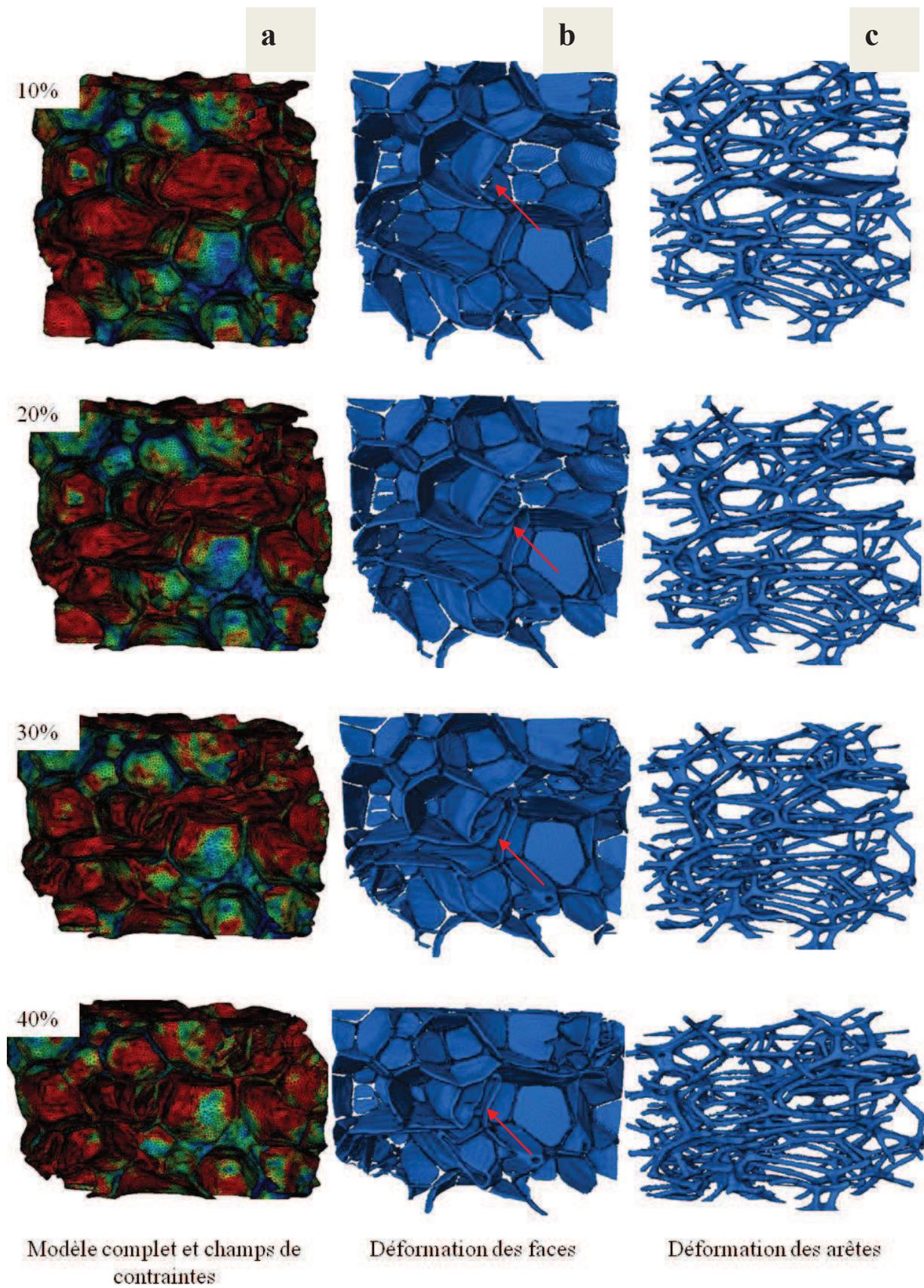


Figure 120 : Simulation EF de la compression d'une mousse polyuréthane. Les flèches suivent la déformation particulière d'une face

La séparation des faces et des arêtes nous a permis ici de mieux identifier les mécanismes de déformations en fonction de la taille des parois. Les régions les plus fortement contraintes sont les premières à se déformer (régions en rouge, (a)). En comparant (b) et (c), nous observons bien que les régions qui se déforment le plus sont les faces qui présentent une plus faible épaisseur de parois que les arêtes. Ce qui confirme encore le fait que les régions de plus faible épaisseur sont souvent les zones les plus contraintes et les premières à se déformer. Les mécanismes de déformation sont l'étirement des faces dont les normales sont orientées dans la direction de charge et surtout le pliage des faces orientées dans les directions transversales. Les arêtes ne se déforment que très légèrement comparativement aux faces et sont le plus souvent étirées. D'autre part nous observons aussi une hétérogénéité dans la déformation. Certaines faces se déforment très vite et fortement alors que d'autres gardent encore une forme plane.

4.5.5. Conclusion

La simulation numérique en 3D a permis de compléter l'étude 2D réalisée. D'abord nous avons pu comparer la compression in situ d'un échantillon de mousse en tomographie X à la simulation numérique de la même microstructure. Jusqu'à 20% de compression, nous avons observé les mêmes mécanismes de déformation des parois qui fléchissent ou s'étirent. Cependant nous avons aussi observé une torsion de certaines parois générant de légers déplacements latéraux des cellules par rapport à la direction de charge. Les petites différences de comportement entre la simulation et l'expérience proviennent :

- Des conditions aux bords qui altèrent la cohérence et le réalisme de la simulation numérique. Pour remédier à ce problème il faut soit étudier et simuler des volumes très grands et au delà du VER, soit adopter des conditions aux limites spécifiques pour rendre compte de l'influence de la microstructure externe aux bordures du volume.
- Du gaz à l'intérieur des cellules. En effet nous n'avons comparé la simulation et l'expérience que jusqu'à 20% de déformation. Pour de plus larges déformations, l'impact du gaz dans les cellules n'est plus négligeable notamment sur la plage de densification.

La prochaine étape de cette étude est une simulation du modèle par approche inverse. Le but étant de trouver les paramètres adéquats (modèle de loi de comportement, conditions aux limites et prise en compte du gaz dans les cellules) pour minimiser l'écart entre la simulation et la situation expérimentale.

Nous avons aussi comparé la microstructure réelle à celle générée avec les mêmes paramètres de distribution de taille et de position des cellules. Les réponses mécaniques ainsi que les champs de contraintes suivant différents paliers de déformation sont très similaires entre les deux cas, ce qui confirme le réalisme des morphologies des microstructures développées intégralement à partir de notre générateur. Par ailleurs, pour des structures pouvant être

fidèlement reconstruites (grâce à la tomographie X, la microscopie électronique à balayage...), l'analyse statistique des différentes distributions de taille, de forme et de position des cellules est entièrement suffisante pour bien caractériser la morphologie de la microstructure. Ces distributions doivent cependant être corrélées entre elles (taille et positions des cellules).

Finalement nous avons étudié les mécanismes de déformation de mousses à très grandes porosité comme le polyuréthane en adoptant un outil numérique développé spécifiquement pour mieux analyser le comportement des microstructures en fonction de la répartition de la masse. La séparation des faces et des arêtes nous a alors permis de mieux identifier les mécanismes de déformations de ces structures.

5. Conclusion générale

5.1. Description, objectifs, résumé de la thèse

Cette thèse décrit l'analyse du comportement mécanique des mousses polymères à cellules fermées à l'échelle de leur microstructure et à l'échelle macroscopique. Le comportement mécanique des mousses polymères dépend étroitement du comportement intrinsèque du matériau solide dont les mousses sont faites et de la morphologie de leur microstructure. Ainsi, dans un premier temps, une caractérisation des propriétés des matériaux de différentes mousses et de la géométrie de leur microstructure a été effectuée.

Les propriétés du matériau massif des mousses sont très différentes du polymère constitutif de base à cause du processus de moussage qui engendre une altération intrinsèque de la nature et des propriétés de la matière polymère. De plus les analyses mécaniques conventionnelles font obstacles lorsqu'elles doivent être réalisées sur les parois des cellules du fait de leurs très petites tailles ou de leurs faibles résistances mécaniques. De ce fait une caractérisation expérimentale a été effectuée à la suite de l'élaboration d'un processus de fabrication spécifique pour obtenir les équivalents massifs des matériaux des mousses.

