



HAL
open science

Etude micromécanique du lien entre endommagement local et comportement macroscopique de propergols solides

Foucault de Francqueville

► **To cite this version:**

Foucault de Francqueville. Etude micromécanique du lien entre endommagement local et comportement macroscopique de propergols solides. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. Institut Polytechnique de Paris, 2019. Français. NNT : 2019IPPAX004 . tel-02972773

HAL Id: tel-02972773

<https://theses.hal.science/tel-02972773v1>

Submitted on 20 Oct 2020

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.



INSTITUT
POLYTECHNIQUE
DE PARIS



arianeGROUP



NNT : 2019IPPAX004

Thèse de doctorat

Étude micromécanique du lien entre endommagement local et comportement macroscopique de propergols solides

Thèse de doctorat de l'Institut Polytechnique de Paris
préparée à l'École polytechnique

École doctorale n°626
École doctorale de l'Institut Polytechnique de Paris (ED IPParis)
Spécialité de doctorat : Mécanique et Matériaux

Thèse présentée et soutenue à Palaiseau, le 6 décembre 2019, par

FOUCAULT DE FRANQUEVILLE

Composition du Jury :

Samuel Forest Directeur de Recherche, Mines de Paris (CdM)	Président
Carole Nadot-Martin Professeur, École Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique (LMPM)	Rapporteur
Jean-Luc Bouvard Maître de Conférence, Mines de Paris (CEMEF)	Rapporteur
Kostas Danas Chargé de Recherche, École Polytechnique (LMS)	Examineur
Julie Diani Directeur de Recherche, École Polytechnique (LMS)	Directeur de thèse
Pierre Gilormini Directeur de Recherche, Arts et Métiers ParisTech (PIMM)	Co-directeur de thèse
Aude Vandenbroucke Ingénieur de Recherche, ArianeGroup (CRB)	Invité

Remerciements

Je tiens en premier lieu à remercier mon jury pour la reconnaissance qu'ils ont bien voulu accorder à ces trois années de thèse. Je tiens à adresser des remerciements particuliers à mes rapporteurs qui ont pris le soin de se pencher en détail sur l'ensemble de mon manuscrit. En particulier au professeur Nadot-Martin qui a mis son impondérable expérience des explosifs au service de l'étude de mes travaux. Elle a su porter un regard particulièrement enthousiaste sur ce travail tout en relevant avec une grande pertinence ses approximations et ses manques de rigueur. Mes remerciements vont tout aussi particulièrement au professeur Bouvard notamment pour son analyse critique des approches numériques et la mise en lumière de tous les approfondissements à mettre en œuvre pour renforcer la validité et la cohérence de la démarche mise en œuvre dans ce projet.

Je me dois aussi d'accorder un remerciement spécial aux autres membres de mon jury dont l'implication a été tout aussi capitale. C'est en particulier le cas du docteur Danas qui m'a apporté un soutien très important en tant que membre de mon comité de suivi de thèse mais surtout pour les heures, voir les nuits, qu'il a passé à remettre en marche le cluster de calcul. Sans son dévouement, aucun résultat avec zone cohésive n'aurait pu être présenté... Enfin je remercie le docteur Forest qui a accepté de présider mon jury et qui, depuis nos premières rencontres au master MAGIS, a toujours gardé un œil bienveillant sur mes travaux et m'a apporté des encouragements chaleureux, notamment à Aussois en 2018.

Je ne peux aborder la suite de cette introduction en parlant simplement de remerciements. En effet, le mot est loin d'être assez fort pour exprimer ce que je dois à mes encadrants. C'est donc une très vive reconnaissance que j'adresse tout d'abord à Pierre Gilormini et Julie Diani, qui forment un duo de choc et dont l'implication active dans mon projet de thèse en fait presque une collaboration. Julie a su m'aider à donner le meilleur de moi-même et aller au bout de mes idées grâce à sa rigueur, son entrain et même nos quelques confrontations. Pierre m'a à la fois fait grandir et mon encouragé par sa bienveillance, son expérience et sa précision. Enfin, je me tourne vers Aude Vandembroucke, si nous avons peu travaillé ensemble sur le sujet même de la thèse, elle m'a très vite offert l'opportunité de collaborer sur de nombreux projets industriels. Ces échanges ont, me semble-t-il porté de nombreux fruits, mais ils m'ont surtout offert la possibilité de monter en maturité techniquement. Je la remercie particulièrement pour la confiance qu'elle m'a toujours accordé.

Je remercie tout aussi particulièrement ArianeGroup pour son soutien dans l'ensemble de ce projet. Le Centre de recherche du Bouchet m'a offert un cadre exceptionnel pour cette thèse et il garde un potentiel énorme pour continuer dans cette voie. J'en profite d'ailleurs pour remercier Jean François Guery, pour la confiance qu'il m'a, lui aussi, accordé et surtout pour les discussions techniques que nous avons eu et qui me manqueront sans aucun doute. Je remercie toutes les équipes d'Ariane avec qui j'ai pu échanger avec un intérêt tout particulier. Spécifiquement au sein du laboratoire de caractérisation mécanique avec Alexandre, Adrien, Gregory et Thibaut

ainsi qu'au sein du laboratoire de caractérisation physico-chimique avec Jean-Philippe, Stessie, Adrien, Charlotte, Valentine, Emilie, Christelle et Véronique. Je pense aussi tout spécialement à Stany, avec qui j'ai collaboré avec beaucoup de plaisir, qu'aux équipes du Haillan ou encore à Mattieu qui a su incarner un certain idéal du manager que je ne saurais oublier.

Je remercie bien évidemment tous les membres du laboratoire de mécanique des solides avec qui j'ai pu collaborer ou simplement partager des moments spécialement Othmane, Yanis, Thomas, Nicolas, Alexandre, Camille, Svetalna, Hakim, Filippo, Jérémie et Estève. Ma présence en pointillés n'a pas toujours été simple à gérer, mais tous m'ont accueilli et intégré très rapidement. Nous avons pu partager d'excellent moment humainement et scientifiquement.

Enfin je remercie, une fois encore, la DGA pour son soutien financier tout au long de ce projet. On le sait, pour la recherche industrielle comme académique, c'est le nerf de la guerre. Je vous la remercie aussi pour l'intérêt qu'elle a su porter à mes travaux.

Je finirai par le meilleur : ma petite femme, que je remercie infiniment pour son soutien tout au long de ce projet, en particulier pour le marathon des derniers mois.

Mes derniers remerciements ne peuvent oublier Robert Nevière, qui fut à l'origine de ce projet, mais dont le départ trop précipité ne lui aura malheureusement pas permis d'en voir l'aboutissement...

Pour conclure sur une note plus légère, j'aurais dernier un mot pour Vladimir Volkoff qui, le premier, m'a fait découvrir les propergols avec son génial personnage du professeur Roche-Verger. Ce polytechnicien imaginaire a bercé ma jeunesse et a peut être posé les premières bases de cette aventure...