La caractérisation de la morphologie de la microstructure est étroitement liée à l'échelle de la microstructure considérée. A l'échelle macroscopique la densité relative est le paramètre déterminant alors qu'à l'échelle micro ou mésoscopique la caractérisation de la géométrie de la microstructure est obtenue par une analyse statistique des distributions de la taille, de la forme et de la répartition spatiale des cellules. Cette analyse statistique est effectuée expérimentalement en 2D sur des images MEB traitées et binarisées ou en 3D sur des structures de mousses reconstruites à partir d'observations tomographiques RX.

Dans un second temps ces deux études sont couplées dans une simulation par éléments finis, l'objectif étant de comprendre et de décrire les mécanismes de déformations ainsi que l'impact de la morphologie de la microstructure des mousses dans leur comportement mécanique. Dans ce but plusieurs analyses par éléments finis ont été réalisées. Une de ces analyses a été d'étudier le volume élémentaire représentatif (en 2D et en 3D) à partir duquel les mesures et les simulations effectuées sont significativement représentatives du comportement mécanique de la mousse à l'échelle macroscopique. Une analyse portée en 2D a permis la comparaison méthodique de différentes morphologies de microstructures pour voir séparément les impacts de la porosité, de la distribution de tailles ou de formes des cellules ainsi que de leur répartition spatiale. De plus, dans chacune des analyses effectuées, une étude particulière est portée sur les champs de contraintes et de déformations des modèles à l'échelle fine de la microstructure afin d'identifier et de caractériser les mécanismes de déformations des mousses.

5.2. Apport de la thèse

La principale problématique rencontrée durant l'étude du comportement mécanique des mousses a été la caractérisation précise de la morphologie de la microstructure. Dans ce sens la tomographie X a été une solution adaptée et efficace apportant une description fidèle et réaliste de la structure des matériaux cellulaires. Les modèles 3D sont reconstruits grâce à un ensemble de traitements d'images spécifiques effectué sur les séries de coupes d'images transversales de hautes résolutions de l'échantillon réel de mousse scanné. De plus nous avons développé une plateforme de test mécanique permettant la compression in situ de l'échantillon scanné. La tomographie X nous a alors permis de caractériser expérimentalement la microstructure des mousses polymères et ses mécanismes de déformations.

Par ailleurs l'apport de la tomographie X est restreint par la nature et la morphologie des mousses fabriquées à notre disposition. Or un des principaux objectifs de la thèse a été de découpler et d'analyser les effets de chacun des paramètres morphologiques d'une microstructure de mousses (porosité, distribution de taille, forme, position des cellules...) sur ses propriétés mécaniques. Sachant que le processus de moussage est extrêmement difficile à moduler en fonction de ces paramètres (par exemple fabriquer des mousses de même porosité mais de morphologies différentes) il fallait élaborer un moyen d'obtenir des microstructures diversifiées, paramétrables tout en étant représentatives des structures complexes de vraies mousses.

Nous avons développé un générateur paramétrable de microstructures cellulaires en 2D et en 3D. Ce générateur est basé sur un modèle capable de décrire physiquement la formation des structures cellulaires lors de la fabrication des mousses polymères. Le modèle physique est ponctué par un simulateur numérique permettant la génération et le suivi de l'évolution de microstructures irrégulières de la première étape de nucléation des cellules jusqu'à l'évolution et la maturation vers la structure finale. L'objectif premier était de pouvoir générer à souhait différents types de géométries de microstructures cohérentes avec les microstructures réelles observées expérimentalement. Les morphologies des microstructures générées balayaient un très large spectre de porosité allant de 20% à plus de 90%, différentes tailles de cellules (structure mono ou poly disperse), des formes de cellules allant des formes simples sphériques à des formes plus géométriques (écume de bulles de savons...) ainsi qu'une répartition régulière ou irrégulière paramétrable. D'autre part le générateur permet de relier les morphologies de microstructures générées aux différents paramètres de synthèse et aux caractéristiques du mélange polymère dans le processus de moussage donnant ainsi un aperçu des impacts individuels de ces paramètres sur la structure de la mousse fabriquée. De plus les topologies des microstructures étudiées jusque là étaient à très grandes porosités et souvent modélisées par des représentations purement géométriques en adoptant les modèles de Kelvin pour les structures réguliers, les cellules de Voronoi ou d'autres algorithmes de distribution de sphères rigides pour les structures aléatoires. Ce générateur apporte ainsi un cadre d'étude tout à fait

nouveau, élargissant ainsi considérablement le domaine d'étude des microstructures des mousses.

Finalement nous avons disposé d'un très large spectre de morphologies de microstructures à la fois issues d'observations réelles en tomographie RX et générées virtuellement. Ces microstructures ont alors été couplées aux lois de comportement de matériaux déterminées expérimentalement dans une analyse par éléments finis dans le but d'identifier les mécanismes de déformations ainsi que l'impact de la morphologie de la microstructure des mousses dans leur comportement mécanique.

5.3. Résultats de simulation

L'apport de la simulation par éléments finis nous a permis de déterminer les réponses mécaniques de différentes morphologies de mousses en calculant les champs de contraintes et de déformations des modèles de mousse polymères à la morphologie microstructurale très complexe sous des contraintes mécaniques de compression simple. Dans un premier temps une étude préalable du volume élémentaire représentatif (VER) a été effectuée en 2D. En fonction de l'hétérogénéité de la microstructure le volume de la microstructure doit contenir un nombre d'inclusions minimum pour que les mesures et les simulations effectuées soient significativement représentatives du comportement de la mousse à l'échelle macroscopique. Ensuite les impacts découplés de la porosité, de la distribution de taille ainsi que de la répartition spatiale des cellules ont été étudiés sur des microstructures sphériquement paramétrées. Les analyses numériques ont confirmé l'impact de la densité relative sur le comportement mécanique de matériaux cellulaires dans le domaine linéaire et plastique. Les modèles de lois de comportement donnant le module de Young en fonction uniquement de la densité relative de la mousse sont cohérents même s'ils concernent principalement des modèles de structure régulières de type cubique ou Kelvin. Cependant la porosité n'est pas le seul paramètre ayant une influence sur le comportement. En grande déformation, la dispersion de taille et surtout la répartition des cellules caractérisent l'hétérogénéité géométrique de la mousse qui essentiellement conditionne le profil de la réponse mécanique macroscopique de la microstructure et aussi les mécanismes de déformation à l'échelle microscopique. Ces observations ne sont pratiquement jamais tenues en compte dans la caractérisation du comportement des mousses où les tentatives de modélisation adoptent le plus souvent des structures très peu fidèles à la morphologie de la microstructure (réguliers, Voronoi...) et/ ou se cantonnent dans un domaine d'étude linéaire élastique.

De plus, la simulation numérique en 3D comparée et couplée aux analyses in situ effectuées en tomographie X nous a permis d'une part de précisément identifier les champs de contraintes ainsi que les mécanismes de déformation des mousses et d'autre part de valider l'apport incontournable de l'analyse numérique. Ainsi, dans le comportement mécanique des mousses à l'échelle microscopique, différents mécanismes de déformation comme la flexion, la compression, l'étirement élastique des arêtes et des parois mais aussi parfois des

phénomènes d'instabilité élastique et plastique, des torsions de parois... ont été confirmés. Au final les principaux objectifs fixés en début de thèse ont été remplis.

5.4. Extension et perspectives

La simulation numérique des microstructures a quelque fois engendré des résultats incohérents. Certaines différences irréductibles ont été observées entre la simulation numérique et le comportement réel de mousses. Entre la reconstruction de la microstructure réelle tomographiée, le maillage par éléments finis du modèle, le choix de la loi de comportement adéquate au modèle de simulation numérique, différentes sources d'erreurs peuvent être engendrées. Dans le but de minimiser ces erreurs de modélisation, l'adoption d'une méthode d'identification par approche inverse est nécessaire. Ainsi la prochaine étape de l'étude consiste à minutieusement déterminer tous les paramètres sensibles à la réponse mécanique des microstructures simulées. La prise en compte et la modélisation du gaz dans les cellules est l'un des premiers facteurs à inclure dans cette étude. En annexes nous avons présenté quelques études et simulations réalisées en 2D et en 3D dans ce sens. Bien que cela complexifie grandement l'analyse numérique, le gaz dans les cellules impacte le comportement en grandes déformations et surtout en régime dynamique. D'ailleurs une étude du comportement des mousses peut être menée en régime dynamique sachant que beaucoup de mousses polymères sont fabriquées dans un but d'absorption de chocs ou d'impacts.