Á ma Choupette

Table des matières

1	Présentation générale du projet de recherche	1
1.1	Propergols et enjeux du projet de recherche	5
1.1.1	Histoire de la propulsion et applications	5
1.1.2	Les matériaux énergétiques	6
1.1.3	Enjeux et objectifs de la thèse	10
1.2	Comportements mécaniques	12
1.2.1	Phases constitutives	13
1.2.2	Comportement global des composites	15
1.2.3	Lien vers l'échelle microscopique	19
1.3	Simulation micromécanique	22
1.3.1	Approches semi-analytiques	23
1.3.2	Simulation numérique	24
1.3.3	Génération de microstructure	27
1.3.4	Modèle de zone cohésive	31
1.4	Synthèse	34
2	Simulations dans le cadre de l'élasticité linéaire	37
2.1	Génération de microstructures	41
2.1.1	Inclusions sphériques	41
2.1.2	Inclusions polyédriques	48
2.2	Analyse statistique des microstructures chargées avec des sphères et validation de leur représentativité	50
2.2.1	Étude d'un cas réel	51
2.2.2	Étude statistique et optimisation	56
2.2.3	Validation de la représentativité des comportements mécaniques	62
2.3	Cas des inclusions irrégulières et comparaison polyèdres <i>vs.</i> sphères	67
2.3.1	Analyse statistique dans le cas des inclusions polyédriques	67
2.3.2	Impact de la géométrie des particules sur le comportement élastique linéaire	67
2.4	Synthèse	71
3	Simulations de l'endommagement	75
3.1	Mise en œuvre des zones cohésives	79
3.1.1	Contexte de mise en œuvre des zones cohésives	79
3.1.2	Régularisation visqueuse	80
3.1.3	Implémentation des éléments cohésifs et affichage d'un paramètre d'état	80
3.1.4	Validation de la stratégie de mise en œuvre des zones cohésives	84
3.2	Tendances des comportements simulés aux échelles globale et locale	85

3.2.1	Endommagement du composite modèle contenant des billes de verre	86
3.2.2	Paramètres de référence	87
3.2.3	Augmentation du déplacement à rupture	89
3.2.4	Réduction de la contrainte critique	90
3.3	Vers une simulation quantitative	91
3.3.1	Influence de la rigidité initiale	91
3.3.2	Influence de la contrainte critique	92
3.3.3	Influence du déplacement à rupture	94
3.3.4	Prise en compte d'un modèle de zone cohésive plus complexe	94
3.3.5	Optimisation du comportement mécanique	96
3.4	Analyse de l'impact de la morphologie des charges en grandes déformations	97
3.4.1	Comportement des microstructures chargées avec des polyèdres	97
3.4.2	Impact de la géométrie des particules sur le comportement en grandes déformations	99
3.4.3	Retour sur les comportements expérimentaux	101
3.4.4	Synthèse	102
4	Vers le comportement réel des propergols solides	105
4.1	Présentation des propergols d'étude	109
4.1.1	Contexte et objectif de la campagne	109
4.1.2	Comportements mécaniques des phases	110
4.1.3	Morphologie des compositions	111
4.2	Comportements mécaniques macroscopiques	111
4.2.1	Comportements linéaires	114
4.2.2	Comportements en grandes déformations et mesure de dilatations	116
4.2.3	Énergie d'endommagement, essais cycliques	119
4.3	Analyse de l'endommagement local	123
4.3.1	Mode opératoire	123
4.3.2	Observations MEB et propriétés d'interface	123
4.3.3	Bilan des caractérisations	131
4.4	Études complémentaires	133
4.4.1	Mise en œuvre de la démarche au service de l'amélioration des propriétés d'interface	133
4.4.2	Confrontation à la littérature	134
4.5	Synthèse	136
5	Conclusions et perspectives	141
5.1	Conclusions	143
5.2	Perspectives	146
5.2.1	L'impact du facteur de forme des charges irrégulières	146
5.2.2	Différenciation des comportements cohésifs normaux et tangentiels	149
5.2.3	Analyse de l'impact de nouveaux paramètres sur l'endommagement	151
5.2.4	Microstructures avec un défaut de désordre	152
5.2.5	Utilisation additionnelle des microstructures numériques	153
5.3	Bilan final	155
Bibliographie		169

ANNEXES	183
A Évaluation de la pression dans l’algorithme de Lubachevsky et Stillinger	183
B Calcul de la fonction de corrélation à deux points par transformée de Fourier	187
C Travaux de stage de Nassim Zeroual	189
C.1 Microstructures avec 128 sphères	189
C.2 Microstructures avec 32 sphères	192

Introduction

Ce projet de recherche s'inscrit dans le cadre d'une collaboration (Figure 1) entre le Laboratoire de Mécanique des Solides (LMS) de l'École Polytechnique et le Centre de Recherche du Bouchet (CRB) d'ArianeGroup, avec le soutien financier de la Délégation générale pour l'armement (DGA).

Il entre dans la continuité de trois autres projets de thèses, le premier ayant débuté en 2007, avec pour objectif l'amélioration de la compréhension du comportement mécanique des propergols solides composites. Ces démarches ont notamment porté une attention particulière aux phénomènes intervenant à l'échelle microscopique et leur impact sur le comportement global du matériau.

Ainsi, [Azoug \(2010\)](#) a développé un plan d'expérience d'envergure afin de mettre en évidence l'influence des propriétés physicochimiques du matériau sur les non-linéarités de son comportement en petites déformations. Par la suite, [Jalocha \(2015\)](#) s'est attaché à approfondir l'étude de ces non-linéarités, notamment en cas de chargement biaxiale et lors de sollicitations vibratoires. Il a également proposé un modèle homogénéisé susceptible de reproduire les comportements spécifiques caractérisés.

Enfin, le laboratoire de Procédés et Ingénierie en Mécanique et Matériaux (PIMM) de l'École nationale supérieure d'arts et métiers a rejoint le projet avec les travaux de [Toulemonde \(2016\)](#) qui s'est focalisé sur l'étude de l'endommagement des propergols. Il a alors proposé des simulations micromécaniques, en deux dimensions, ainsi que des stratégies de caractérisation expérimentale permettant d'identifier les phénomènes locaux qui affectent l'endommagement du matériau en grandes déformations.

C'est dans ce contexte que s'inscrit ce nouveau projet de recherche avec pour objectif l'approfondissement de certains points de compréhension mis en évidence par ces études. L'enjeu consiste aussi à développer des démarches suffisamment proches de la réalité des propergols pour proposer, à terme, des stratégies accessibles aux industriels, leur permettant alors d'optimiser leur processus de caractérisation et de développement de propergols plus performants.



FIGURE 1 : Principaux organismes acteurs du projet.

Chapitre 1

Présentation générale du projet de recherche

Ce premier chapitre propose une présentation chronologique de l'origine des propergols mettant en évidence leur intérêt stratégique. Par la suite, il se focalisera sur le matériau principal de l'étude : les propergols solides et leurs variantes. L'élaboration ainsi que la morphologie de ces composites spécifiques pourront alors être détaillées. Cette introduction aboutira aux enjeux de la simulation numérique de leur comportement mécanique et à l'intérêt que suscite une meilleure compréhension de leur endommagement. Une ouverture de l'étude à des matériaux composites plus conventionnels sera proposée par la suite. La cohérence de cette extension sera confrontée aux spécificités du comportement mécanique des propergols solides. Enfin, ce chapitre se conclura par un bilan des approches déjà développées pour simuler ces matériaux avec leurs avantages et leurs limites. Cette revue permettra alors de justifier les stratégies qui ont été sélectionnées et d'introduire les originalités de la présente étude.