Une autre étude importante à effectuer concerne la comparaison entre les modèles 3D et des coupes 2D de ces modèles. Ceci afin de distinguer les similitudes et les différences entre les deux cas d'études et de vérifier le domaine de définition et la pertinence des études réalisées en 2D. La finalité principale est de bien définir le domaine de définition dans lequel les études réalisées en 2D pour étudier l'impact de la morphologie des microstructures sont vérifiées et cohérentes. Cela permettra aussi de réduire les temps de calcul des simulations numériques. En annexes nous avons comparé la simulation d'un modèle 3D à des coupes longitudinales 2D. L'idéal est ainsi de simuler et de comparer des modèles 2D et 3D tous au-delà du VER. Donc cette étude devra se faire après avoir complètement déterminé les VER 3D. Et ensuite s'assurer qu'il contient assez de cellules pour donner des coupes 2D à 300 cellules et donc au delà du VER 2D.

Annexes A : Prise en compte du gaz dans les cellules

La modélisation du gaz à l'intérieur des cellules peut être effectuée de deux façons différentes. Le logiciel de calcul éléments finis MARC offre la possibilité de prendre en compte la pression d'un gaz contenu dans un certain nombre d'inclusions du modèle E.F. Le nombre d'inclusions est cependant limité à 100. De plus, dans ce premier type de modélisation, il est nécessaire de définir les contours des cellules dans les modèles de microstructures. Ce modèle doit ainsi contenir à la fois le maillage et le surfacage donnant les contours de la microstructure. Ensuite il faut appliquer la pression individuellement sur chacune des cellules en portant attention à la direction de la charge appliquée. Il n'y a pas de possibilité d'automatisation de cette procédure.

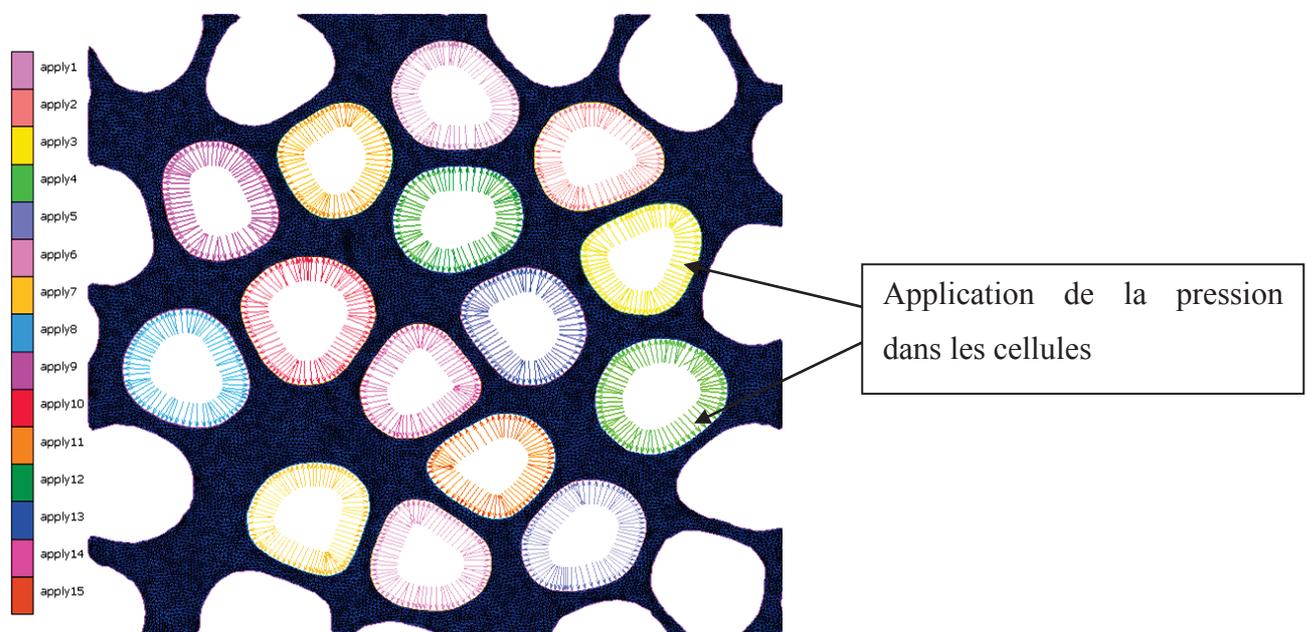


Figure 121 : Simulation numérique : Modélisation du gaz dans la microstructure

Nous avons réalisé cette modélisation en 2D. La Figure 121 montre le champ de pression appliquée dans chaque cellule. Pour chaque cellule, le gaz est modélisé comme un gaz parfait avec une quantité de matière fixe et une pression initiale de 1 atm. Comme les cellules sont fermées, l'équation d'équilibre des gaz parfait donne la pression suivant le volume des cellules à chaque instant de leur compression. La Figure 122 compare les courbes contrainte-déformation des modèles avec et sans modélisation du gaz. La simulation est très reproductible. Une faible pression initiale dans les cellules n'a que peu d'effets sur la réponse mécanique. Par contre un gaz à la pression ambiante donne un comportement plus résistant dans le domaine plastique. Le modèle a une porosité initiale de 60% et à la densification les courbes se rejoignent. Le profil au voisinage de la densification n'est cependant que très peu

modifié et on peut supposer que l'hétérogénéité de la microstructure impacte de la même manière la microstructure avec ou sans prise en compte du gaz dans les cellules.

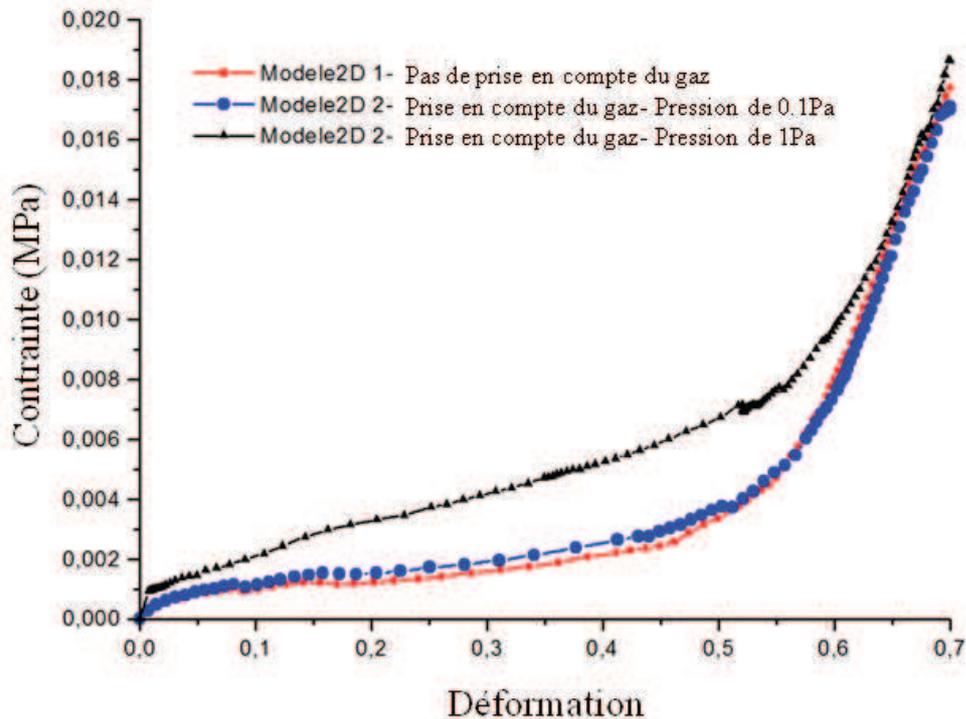


Figure 122 : Impact de la prise en compte du gaz

Cependant une étude globale doit être menée au VER pour confirmer ces observations. Ce premier type de modélisation bien que très réaliste ne peut malheureusement pas être mené à plus grande échelle pour les raisons citées précédemment.