« Pour tirer le meilleur parti des connaissances acquises, pour en extraire toute la richesse, il importe de ne pas s'y habituer trop vite, de se laisser le temps de la surprise et de l'étonnement. »

Hubert Reeve (1932– ...)

Sommaire

1.1	Propergols et enjeux du projet de recherche	5
1.1.1	Histoire de la propulsion et applications	5
1.1.2	Les matériaux énergétiques	6
	Formulation des propergols solides composites	7
	Elaboration du matériau	8
	Morphologie des propergols solides composites	9
1.1.3	Enjeux et objectifs de la thèse	10
	Analyse des propriétés microscopiques influençant le comportement des propergols	10
	Extension aux élastomères fortement chargés	11
1.2	Comportements mécaniques	12
1.2.1	Phases constitutives	13
	Le liant	13
	Les charges	14
1.2.2	Comportement global des composites	15
	Grandes déformations et endommagement	15
	Non-linéarités de comportement	18
1.2.3	Lien vers l'échelle microscopique	19
1.3	Simulation micromécanique	22
1.3.1	Approches semi-analytiques	23
1.3.2	Simulation numérique	24
1.3.3	Génération de microstructure	27
	Analyse de l'étape de génération	27
	Détail des solutions proposées	28
	Fonction de caractérisation de l'ordre géométrique	29
1.3.4	Modèle de zone cohésive	31
	Principe et applications courantes	31
	Mise en œuvre dans la simulation micromécanique	32
1.4	Synthèse	34

1.1 Propergols et enjeux du projet de recherche

Arracher un système à la pesanteur et le déplacer sur une grande distance fait, depuis toujours, partie des grandes aspirations de l'humanité. Deux solutions ont été historiquement en concurrence : d'une part la projection de l'objet, le plus souvent à partir d'une montée en pression dans un canon, d'autre part la propulsion grâce à une poussée exercée par le système lui-même. Cette dernière technique repose chronologiquement sur la rotation d'une ou plusieurs hélices puis sur une combustion à partir de l'oxygène atmosphérique pour générer et éjecter des gaz chauds, la poussée est alors obtenue grâce à la conservation de la quantité de mouvement du système. Néanmoins, la mise en œuvre de cette solution nécessite d'une part des systèmes complexes, d'autre part la présence d'oxygène. Ces deux difficultés ont motivé le développement de la propulsion solide qui repose simplement sur l'introduction d'un matériau capable de générer à lui seul des gaz chauds (anaérobie). Ces gaz éjectés poussent alors le système selon le principe des actions réciproques (troisième loi de Newton). Si les fondements de cette solution sont simples, les intérêts modernes qui en dépendent sont tels que son optimisation maximale reste un enjeu majeur.

1.1.1 Histoire de la propulsion et applications

L'origine de la propulsion solide remonte à l'antiquité et plus particulièrement aux prémices de l'empire chinois. C'est dans ce dernier qu'ont été développées les premières fusées à poudre noire, mélange de poussière de charbon, de soufre et de naphte. Dès le début de notre ère, les faibles performances de ce mélange ont été améliorées par l'ajout de salpêtre, permettant les premières utilisations militaires. Ainsi, en 85 les Chinois utilisèrent des flèches à propulsion contre les envahisseurs Tartares.

C'est seulement vers le XVIII^{ème} siècle que cette technologie est importée en Europe après que les Indiens aient infligé de lourdes pertes à l'armée anglaise grâce à ce qui peut être considéré comme les prémices des missiles. Le début du XIX^{ème} siècle sera alors marqué par un usage grandissant de fusées militaires sur le vieux continent, notamment lors du siège de Copenhague en 1807, pendant lequel près de 25 000 "missiles" furent tirés.

Néanmoins, le développement de la propulsion, dont l'utilisation restait périlleuse, fut freiné par la concurrence des armes à feu (projection). Ces dernières connaissent une rupture technologique dans les années 1850 avec le déploiement du canon rayé. Celui-ci offre une meilleure précision pour une portée accrue. La propulsion tombe alors en désuétude...

C'est seulement un siècle plus tard, pendant la seconde guerre mondiale, que la nécessité de gagner en portée entraîne un regain d'intérêt pour cette technologie. Les équipes allemandes de Werhner von Braum développent ainsi le premier missile moderne : le Vergeltungswaffe 2 (V2, littéralement *arme de représailles*). Celui-ci emploie des propergols liquides pour assurer la propulsion de charges explosives. À l'issue du conflit, la valeur des technologies développées pour le V2 est immédiatement perçue par les grandes puissances. Les vainqueurs se partageront les ingénieurs allemands tout en mobilisant de nouvelles compétences pour intégrer et optimiser les méthodes de propulsions.

Au-delà de l'intérêt suscité par l'industrie militaire, la course à l'espace entre les blocs de l'Ouest et de l'Est va leur donner un essor supplémentaire. On note alors la scission entre deux grandes solutions de propulsions anaérobiques : les propergols liquides, avec d'excellentes performances énergétiques et permettant une régulation de poussée et les propergols solides qui, malgré leur rendement plus faible, présentent une fiabilité et une disponibilité accrue. En effet,



FIGURE 1.1 : Utilisation de la propulsion solide dans la prochaine génération de lanceur spatiaux en Europe comme aux États-Unis (ArianeGroup; NASA, 2019). Les boosters chargés en propergol sont surlignés en vert.

l'efficacité de la propulsion liquide nécessite l'intégration de systèmes extrêmement complexes (en particulier pour la propulsion cryogénique) et peu propice au stockage, elle est donc presque exclusivement dédiée à l'industrie spatiale.

De leur côté, les propergols solides ont été développés pour la propulsion d'engins militaires d'une taille variant du mètre, pour les missiles tactiques, à plusieurs dizaines de mètres, dans le cas des missiles balistiques. Mais cet usage n'est pas exclusif, la technologie reste un enjeu majeur pour la propulsion spatiale. Elle est couramment utilisée dans les boosters (étages d'accélération à poudre), on la retrouve notamment sur Ariane 5 mais aussi sur la future Ariane 6 avec le P120C qui intégrera les plus gros monoblocs de propergol jamais élaborés, avec une masse de près de 142 t (Figure 1.1). Ce bloc propulseur servira également de premier étage pour le lanceur italien VEGA-C développé par AVIO. Au-delà des développements européens, nombre de projets spatiaux internationaux prévoient aussi l'intégration de propergols solides, en particulier le Space Launch System (SLS) de la NASA qui intégrera, dans sa version Block 2, deux boosters de 450 t chacun (5 segments par booster). Il sera dédié aux nouvelles missions habitées d'exploration de la Lune à partir de 2020.