Dans le deuxième type de modélisation, nous modélisons le gaz comme un solide à part entière. Celui-ci est maillé séparément et un modèle cohérent de loi de comportement doit être utilisé (Figure 123). Pour l'instant, nous n'avons pas encore simulé et analysé ce type de modèle, mais à long terme celui-ci semble être une solution plus adaptée.

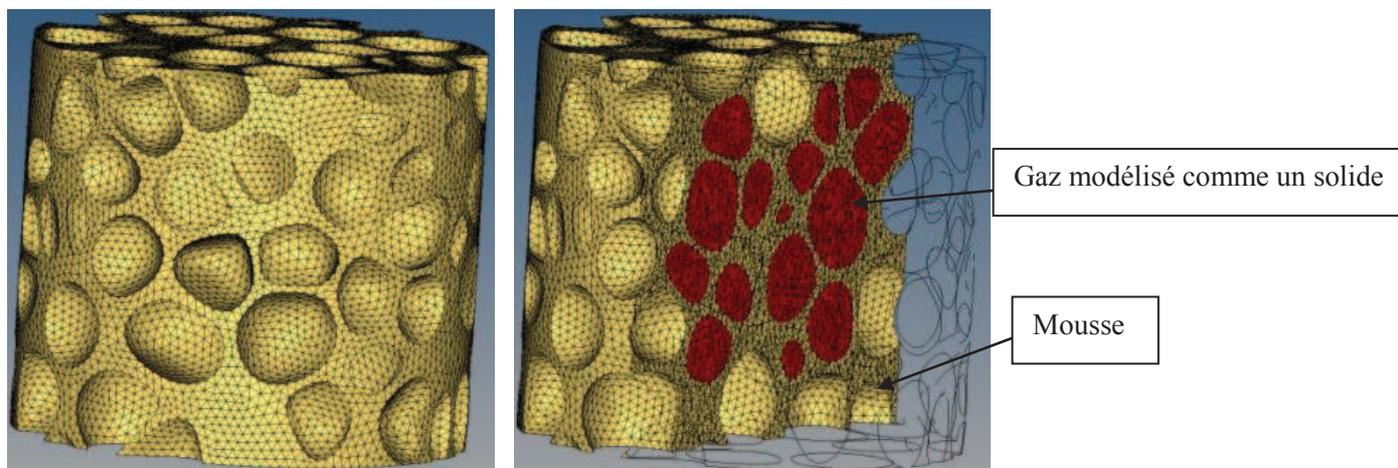


Figure 123 : Simulation numérique : Modélisation du gaz comme un solide

Annexes B : Comparaison simulation modèle 3D et 2D

Nous avons comparé la simulation de la compression d'un modèle 3D à celle de coupes longitudinales 2D à partir du même modèle. Le modèle 3D est un modèle généré d'une porosité de 60% contenant environ 200 cellules. Les coupes 2D très en deçà du VER ont 63% de porosité (Figure 124).

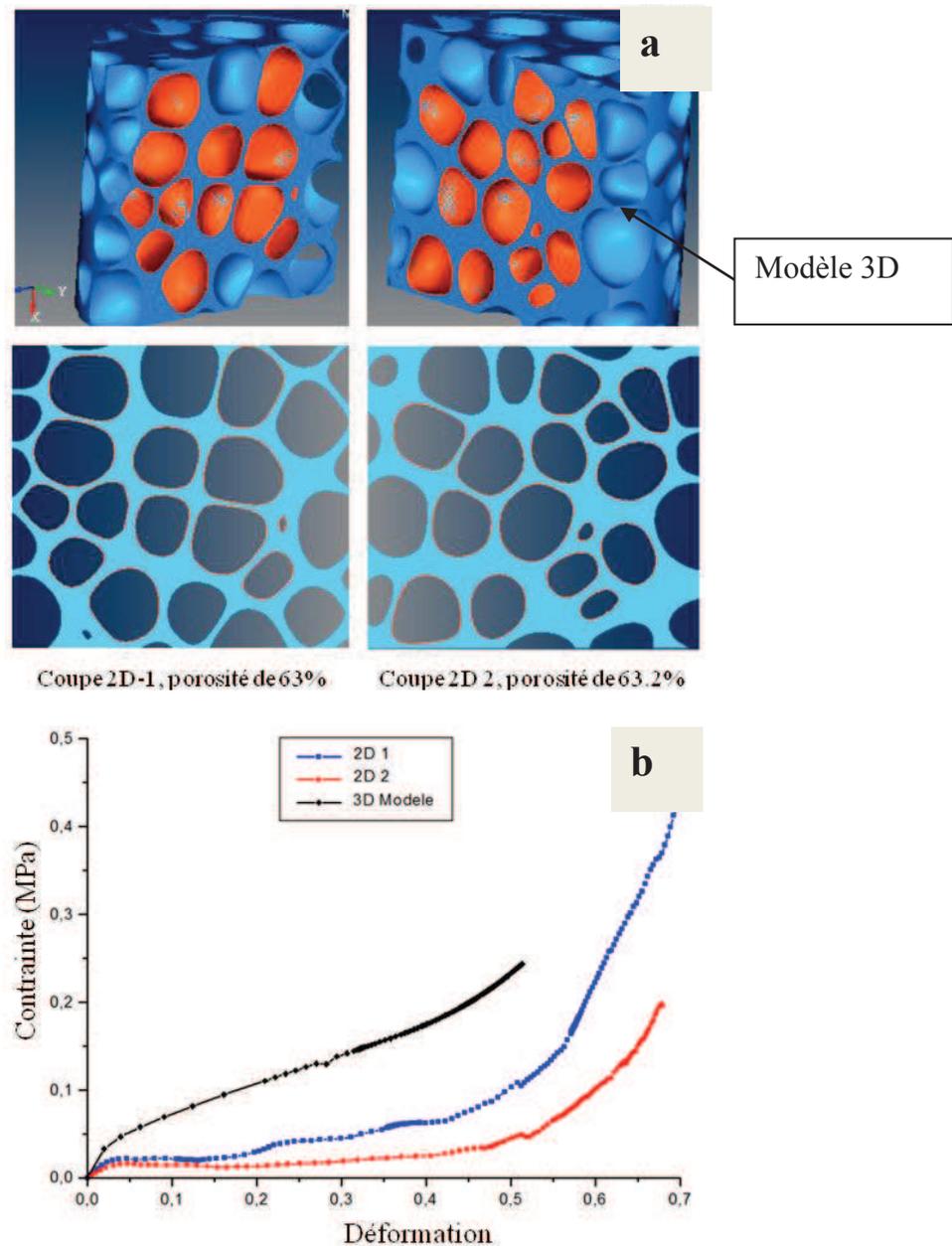


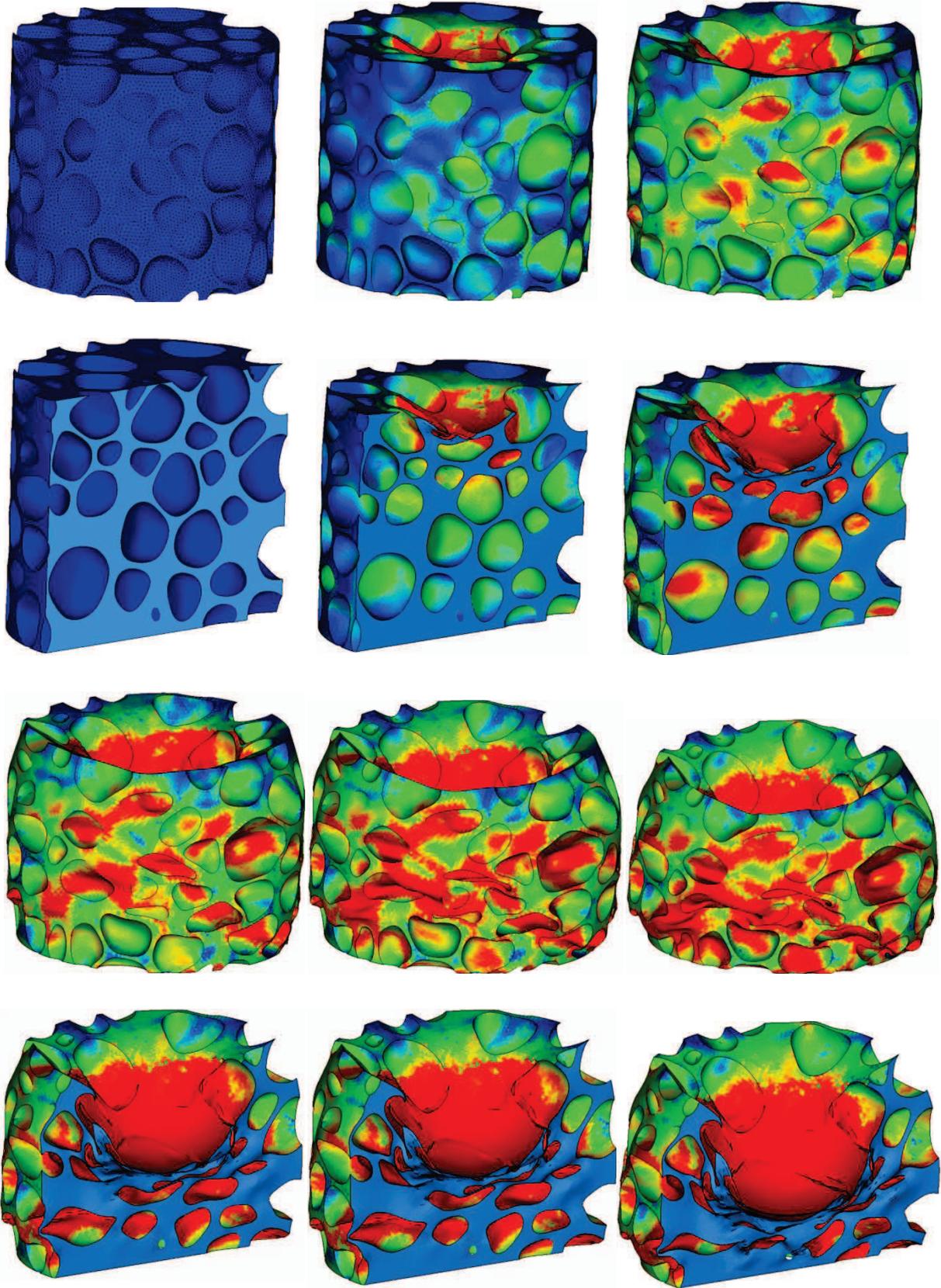
Figure 124 : Comparaison modèle 3D et coupes longitudinales 2D (a) et courbes contrainte-déformation (b)

Les trois réponses sont très différentes. Le modèle 3D a un comportement plus résistant que les modèles 2D. Ceci peut être expliqué par la différence de porosité (de 60% pour la microstructure en 3D, de 63% et 63.2% pour les coupes 2D).

Les coupes 2D ont cependant la même porosité. La différence de comportement observée vient donc de la morphologie de la microstructure. En effet ces coupes n'ont pas assez de cellules pour être suffisamment représentatives de la mousse dans son comportement global. Une mesure statistique des paramètres caractéristiques de la microstructure (répartition spatiale des cellules, taille moyenne et dispersion de taille des cellules...) confirme très vite les différences géométriques entre ces modèles. Ainsi il est très important de mener l'étude au VER à la fois pour la 2D et la 3D. Déjà un modèle 3D de forme cylindrique devra contenir au minimum des centaines de cellules (entre 900 et 1000) pour donner des coupes suffisamment grandes de 300 cellules au VER en 2D. La simulation d'un tel volume en 3D sera donc très difficile à effectuer et il faudra disposer de suffisamment de puissance de calcul pour pouvoir précisément comparer les réponses mécaniques.

Annexes C : Simulation d'une indentation d'un modèle 3D

Nous avons simulé une indentation d'un modèle de mousse en 3D. Cette simulation devait être réalisée en dynamique pour étudier l'influence de la vitesse de déformation, le comportement mécanique lors de chocs ou d'impacts à grandes vitesses. A ce jour les séries de tests ont seulement été en statiques. Ci-dessous les résultats de simulation obtenus pour une pénétration d'un indenteur sphérique de 70%.



Références

- [1] L. J. Gibson and M. F. Ashby, “Cellular solids-structural and properties,” *Cambridge Univ. Press. Cambridge, UK*, 1997.
- [2] N. Mills, *Polymer foams handbook: engineering and biomechanics applications and design guide*. Butterworth-Heinemann, 2007.
- [3] S.-T. Lee and N. S. Ramesh, *Polymeric foams: mechanisms and materials*. CRC press, 2004.
- [4] J.-P. Baillon and J.-M. Dorlot, *Des mat{é}riaux*. Presses inter Polytechnique, 2000.
- [5] F. J. Dwyer, L. M. Zwolinski, and K. M. Thrun, “Extruding thermoplastic foams with a non-CFC blowing agent,” *Plast. Eng.*, pp. 29–32, 1990.
- [6] K. C. Frisch and J. H. Saunders, *Plastic foams*, vol. 1. M. Dekker, 1972.
- [7] E. K. R. Lee, “Novel manufacturing processes for polymer bead foams,” University of Toronto, 2010.
- [8] G. S. Park and J. Crank, “Diffusion in polymers,” 1968.
- [9] R. Gendron, *Thermoplastic foam processing: principles and development*. CRC press, 2004.
- [10] H. Sheth and L. Chen, “Initial Stages of Bubble Growth during Foaming Process.” Trexel, Inc, 2005.
- [11] J. H.-P. Han, “Bubble Nucleation in Polymeric Liquids,” Polytechnic Institute of New York, 1988.
- [12] Lord Rayleigh, “VIII. On the pressure developed in a liquid during the collapse of a spherical cavity,” *London, Edinburgh, Dublin Philos. Mag. J. Sci.*, vol. 34, no. 200, pp. 94–98, 1917.
- [13] cf eg P. S. Epstein and M. S. Plesset, “On the Stability of Gas Bubbles in Liquid-Gas Solutions,” *J. Chem. Phys.*, vol. 18, no. 11, pp. 1505–1509, 1950.

- [14] L. E. Scriven, "On the dynamics of phase growth," *Chem. Eng. Sci.*, vol. 10, no. 1, pp. 1–13, 1959.
- [15] M. A. Shafi, J. G. Lee, and R. W. Flumerfelt, "Prediction of cellular structure in free expansion polymer foam processing," *Polym. Eng. Sci.*, vol. 36, no. 14, pp. 1950–1959, 1996.
- [16] M. Amon and C. D. Denson, "A study of the dynamics of foam growth: analysis of the growth of closely spaced spherical bubbles," *Polym. Eng. Sci.*, vol. 24, no. 13, pp. 1026–1034, 1984.
- [17] J. B. Joshi, U. Parasu Veera, C. V Prasad, D. V Phanikumar, N. S. Deshpande, S. S. Thakre, and B. N. Thorat, "Gas hold-up structure in bubble column reactors," *PINSA-A*, vol. 64, no. 4, pp. 441–567, 1998.
- [18] J. J. Feng and C. a. Bertelo, "Prediction of bubble growth and size distribution in polymer foaming based on a new heterogeneous nucleation model," *J. Rheol. (N. Y. N. Y.)*, vol. 48, no. 2, p. 439, 2004.
- [19] R. Pop-Iliev, F. Liu, G. Liu, and C. B. Park, "Rotational foam molding of polypropylene with control of melt strength," *Adv. Polym. Technol.*, vol. 22, no. 4, pp. 280–296, 2003.
- [20] S. Youssef, E. Maire, and R. Gaertner, "Finite element modelling of the actual structure of cellular materials determined by X-ray tomography," *Acta Mater.*, vol. 53, no. 3, pp. 719–730, 2005.
- [21] D. Weaire and S. Hutzler, "The physics of foams. Clarendon." Oxford, 1999.
- [22] Kraynik and D. Reinelt, "Foam microrheology: from honeycombs to random foams," *15th Annu. Meet. Polym. Process. ...*, pp. 1–20, 1999.
- [23] F. J. Almgren and J. E. Taylor, "The geometry of soap films and soap bubbles," *Sci. Am.*, vol. 235, pp. 82–93, 1976.
- [24] R. E. Williams, "Space-filling polyhedron: its relation to aggregates of soap bubbles, plant cells, and metal crystallites," *Science (80-.)*, vol. 161, no. 3838, pp. 276–277, 1968.