1.1.2 Les matériaux énergétiques

Les propergols solides sont devenus un élément clé pour les propulsions spatiale et militaire. Les enjeux stratégiques que représentent ces deux domaines favorisent leur développement et leur optimisation continue. C'est ainsi qu'a émergé la nouvelle dénomination *matériaux énergétiques* à

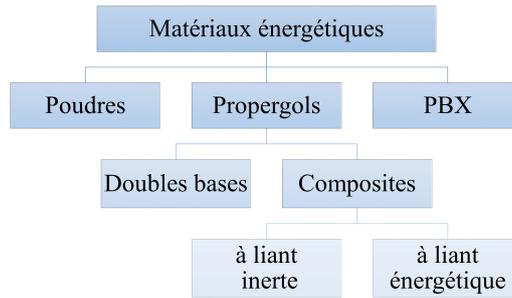


FIGURE 1.2 : Classification des matériaux énergétiques.

la fin du XX^{ème} siècle marquant un tournant dans la démarche d'amélioration des performances, pour se focaliser sur le matériau lui-même (Amiable, 1998).

Les matériaux énergétiques englobent désormais l'ensemble des composés solides qui servent tant à la projection (arme à feu) qu'à la propulsion. Ces solutions trouvent tout leur intérêt dès lors que l'environnement ou les cinétiques de réaction ne permettent pas de combustion à partir de l'oxygène ambiant. Le matériau libère de l'énergie soit à partir de réactions d'oxydo-réduction soit par pyrolyse de composants ayant une enthalpie de formation particulièrement élevée, tel que les cycles azotés (Azoug, 2010). La Figure 1.2 liste les trois grandes familles de matériaux énergétiques : d'une part les poudres qui, compactées ou à l'état pulvérulent, servent soit à la projection (poudre pour arme) soit de générateur de gaz (airbags), soit d'explosif en cas de transition vers un régime de détonation (vitesses de combustion de plusieurs milliers de mètres par seconde). Ce type de régime peut d'autre part être atteint dans les explosifs à liant polymère (Polymer-bounded explosive, PBX) contenant près de 95% de poudre liée par une faible quantité d'élastomère. De leur côté, les propergols solides sont utilisés majoritairement pour la propulsion en anaérobie à partir de l'énergie libérée de façon maîtrisée par une ou des réactions chimiques (oxydo-réduction, pyrolyse). Ils ont ainsi la particularité de ne pas détoner et d'avoir une combustion en couches parallèles, propriété essentielle pour le dimensionnement d'un bloc propulseur.

On distingue deux types de propergols solides. D'une part les propergols homogènes majoritairement utilisés dans le domaine de la propulsion tactique, mais aussi pour fabriquer des leurres ou même les nouvelles générations de poudre pour arme. Ils sont constitués d'un mélange de nitrocellulose et de nitroglycérine (d'où la dénomination *double base*). Ces composés contiennent dans leurs molécules des éléments oxydants et des éléments réducteurs permettant la libération d'énergie lors de leur combustion. Bien que leur élaboration soit simple, leurs performances et leurs dimensions sont limitées ce qui a conduit au développement des propergols composites. Ce dernier matériau étant au cœur du présent projet de recherche, ses propriétés seront plus largement détaillées.

Formulation des propergols solides composites

Les propergols solides composites sont constitués d'une forte fraction volumique de charges énergétiques intégrées dans une matrice élastomérique liante qui donne de la cohésion au matériau (Summerfield, 1960). Il existe deux grandes familles de propergols solides composites : les propergols à liant actif et les propergols à liant nitré (Davenas, 1989).

Les compositions traditionnelles, à liant inerte, sont constituées de 60% à 80% de perchlorate d'aluminium (PA, charge oxydante) d'une taille variant de quelques micromètres à plusieurs centaines de micromètres (Oberth et Bruenner, 1965; Gallier et Hiernard, 2008) et d'une matrice

réductrice, majoritairement du polybutadiène hydroxy-téléchilique (PBHT), plastifiée (Canselier, 2005). Des additifs sont aussi introduits pour améliorer les propriétés de vieillissement (Coquillat, 2007) ou d'adhésion liant/charge du matériau (Hori *et al.*, 1985; Kim *et al.*, 1992). Enfin, des particules d'aluminium de petites tailles (souvent moins d'une dizaine de microns) sont régulièrement ajoutées servant alors de réducteur d'appoint (fraction volumique < 25%). L'introduction de nitramine (désignant entre autres l'octogène : HMX et l'hexogène : RDX, qui sont des composés explosifs) est parfois envisagée pour doper les performances de ces compositions.

Les propergols à liant nitré ont été développés plus récemment, ils intègrent une matrice qui possède elle-même des propriétés énergétiques provenant de son plastifiant qui intègre au moins un ester nitrique et représente environ 60% de la fraction volumique de la matrice (Frankel *et al.*, 1992). Les charges intégrées dans ces compositions sont majoritairement des nitramines plutôt que le traditionnel perchlorate d'ammonium, lequel peut induire des problèmes de sécurité lors de la fabrication du matériau.

Elaboration du matériau

L'élaboration d'un bloc de propergol solide composite est généralement réalisée en cinq étapes successives avec quelques variantes en fonction de la typologie de la composition. Ces étapes ont été longuement détaillées par Davenas (1989) et ne seront que brièvement évoquées ici :

- 1 Prémélange : La matrice élastomérique est préparée en mélangeant, sous vide, le prépolymère, certains additifs et le plastifiant. Pour des raisons de sécurité, cette étape revêt une dimension particulièrement complexe dans le cas des liants énergétiques, dans ce cas le prémélange est appelé *prémix*.
- 2 Malaxage : Les charges énergétiques (PA, nitramine) ou non (aluminium, additifs) puis les agents de réticulation sont progressivement introduits. L'ensemble subit un malaxage mécanique sous vide au moyen de pales horizontales ou verticales. Des études récentes envisagent de remplacer les malaxeurs mécaniques par des solutions de *Resonant Acoustic Mixing* (RAM) afin de réduire les sollicitations au sein du mélange (Anderson *et al.*, 2014).
- 3 Coulée : Le mélange est ensuite injecté ou coulé, sous vide, dans un moule ou directement dans le propulseur. Pour cette étape, la viscosité du mélange est une propriété capitale de façon à assurer un remplissage complet et sans défaut. C'est une des raisons qui justifie l'ajout d'un plastifiant qu'il soit énergétique ou non (Ang et Pisharath, 2012). Si la capacité du malaxeur est trop faible par rapport à la taille du propulseur, plusieurs cuves seront successivement préparées avant d'être coulée une à une dans le moule, on parle alors d'un procédé par *batch*.
- 4 Cuisson : Le moule est introduit pendant plusieurs jours dans une étuve ayant une température de 50 à 70°C afin de permettre la réticulation de l'élastomère. Cette dernière intervient le plus souvent par réaction entre les fonctions alcool du prépolymère et les isocyanate des agents de réticulation. Il se forme alors des groupements uréthanes qui permettent la constitution du réseau tridimensionnel.
- 5 Refroidissement, démoulage et contrôle : Cette étape débute par un retour à température ambiante du bloc de propergol et le retrait éventuel du moule. Par la suite, des contrôles non destructifs (Ultrason, rayons X) sont opérés pour détecter la présence de défauts dus au processus de fabrication.