- [25] J. a. Elliott, a. H. Windle, J. R. Hobdell, G. Eeckhaut, R. J. Oldman, W. Ludwig, E. Boller, P. Cloetens, and J. Baruchel, “In-situ deformation of an open-cell flexible polyurethane foam characterised by 3D computed microtomography,” *J. Mater. Sci.*, vol. 37, no. 8, pp. 1547–1555, 2002.
- [26] M. D. Montminy, A. R. Tannenbaum, and C. W. MacOsco, “The 3D structure of real polymer foams,” *J. Colloid Interface Sci.*, vol. 280, no. 1, pp. 202–211, 2004.
- [27] N. J. Mills, *Polymer foams handbook: engineering and biomechanics applications and design guide*, no. April. 2007.
- [28] W. E. Warren and A. M. Kraynik, “Linear elastic behavior of a low-density Kelvin foam with open cells,” *J. Appl. Mech.*, vol. 64, no. 4, pp. 787–794, 1997.
- [29] D. Weaire and R. Phelan, “A counter-example to Kelvin’s conjecture on minimal surfaces,” *Philos. Mag. Lett.*, vol. 69, no. 2, pp. 107–110, 1994.
- [30] R. Gabbrielli, “A new counter-example to Kelvin’s conjecture on minimal surfaces,” vol. 89, no. 8, pp. 483–491, 2009.
- [31] “Wiki1.” .
- [32] V. P. Valuyskikh, “Computer simulation of structure and calculation of physico-mechanical characteristics and foamed plastics. III, Study of rigid foams,” *Cell. Polym.*, vol. 9, no. 2, pp. 109–117, 1990.
- [33] a. P. Roberts and E. J. Garboczi, “Elastic moduli of model random three-dimensional closed-cell cellular solids,” *Acta Mater.*, vol. 49, no. 2, pp. 189–197, 2001.
- [34] S. Ribeiro-Ayeh, *Finite element modelling of the mechanics of solid foam materials*. 2005.
- [35] Y. Souhail, “Etude par tomographie X et modélisation par éléments finis du comportement mécanique des mousses solides,” 2004.
- [36] T. Z. Imagerie, “esolution par tomographie aux rayons X: application ` a la tomographie locale en science des mat ´ eriaux To cite this version :,” 2013.

- [37] S. P. Timoshenko and J. N. Goodier, "Theory of elasticity," *Int. J. Bulk Solids Storage Silos*, vol. 1, no. 4, 2014.
- [38] A. N. Gent and K. C. Rusch, "Permeability of open-cell foamed materials," *J. Cell. Plast.*, vol. 2, no. 1, pp. 46–51, 1966.
- [39] N. C. Hilyard and P. Collier, "A structural model for air flow in flexible PUR foams," *Cell. Polym.*, vol. 6, no. 6, pp. 9–26, 1987.
- [40] N. J. Mills and G. Lyn, "Modelling of air flow in impacted polyurethane foam," *Cell. Polym.*, vol. 21, no. 5, pp. 343–367, 2002.
- [41] N. J. Mills, "The wet Kelvin model for air flow through open-cell polyurethane foams," *J. Mater. Sci.*, vol. 40, no. 22, pp. 5845–5851, 2005.
- [42] R. E. Skochdopole and L. C. Rubens, "Physical property modifications of low-density polyethylene foams," *J. Cell. Plast.*, vol. 1, no. 1, pp. 91–96, 1965.
- [43] B. Song, W. W. Chen, S. Dou, N. a. Winfree, and J. H. Kang, "Strain-rate effects on elastic and early cell-collapse responses of a polystyrene foam," *Int. J. Impact Eng.*, vol. 31, no. 5, pp. 509–521, 2005.
- [44] M. D. Isaac and I. Ori, "Engineering mechanics of composite materials." Oxford University Press Oxford, UK, 1994.
- [45] "Characterisation and Modelling of Transversely Isotropic Flexible Viscoelastic Foam," 2013.
- [46] A. N. Gent and A. G. Thomas, "The deformation of foamed elastic materials," *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 1, no. 1, pp. 107–113, 1959.
- [47] L. J. Gibson, "Modelling the mechanical behavior of cellular materials," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 110, pp. 1–36, 1989.
- [48] A. G. Dementjev and O. G. Tarakanov, "Influence of the cellular structure of foams on their mechanical properties (in Russian)," *Mech. Polym.*, vol. 4, no. 1, pp. 594–602, 1970.

- [49] H. X. Zhu, J. F. Knott, and N. J. Mills, “Analysis of the elastic properties of open-cell foams with tetrakaidecahedral cells,” *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 45, no. 3, pp. 319–343, 1997.
- [50] a. E. Simone and L. J. Gibson, “Effects of solid distribution on the stiffness and strength of metallic foams,” *Acta Mater.*, vol. 46, no. 6, pp. 2139–2150, 1998.
- [51] L. Reimer, “Scanning electron microscopy: physics of image formation and microanalysis,” *Meas. Sci. Technol.*, vol. 11, no. 12, p. 1826, 2000.
- [52] J. Goldstein, D. E. Newbury, P. Echlin, D. C. Joy, A. D. Romig Jr, C. E. Lyman, C. Fiori, and E. Lifshin, *Scanning electron microscopy and X-ray microanalysis: a text for biologists, materials scientists, and geologists*. Springer Science & Business Media, 2012.
- [53] “dynamic mechanical properties of SBR.pdf.” .
- [54] G. Voronoï, “Nouvelles applications des param{è}tres continus {à} la th{é}orie des formes quadratiques. Deuxi{è}me m{é}moire. Recherches sur les parall{é}llo{è}dres primitifs,” 1908.
- [55] W. Yamsaengsung and N. Sombatsompop, “Effect of chemical blowing agent on cell structure and mechanical properties of EPDM foam, and peel strength and thermal conductivity of wood/NR composite-EPDM foam laminates,” *Compos. Part B Eng.*, vol. 40, no. 7, pp. 594–600, 2009.
- [56] M. A. Hasan, A. Kim, and H.-J. Lee, “Measuring the cell wall mechanical properties of Al-alloy foams using the nanoindentation method,” *Compos. Struct.*, vol. 83, no. 2, pp. 180–188, 2008.
- [57] V. Králík and J. Němeček, “Comparison of nanoindentation techniques for local mechanical quantification of aluminium alloy,” *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 618, pp. 118–128, 2014.
- [58] J. Němeček, V. Králík, and J. Vond\vrejc, “A two-scale micromechanical model for aluminium foam based on results from nanoindentation,” *Comput. Struct.*, vol. 128, pp. 136–145, 2013.

- [59] T. C. Chu, W. F. Ranson, M. a Sutton, and W. H. Peters, “Applications of Digital Image Correlation Techniques to Experimental Mechanics,” *Exp. Mech.*, vol. 25, no. September, pp. 232–244, 1985.
- [60] F. Hild, “Mesure de champs de déplacement par corrélation d’images et applications en mécanique des solides,” pp. 5–71, 2003.
- [61] G. Cassagnou and M. Utilisateur, “Sommaire,” vol. 33, no. 0.
- [62] R. Nicolas, “T Raitement D ’ Images C Onvolution Et Restauration D ’ Images,” no. 33, 2000.
- [63] “Segmentation d ’ images : principes Détection de vallées : Minimisation de variance :”
- [64] “Détection de contours,” pp. 1–17.
- [65] M. D. Abràmoff, P. J. Magalhães, and S. J. Ram, “Image processing with imageJ,” *Biophotonics Int.*, vol. 11, no. 7, pp. 36–41, 2004.
- [66] T. . Collins, “ImageJ for microscopy. Biotechniques, 43 (1), 25-30.,” *Biotechniques*, vol. 43, no. 1, pp. 25–30, 2007.
- [67] C. Vachier, C. Vachier, and E. De, “Extraction de caract ’ eristiques , segmentation d ’ image et morphologie math ’ ematique EXTRACTION DE CARACTERISTIQUES ,” 2008.
- [68] C. Thiery, “Tomographie {à} rayons X,” *Tech. l’ing{é}nieur. Anal. caract{é}risation*, vol. 1, no. P950, pp. P950–1, 2002.
- [69] F. Dubois, “Reconstruction des images tomographiques par rétroprojection filtrée,” *Rev. l’ACOMEN*, vol. 4, no. 4, 1998.
- [70] J. Hsieh, “Computed tomography: principles, design, artifacts, and recent advances,” 2009.
- [71] P. S. Tofts and J. C. Gore, “Some sources of artefact in computed tomography.,” *Phys. Med. Biol.*, vol. 25, no. 1, pp. 117–127, 1980.