Le bloc de propergols, ainsi élaboré, est appelé chargement (Figure 1.3). Comme évoqué plus tôt, il peut être soit directement coulé dans le propulseur qui sert alors de moule (chargement moulé-collé), soit fixé sur la structure après refroidissement (chargement libre). Des matériaux d'aména-

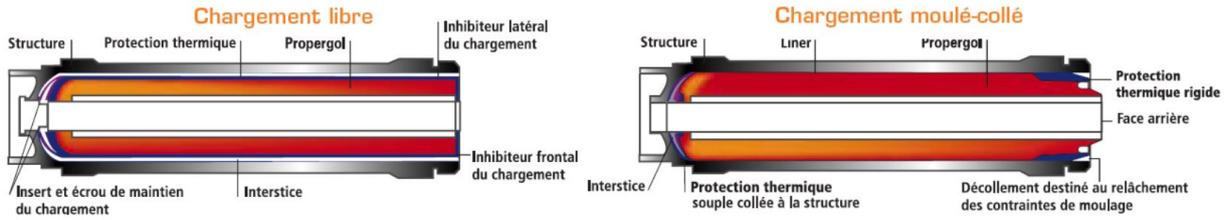
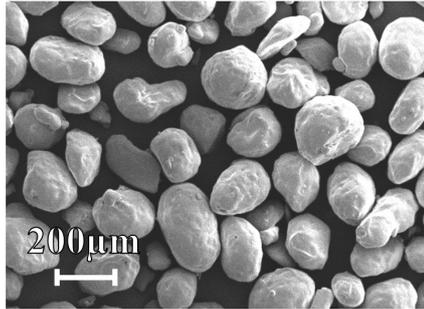
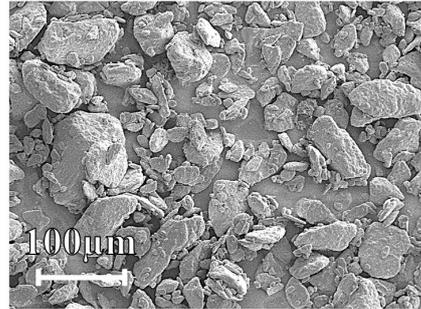


FIGURE 1.3 : Exemples de moteurs à propulsion solide (ArianeGroup).



(a)



(b)

FIGURE 1.4 : Observations au microscope électronique à balayage (MEB) de charges (a) de perchlorate d’ammonium et (b) de RDX couramment utilisées dans les formulations de propergols. Images obtenues sur le MEB Zeiss JSM-6510 du centre de recherche du Bouchet (CRB) d’ArianeGroup pour une accélération de faisceau de 10 kV (ArianeGroup).

gement intérieur, en particulier des couches de protection thermique (élastomère), servent ensuite d’interface entre la structure et le chargement. Enfin la tuyère est ajoutée à la structure, elle permet d’amplifier la vitesse d’éjection des gaz de combustion et donc réciproquement d’augmenter la vitesse du propulseur. L’ensemble forme alors le corps de propulseur chargé (CPC), le moteur à propulsion solide.

Morphologie des propergols solides composites

La phase d’élaboration qui vient d’être détaillée met en exergue les nombreux constituants des propergols solides composites. Cette hétérogénéité leur confère des propriétés morphologiques particulières : d’une part propres à chacun des composants et d’autre part du fait de leurs interactions.

Le taux de charges introduites atteint plus de 70% du volume du matériau grâce aux différentes granulométries de particules. Les grandes familles de charges énergétiques actuellement utilisées dans les propergols solides composites sont le perchlorate d’ammonium (Figure 1.4(a)) ayant une forme ellipsoïdale et des surfaces lisses, et les nitramine tel que le RDX (Figure 1.4(b)) qui est irrégulier, facetté et rugueux. Quel que soit la famille de charges énergétiques considérée, les particules sont peu allongées presque équiaxiales (surtout dans le cas du PA), leur orientation spatiale est donc rarement prise en compte dans l’analyse morphologique (Jain *et al.*, 2009).

Malgré leur très forte fraction volumique, les charges sont historiquement considérées comme réparties de manière aléatoire dans les propergols solides composites (Shinnar *et Naor*, 1961; Gallier *et Hiernard*, 2008; Collins *et al.*, 2008). Cette propriété est sensible au processus de

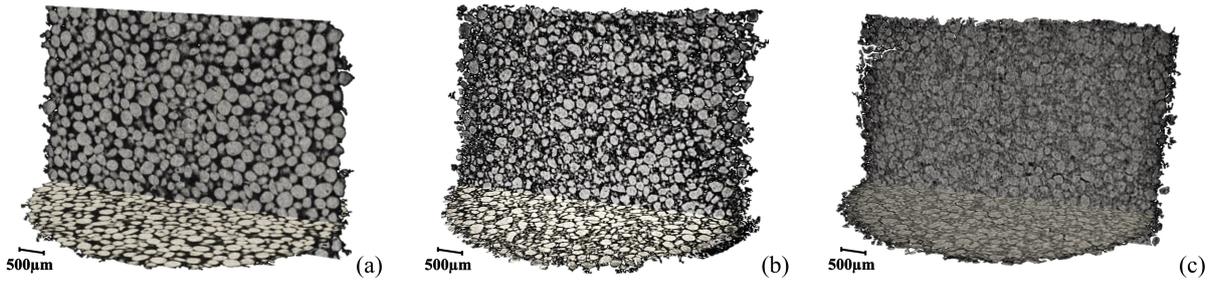


FIGURE 1.5 : Plans de coupe tomographiques de propergols simplifiés à liant inerte chargés en PA (a) et RDX (b) et d’un propergol simplifié à liant nitré chargé en RDX (c). Observations obtenues sur le microtomographe *Skyscan 1072* du centre de recherche du Bouchet (CRB, ArianeGroup), avec une résolution de $6.7 \mu\text{m}/\text{vx}$ et les paramètres de source suivant : $65 \text{ kV}-152 \mu\text{A}$, $46 \text{ kV}-219 \mu\text{A}$ et $65 \text{ kV}-152 \mu\text{A}$.

fabrication lequel peut entraîner un défaut d’homogénéité et éventuellement une anisotropie de comportement. Néanmoins, ces configurations sont considérées comme dégénérées et les processus de fabrication sont ajustés pour assurer une répartition aléatoire.

Les techniques d’observation par microtomographie peuvent ainsi être mobilisées pour analyser en profondeur les propriétés morphologiques du propergol (Figure 1.5). Néanmoins, si la différence d’absorption des rayons X entre les liants inertes et les charges énergétiques est suffisamment importante pour obtenir des images très contrastées (Figure 1.5 (a) et (b)), elle est beaucoup plus faible lorsqu’on considère un liant nitré, complexifiant largement les observations (Figure 1.5 (c)). Les méthodes classiques d’analyse morphologique d’images peuvent par la suite être exploitées afin de caractériser les propriétés élémentaires du matériau. Un algorithme de ce type (SAMG), permettant d’analyser des tomographies, a été récemment proposé (Chabardes, 2018). Ces approches offrent un regard détaillé sur la répartition des charges, notamment en fonction de leur nature et de leur granulométrie et permettent de mettre en exergue des agglomérats ou des réseaux de particules qui, dans le cas de l’aluminium, pourraient être responsable de la sensibilité de certains propergols à l’électricité statique. Enfin, cette technique peut aussi être exploitée pour confirmer le caractère aléatoire de la dispersion des charges (Collins *et al.*, 2008).

1.1.3 Enjeux et objectifs de la thèse

L’histoire, les applications et la complexité des propergols (ce terme désignant pour la suite exclusivement les propergols solides composites) permet de prendre la mesure de l’enjeu stratégique et de la difficulté que représente leur optimisation, d’où la nécessité de développer une meilleure compréhension du matériau.

Analyse des propriétés microscopiques influençant le comportement des propergols

Les performances principalement recherchées dans les propergols solides sont leurs propriétés énergétiques bien plus que mécaniques (Davis, 1963). Néanmoins, un défaut de comportement mécanique peut affecter dramatiquement les propriétés balistiques du chargement du fait de l’apparition de fissures. Celles-ci peuvent entraîner une augmentation incontrôlée de la surface de combustion et donc de la pression interne du chargement, perturbant alors le contrôle de la trajectoire voire même l’intégrité de l’ensemble du propulseur (Davis, 1963; Lhuiller *et al.*,

1978). Ainsi, bien que les propriétés mécaniques soient un élément secondaire des propergols, leur optimisation ne doit pas affecter leur intégrité pendant toute la durée de vie du propulseur : de la fabrication (retrait thermique) jusqu'au tir (pression, chocs, vibrations) en passant par le stockage (pesanteur, vieillissement, chocs éventuels). Certains phénomènes ont déjà fait l'objet d'études détaillées, notamment l'effet de la pression (Farris, 1968) ou d'une sollicitation multiaxiale (Traissac, 1995), l'influence du vieillissement (Coquillat, 2007), l'impact des vibrations (Jalocha, 2015), l'effet des chocs (Viant, 2019). Toutes ces sollicitations complexes et critiques peuvent entraîner un endommagement fatal du chargement et doivent donc être prises en compte pour assurer son dimensionnement optimal.

Par ailleurs, les propulseurs les plus élaborés ayant des masses dépassant les centaines de tonnes, leur justification au travers d'essais à l'échelle réelle s'avère coûteuse et difficile à mettre en œuvre. De plus, leur validation sur des périodes parfaitement représentatives (en particulier pour le stockage) est souvent inenvisageable. Ainsi, la simulation du comportement mécanique des propergols (Ozupek et Becker, 1997) et notamment leur endommagement (Xu *et al.*, 2008) est un enjeu capital. Dans ce contexte, **la présente étude a pour but le développement de simulations permettant d'analyser l'influence des propriétés microscopiques sur le comportement global des propergols et notamment sur leur endommagement**, dans la continuité des travaux de Toulemonde (2016). Si de telles démarches ont déjà été proposées en deux dimensions (Matouš et Geubelle, 2006; Inglis *et al.*, 2007; Toulemonde, 2016), rares sont les études qui étendent l'analyse à des structures volumiques tout en les soumettant à de grandes déformations.

L'objectif est ainsi d'aider la formulation de nouveaux propergols en identifiant dans quel mesure les composants influencent le comportement mécanique et l'endommagement du composite, permettant alors la synthèse efficace de matériaux performants avec de bonnes propriétés mécaniques. En outre, il s'agit aussi de permettre aux concepteurs, qui dimensionnent les chargements propulsifs, d'intégrer les comportements primordiaux dans leurs modèles homogénéisés et de développer des approches phénoménologiques performantes.

Extension aux élastomères fortement chargés

Bien que les propergols soient d'abord des matériaux destinés à libérer de l'énergie, ils font partie de la catégorie des élastomères chargés. Néanmoins, ils diffèrent à deux égards de ceux ayant fait l'objet de nombreuses études, en particulier dans l'industrie du pneumatique et des joints caoutchoutiques, et pour lesquels les matériaux contiennent généralement, 20% de fraction volumique de particules nanométriques. En effet, les propergols présentent des fractions volumiques de charges (f_{vol}) qui dépassent les 70% et leur taille est micrométrique. Cependant, d'un point de vue purement mécanique, l'analyse des propergols revient tout de même à considérer un composite à matrice élastomérique très fortement chargée. En effet, au-delà des liaisons chimiques qui modifient l'adhésion liant/charge, le caractère énergétique des particules n'impacte pas le comportement mécanique du matériau. L'étude peut donc s'ouvrir au-delà des propergols en étudiant par extension une matrice polymère très chargée par des particules micrométriques équiaxiales. Cette approche, déjà proposée par Toulemonde (2016), permet une plus grande souplesse en s'affranchissant des risques de sécurité relatifs à la fabrication et la manipulation d'un propergol. Elle rend possible l'élaboration, en laboratoire, de matériaux modèles autorisant l'exploration de l'influence des propriétés morphologiques sur les réponses mécaniques.

De fait, cette approche offre la possibilité de simplifier les compositions afin de réduire le nombre de paramètres matériau pour étudier indépendamment leurs influences. Ainsi, dans la

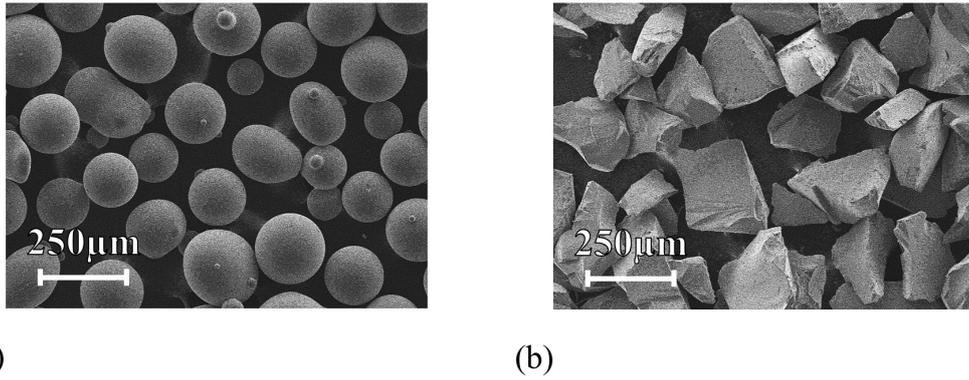


FIGURE 1.6 : Observations MEB des (a) billes de verre et des (b) éclats de verre tamisés introduits dans les matériaux composites modèles. Images obtenues sur le microscope électronique à balayage *Hitachi 4800 II* du laboratoire PIMM (ENSAM, Paris), pour une accélération de faisceau de 3 kV.

mesure où l'endommagement est au cœur des considérations de la présente étude, seul des particules de taille identique ont été introduites dans les matériaux modèles. En effet, il y a un consensus d'une part sur le fait que le dommage est essentiellement dû à la rupture des interfaces liant/charge (décohésion) (Oberth et Bruenner, 1965; Cornwell et Schapery, 1975; Heuillet, 1992), et d'autre part sur le fait qu'il se concentre d'abord autour des particules de grandes tailles (Cornwell et Schapery, 1975; Matouš et Geubelle, 2006; Tao *et al.*, 2013; Toulemonde *et al.*, 2015). Néanmoins, cette approche n'a d'intérêt que si le matériau modèle est capable à la fois de reprendre les marqueurs morphologiques clés des propergols et d'avoir une réponse macroscopique similaire.