- [72] D. Jha, H. O. Sørensen, S. Dobberschütz, R. Feidenhans'l, and S. L. S. Stipp, "Adaptive center determination for effective suppression of ring artifacts in tomography images," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 105, no. 14, p. 143107, 2014.
- [73] R. Prasad, T. Sreenivasu, and M. Rao, "PoWer: Polar Wavelet-Gaussian Filter for ring artifact suppression in CT Imaging Systems," *Int. J. Comput. Sci. Commun. Networks*, vol. 1, no. 2, pp. 186–195, 2011.
- [74] K. Mader, R. Mokso, C. Raufaste, B. Dollet, S. Santucci, J. Lambert, and M. Stampanoni, "Quantitative 3D characterization of cellular materials: Segmentation and morphology of foam," *Colloids Surfaces A Physicochem. Eng. Asp.*, vol. 415, pp. 230–238, 2012.
- [75] A. User, "Avizo ® 9."
- [76] G. Sanniti Di Baja and E. Thiel, "Skeletonization algorithm running on path-based distance maps," *Image Vis. Comput.*, vol. 14, no. 1, pp. 47–57, 1996.
- [77] H. Sehaqui, M. Salajková, Q. Zhou, and L. A. Berglund, "Mechanical performance tailoring of tough ultra-high porosity foams prepared from cellulose I nanofiber suspensions," *Soft Matter*, vol. 6, no. 8, pp. 1824–1832, 2010.
- [78] J. H. Aubert and R. L. Clough, "Low-density, microcellular polystyrene foams," *Polymer (Guildf.)*, vol. 26, no. 13, pp. 2047–2054, 1985.
- [79] L. J. Gibson, "Mechanical behavior of metallic foams," *Annu. Rev. Mater. Sci.*, vol. 30, no. 1, pp. 191–227, 2000.
- [80] K. Joshi, J. G. Lee, M. A. Shafi, and R. W. Flumerfelt, "Prediction of cellular structure in free expansion of viscoelastic media," *J. Appl. Polym. Sci.*, vol. 67, no. 8, pp. 1353–1368, 1998.
- [81] J. W. Gibbs, *The scientific papers of J. Willard Gibbs*, vol. 1. Longmans, Green and Company, 1906.
- [82] R. Cole, "Boiling nucleation," *Adv. Heat Transf.*, vol. 10, pp. 85–166, 1974.

- [83] T. W. Forest and C. A. Ward, "Effect of a dissolved gas on the homogeneous nucleation pressure of a liquid," *J. Chem. Phys.*, vol. 66, no. 6, pp. 2322–2330, 1977.
- [84] C. Wolff and D. Dupuis, "Viscosité," *Tech. l'ingénieur. Mes. contrôle*, no. R2350, pp. R2350–1, 1994.
- [85] G. C. Berry and T. G. Fox, "The viscosity of polymers and their concentrated solutions," *Adv. Polym. Sci.*, vol. 5/3, pp. 261–357, 1968.
- [86] M. L. Williams, R. F. Landel, and J. D. Ferry, "The Temperature Dependence of Relaxation Mechanisms in Amorphous Polymers and Other Glassforming Liquids," *Amer. Chem. Soc.*, vol. 77, no. 14, pp. 3701–3707, 1955.
- [87] M. H. André and F. John, "Fluides viscoélastiques : modélisation numérique et mesures expérimentales."
- [88] J. Richeton, G. Schlatter, K. S. Vecchio, Y. Rémond, and S. Ahzi, "A unified model for stiffness modulus of amorphous polymers across transition temperatures and strain rates," *Polymer (Guildf.)*, vol. 46, no. 19 SPEC. ISS., pp. 8194–8201, 2005.
- [89] A. D. Drozdov, "Viscoelastoplasticity of amorphous glassy polymers," *Eur. Polym. J.*, vol. 36, no. 10, pp. 2063–2074, 2000.
- [90] C. a Mahieux, K. L. Reifsnider, and S. W. Case, "Property Modeling across Transition Temperatures in PMCS : Part I . Tensile Properties," *Appl. Compos. Mater.*, vol. 42, pp. 217–234, 2001.
- [91] A.-M. Bianchi, Y. Fautrelle, and J. Etay, *Transferts thermiques*. PPUR presses polytechniques, 2004.
- [92] I. Khan, S. Costeux, D. Adrian, and S. Bunker, "Numerical Studies of Nucleation and Bubble Growth in Thermoplastic Foams at high Nucleation Rates," no. SEPTEMBER 2013, 2015.
- [93] R. Temam, *Navier-Stokes equations: theory and numerical analysis*, vol. 343. American Mathematical Soc., 2001.

- [94] H. Schiessel, R. Metzler, A. Blumen, and T. F. Nonnenmacher, “Generalized viscoelastic models: their fractional equations with solutions,” *J. Phys. A. Math. Gen.*, vol. 28, no. 23, p. 6567, 1995.
- [95] J. G. Heywood and R. Rannacher, “Finite element approximation of the nonstationary Navier-Stokes problem. I. Regularity of solutions and second-order error estimates for spatial discretization,” *SIAM J. Numer. Anal.*, vol. 19, no. 2, pp. 275–311, 1982.
- [96] J. Topper and T. Kawahara, “Approximate equations for long nonlinear waves on a viscous fluid,” *J. Phys. Soc. Japan*, vol. 44, no. 2, pp. 663–666, 1978.
- [97] A. Bedford and D. S. Drumheller, *Elastic wave propagation*. Wiley, 1994.
- [98] A. W. Adamson, A. P. Gast, and others, “Physical chemistry of surfaces,” 1967.
- [99] a. K. Chesters and G. Hofman, “Bubble coalescence in pure liquids,” *Appl. Sci. Res.*, vol. 38, no. 1, pp. 353–361, 1982.
- [100] J. R. Hughes and K. Zimmermann, “Lagrangian-Eulerian finite element formulation for incompressible viscous flows,” *Comput. Methods Appl. Mech. Eng.*, vol. 29, pp. 329–349, 1981.
- [101] C. Liu and N. J. Walkington, “An Eulerian description of fluids containing viscoelastic particles,” *Arch. Ration. Mech. Anal.*, vol. 159, no. 3, pp. 229–252, 2001.
- [102] A. R. Mitchell and D. F. Griffiths, *The finite difference method in partial differential equations*. John Wiley, 1980.
- [103] H. K. Versteeg and W. Malalasekera, *An introduction to computational fluid dynamics: the finite volume method*. Pearson Education, 2007.
- [104] O. C. Zienkiewicz, R. L. Taylor, O. C. Zienkiewicz, and R. L. Taylor, *The finite element method*, vol. 3. McGraw-hill London, 1977.
- [105] C. Hirsch, *Numerical Computation of Internal and External Flows: The Fundamentals of Computational Fluid Dynamics: The Fundamentals of Computational Fluid Dynamics*, vol. 1. Butterworth-Heinemann, 2007.
- [106] F. Radjai and C. Voivret, “Periodic boundary conditions,” pp. 1–19, 2001.