Comme détaillé dans la section précédente, les charges couramment utilisées ont une morphologie très différente (observations MEB de la Figure 1.4). Alors que l'effet de la forme de cavités sur le comportement des matériaux poreux est couramment exploré (Anoukou *et al.*, 2018; Mbiakop *et al.*, 2015), rares sont les études qui s'intéressent à l'impact de la forme des charges pour les matériaux énergétiques. Afin d'analyser ces effets, des billes et des éclats de verre tamisés entre 200 et 250 μm , ont été utilisés pour élaborer deux matériaux composites modèles. Des fractions volumiques de particules entre 50 et 55% ont été considérées, en adéquation avec la quantité maximum de grosses particules introduites dans les propergols industriels. Des images MEB de ces particules sont visibles sur la Figure 1.6 et la morphologie des matériaux modèles peut être analysée à partir des tomographies de la Figure 1.7. Ces observations présentent une adéquation remarquable avec la morphologie des propergols (Figure 1.5).

Cependant, si les matériaux modèles semblent reproduire globalement les propriétés morphologiques des propergols, la représentativité de leur comportement mécanique doit aussi être validée au regard de celui des propergols solides.

1.2 Comportements mécaniques

Lors de la présentation des enjeux relatifs à la simulation du comportement mécanique, de nombreuses études ayant analysé les propriétés spécifiques des propergols, ont été évoquées. Ainsi, si le comportement du matériau est surtout piloté par les propriétés de ses constituants principaux, il est aussi fortement influencé par les interactions entre ces éléments.

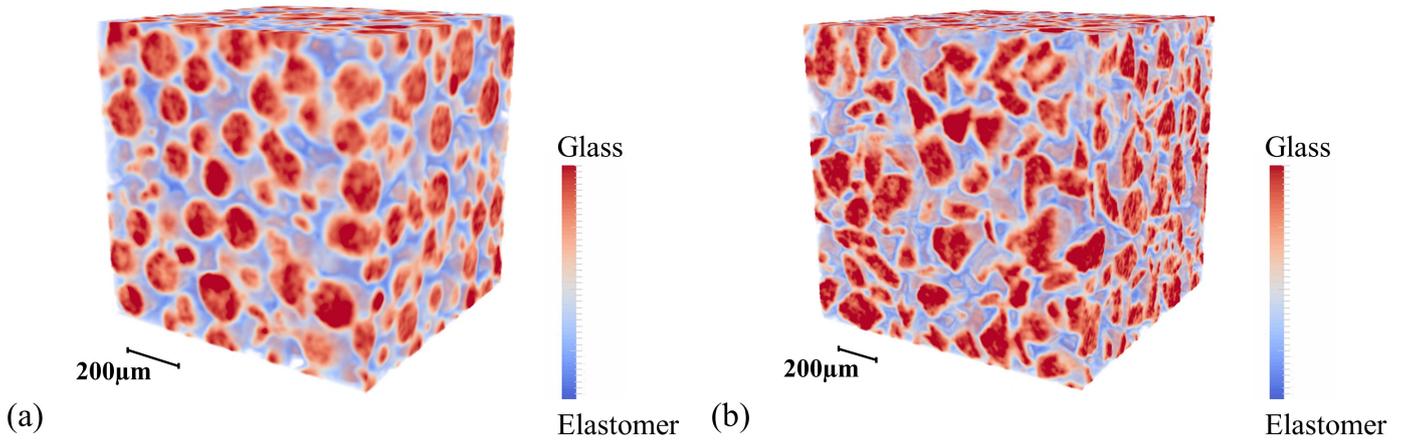


FIGURE 1.7 : Microstructures en trois dimensions obtenues par tomographie (a) du composite modèle avec des billes de verre et (b) du composite modèle avec des éclats de verre pour une fraction volumique de 55% dans les deux cas. Observations obtenues sur le microtomographe *Skyscan 1072* du centre de recherche du Bouchet (CRB, ArianeGroup), avec une résolution de $6.7 \mu\text{m}/\text{vx}$ et des paramètres de source de 65 kV–152 μA .

Il convient de souligner que les caractérisations proposées dans cette section peuvent varier de manière considérable en fonction de la formulation exacte du propergol. Il s'agit donc uniquement de présenter des tendances comportementales et non de détailler des caractérisations quantitatives.

1.2.1 Phases constitutives

Le liant

Le liant caoutchoutique est un élément clé du comportement mécanique des propergols. En effet, de par sa souplesse il va concentrer l'essentiel des déformations. La réponse en traction uniaxiale des deux types de liant, reportée sur la Figure 1.8(a), montre que la principale différence réside dans la déformation à rupture qui est souvent beaucoup plus faible pour les liants nitrés que pour les liants inertes. Cet écart est essentiellement dû au taux de plastifiant, respectivement $\approx 60\%$ contre $\approx 20\%$. En effet, dans la mesure où c'est ce constituant qui confère des propriétés énergétiques au liant nitré, sa concentration est maximisée. Une caractérisation dynamique de ces élastomères permet de mettre en exergue leur comportement viscoélastique linéaire, néanmoins, la réponse des liants de référence sous une sollicitation cyclique est très proche d'un comportement élastique (Figure 1.8(b)). Ainsi, en considérant une température ambiante (20°C), éloignée des températures de transition vitreuse des différents liants (autour de -60°C et -30°C respectivement), et un régime de sollicitation quasi-statique, la viscoélasticité peut être raisonnablement négligée. À noter qu'une analyse très détaillée du comportement viscoélastique des propergols et de leur liant a déjà été proposée par [Jalocha \(2015\)](#). Aussi, afin de limiter les variabilités dans les simulations pour se focaliser exclusivement sur l'endommagement, les propriétés viscoélastiques n'ont pas été prises en compte. Le comportement de la matrice peut donc être considéré comme élastique linéaire en petites déformations et hyperélastique en grandes déformations à température et vitesse de sollicitation fixées (Figure 1.8(a)).