- [107] D. J. Higham and N. J. Higham, *MATLAB guide*. Siam, 2005.
- [108] P. Bourke, “Calculating the area and centroid of a polygon,” URL. <http://local.wasp.uwa.edu.au/~pbourke/> ..., vol. 2, no. C, pp. 3–5, 1988.
- [109] E. L. Allgower and P. H. Schmidt, “Computing volumes of polyhedra,” *Math. Comput.*, vol. 46, no. 173, pp. 171–171, 1986.
- [110] “Introduction to numerical simulation of fluid flows,” *Simulation*, no. April, 2004.
- [111] Y. Ito and K. Nakahashi, “Surface triangulation for polygonal models based on CAD data,” *Int. J. Numer. Methods Fluids*, vol. 39, no. 1, pp. 75–96, 2002.
- [112] B. Smith, K. Brauner, P. Kennicott, M. Liewald, and J. Wellington, “Initial graphics exchange specification(IGES) Version 2. 0.,” *NTIS, SPRINGFIELD, VA(USA)*, 1983, 341, 1983.
- [113] I. Babuvška and W. C. Rheinboldt, “Error estimates for adaptive finite element computations,” *SIAM J. Numer. Anal.*, vol. 15, no. 4, pp. 736–754, 1978.
- [114] a. D. Brydon, S. G. Bardenhagen, E. a. Miller, and G. T. Seidler, “Simulation of the densification of real open-celled foam microstructures,” *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 53, no. 12, pp. 2638–2660, 2005.
- [115] S. G. Bardenhagen, a. D. Brydon, and J. E. Guilkey, “Insight into the physics of foam densification via numerical simulation,” *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 53, no. 3, pp. 597–617, 2005.
- [116] a. Gilchrist and N. J. Mills, “Impact deformation of rigid polymeric foams: Experiments and FEA modelling,” *Int. J. Impact Eng.*, vol. 25, no. 8, pp. 767–786, 2001.
- [117] Hibbitt, Karlsson, and Sorensen, *ABAQUS/standard user’s Manual*, vol. 1. Hibbitt, Karlsson & Sorensen, 2001.
- [118] S. Moaveni, *Finite element analysis: theory and application with ANSYS*. Pearson Education India, 2003.

- [119] G. Willkenmuller and K. Kayvantash, “Radioss theoretical manual,” *MECALOG Arch.*, 1999.
- [120] M. S. C. M. U. Guide, “MSC Software corporation,” *St. Ana, CA*, 2003.
- [121] A. M. KRAYNIK, “Foam structure: From soap froth to solid foams,” *MRS Bull.*, vol. 28, no. 4, pp. 275–278, 2003.
- [122] D. Sornette, *Critical phenomena in natural sciences: chaos, fractals, selforganization and disorder: concepts and tools*. Taylor & Francis US, 2006.
- [123] H. X. Zhu, S. M. Thorpe, and a. H. Windle, “The effect of cell irregularity on the high strain compression of 2D Voronoi honeycombs,” *Int. J. Solids Struct.*, vol. 43, no. 5, pp. 1061–1078, 2006.
- [124] H. Zhu and a. H. Windle, “Effects of cell irregularity on the high strain compression of open-cell foams,” *Acta Mater.*, vol. 50, no. 5, pp. 1041–1052, 2002.
- [125] K. Ho-Le, “Finite element mesh generation methods: a review and classification,” *Comput. Des.*, vol. 20, no. 1, pp. 27–38, 1988.
- [126] C. Development, “Testing and Analysis,” *Arbor Cienc. Pensam. Y Cult.*, no. September 1998, 2001.
- [127] M. Mooney, “A theory of large elastic deformation,” *J. Appl. Phys.*, vol. 11, no. 9, pp. 582–592, 1940.
- [128] R. C. Lin and U. Schomburg, “A finite elastic--viscoelastic--elastoplastic material law with damage: theoretical and numerical aspects,” *Comput. Methods Appl. Mech. Eng.*, vol. 192, no. 13, pp. 1591–1627, 2003.
- [129] P. A. Du Bois, S. Kolling, M. Koesters, and T. Frank, “Material behaviour of polymers under impact loading,” *Int. J. Impact Eng.*, vol. 32, no. 5, pp. 725–740, 2006.
- [130] P. Mestat, “Modèles d’éléments finis et problèmes de convergence en comportement non linéaire,” *Bull. DES PONTS CHAUSSEES*, pp. 45–60, 1998.
- [131] R. Hill, “Elastic properties of reinforced solids: Some theoretical principles,” *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 11, no. 5, pp. 357–372, Sep. 1963.

- [132] E. Kröner, “Statistical modelling,” in *Modelling small deformations of polycrystals*, Springer, 1986, pp. 229–291.
- [133] K. SAB, “On the homogenization and the simulation of random materials,” *Eur. J. Mech. A. Solids*, vol. 11, no. 5, pp. 585–607.
- [134] E. Sanchez-Palencia and A. Zaoui, “Homogenization techniques for composite media,” in *Homogenization Techniques for Composite Media*, 1987, vol. 272.
- [135] R. Al-Raoush and A. Papadopoulos, “Representative elementary volume analysis of porous media using X-ray computed tomography,” *Powder Technol.*, vol. 200, no. 1–2, pp. 69–77, Jun. 2010.
- [136] J. Keller, “Inverse Problems,” *Am. Math. Mon.*, vol. 83, no. 2, pp. 107–118, 2008.
- [137] M. Kern, “PROBLÈMES INVERSES,” 2003.
- [138] M. C. Saha, H. Mahfuz, U. K. Chakravarty, M. Uddin, M. E. Kabir, and S. Jeelani, “Effect of density, microstructure, and strain rate on compression behavior of polymeric foams,” *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 406, no. 1, pp. 328–336, 2005.

Analyse du comportement mécanique des mousses polymères : apport de la tomographie X et de la simulation numérique

Résumé :

Les matériaux polymères à structures cellulaires allient des propriétés mécaniques, thermiques, chimiques et optiques intéressantes aux regards des contraintes d'allègement des systèmes et des structures. Toutefois, pour diversifier leurs applications et les rendre toujours plus performants dans les domaines de la santé, du transport ou encore du bâtiment, une étude fine des relations qui lient les procédés de fabrication à la microstructure générée et aux propriétés qui en découlent, doit être menée. Ces propriétés mécaniques dépendent étroitement des propriétés de la matière dont les mousses sont faites mais aussi de la morphologie de leurs microstructures (orientation, distribution et taille des pores, épaisseur des parois). Il est donc crucial de pouvoir quantifier et mesurer ces paramètres pour tendre vers une compréhension fine des propriétés mécaniques et définir des modèles capables de relier le comportement macroscopique du matériau cellulaire vis-à-vis de son « équivalent » massif et de la microstructure. En collaboration étroite avec la direction recherche et développement de l'entreprise INTEREP, leader européen du caoutchouc cellulaire étanche, une caractérisation expérimentale du comportement mécanique de mousses de différentes natures polymériques et de différentes topologies a d'abord été effectuée. Ensuite un ensemble de modélisations géométriques a été développé à partir d'observations microstructurales de vraies mousses en micro-tomographie de rayons X et à partir de microstructures générées virtuellement par le biais d'une description physique du processus de fabrication de mousses polymères. Finalement, une simulation numérique éléments finis en 2D et en 3D de ces microstructures couplées à la caractérisation expérimentale du matériau massif des parois a permis de reproduire et d'étudier finement les mécanismes de déformations observés expérimentalement sur des mousses polymères et d'affiner les lois de comportement empiriques avec la prise en compte d'un paramètre supplémentaire caractéristique de la statistique de distribution des cellules dans l'espace, c'est-à-dire de leurs localisations et de leur distribution de taille et de forme.

Mots clefs : mousse polymère, modélisation éléments finis, microstructure, micro-tomographie rayons X

Polymeric foams mechanical behavior analysis: X-ray tomography and numerical simulation contribution

Abstract:

Polymeric foams materials combine mechanical, thermal, chemical and optical attractive properties interesting light weighting structures problems. However, to diversify their applications and make them even more efficient in the fields of health, transportation or construction, a fine study of the relationships between manufacturing processes to generated microstructures and resulting properties must be conducted. These mechanical properties highly depend on the properties of the material constituting the foams but also on the morphology of their microstructures (orientation, distribution and pore size, wall thickness). Thus, it is crucial to quantify and measure these parameters to strive for a detailed understanding of the mechanical properties and to set models capable of relating the macroscopic behavior of cellular materials to that of bulk materials and to the microstructures. In collaboration with the research and development division of INTEREP, European leader in waterproof cellular rubber, an experimental characterization of the mechanical behavior of polymer foams of different natures and different topologies was performed first. Then a geometrical modeling was developed both from the microstructural observations of real foams obtained by X-ray micro-tomography and from virtual microstructures generated through a physical description of polymer foams manufacturing process. Finally finite element simulation in 2D and 3D of these microstructures were coupled with the experimental characterization of bulk material allowing the deformation mechanisms experimentally observed on polymer foams to be reproduced. In addition these simulations allowed the empirical behavior laws to be refined by taking into account an additional parameter characteristic of the statistical spatial distribution of the cells, namely their location, size and shape distributions.

Keys words: polymeric solid foam, finite elements modeling, microstructure, X-ray tomography