Dans le cas des composites modèles, le comportement uniaxial de la matrice, reporté sur la

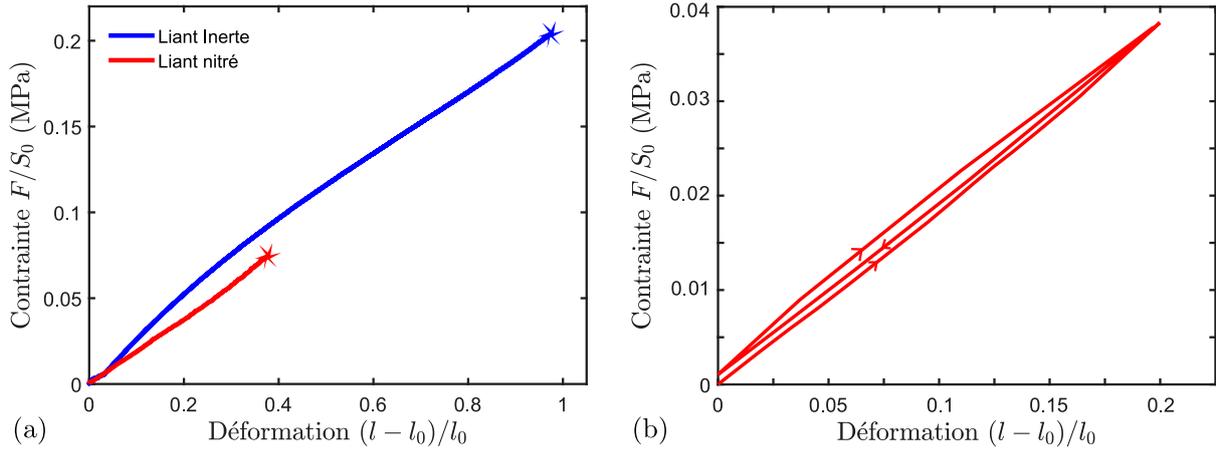


FIGURE 1.8 : (a) Comportements mécaniques en traction uniaxiale à 20°C et $5\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$ de liants inerte et nitré. (b) Réponse sur un cycle de traction à 20°C et $5\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$ d'un liant nitré. Pour l'ensemble des comportements expérimentaux reportés dans ce projet, le symbole \star correspond à la rupture du matériau.

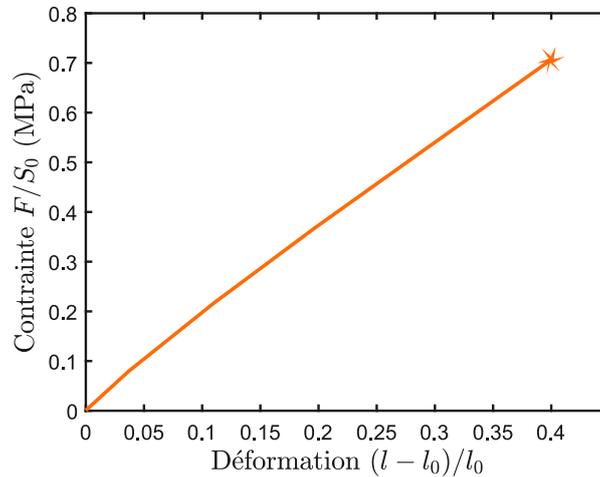


FIGURE 1.9 : Comportement mécanique en traction uniaxiale à 20°C et $0.1\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$ d'un méthacrylate.

Figure 1.9, suit les mêmes tendances que celui des liants malgré une rigidité supérieure d'un peu moins d'un ordre de grandeur. Par ailleurs, sa température de transition vitreuse est aussi inférieure à la température ambiante, bien que sensiblement supérieure au cas des liants (autour de 8°C , Toulemonde (2016)).

Les charges

Les deux familles de charges énergétiques majoritairement utilisées (PA, nitramines) ont une structure cristalline et présentent donc un comportement mécanique similaire, assimilable à une réponse élastique fragile. Étant donné la difficulté à générer des éprouvettes macroscopiques avec ces cristaux, leurs modules de Young ont été estimés par nanoindentation et des valeurs de 16 GPa ($\pm 1\text{GPa}$) pour un RDX avec peu de défauts (Hudson *et al.*, 2012) et de 19.5 GPa pour du PA (Lucca *et al.*, 2006) ont été obtenues.

Le comportement des particules de verre des composites modèles n'a pas été caractérisé précisément et les propriétés standard ont été retenues avec un module de Young de 69 GPa et un coefficient de Poisson de 0.25 (Ashby et Jones, 1981). Dans la mesure où le polymère concentre

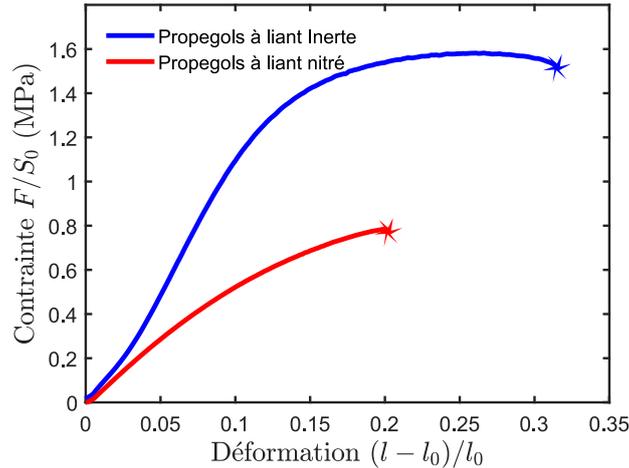


FIGURE 1.10 : Comportements en traction uniaxiale à $50\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$ et 20°C d'un propergol à liant inerte et d'un propergol à liant nitré.

l'ensemble des déformations, c'est surtout l'ordre de grandeur du rapport des comportements des phases qui est important, au-delà des propriétés élastiques exactes des particules. Ainsi, que ce soit pour les composites modèles ou les différents propergols, le contraste de rigidité des deux constituants majeurs est toujours caractérisé par un rapport supérieur à 10^4 .

1.2.2 Comportement global des composites

La répartition aléatoire des charges, recherchée lors de l'élaboration des composites, induit un comportement mécanique isotrope à l'échelle d'un chargement. Cette absence de direction privilégiée est considérée comme une propriété élémentaire des propergols sains (Evans et Pister, 1966; Jung et Youn, 1999; Jung *et al.*, 2000; Yun *et al.*, 2016).

Grandes déformations et endommagement

Les réponses macroscopiques jusqu'à rupture de propergols, reportées sur la Figure 1.10, met en évidence un comportement très différent entre les deux familles de matériau. Ainsi, les propergols à liant nitré ont une déformation à rupture bien plus faible, notamment du fait de la ruine précoce de leur matrice élastomérique (Figure 1.8(a)). De plus, les comportements sont affectés par un phénomène d'adoucissement avant rupture ; cependant il conduit à des contraintes maximales très différentes. Heuillet (1992) a étudié la manière dont un propergol à liant nitré consomme ou stocke l'énergie, lorsqu'il subit un chargement mécanique. Après avoir confirmé que la courbe d'une traction monotone constitue l'enveloppe d'une sollicitation cyclique, il a cherché à identifier, à partir du cyclage, les énergies entrant en jeu dans le comportement des propergols. Ainsi, en combinant une sollicitation cyclique primaire, destinée à stabiliser le matériau, puis un cyclage incrémental, il a pu identifier une énergie d'endommagement, une énergie due majoritairement aux phénomènes viscoélastiques et enfin une énergie élastique. Cette identification et le synopsis des déplacements associés sont reportés sur la Figure 1.11. Dans son étude, une attention toute particulière a été portée à la prise en compte des phénomènes de recouvrance qui interviennent dans le matériau viscoélastique et qui pourrait entraîner une surestimation de l'énergie d'endommagement. Une phase de chargement mécanique après 24h de repos est donc réalisée pour chacune des sollicitations (de manière directe pour la sollicitation primaire et de manière indirecte pour la sollicitation incrémentale). Il semble que, pour le propergol étudié, il

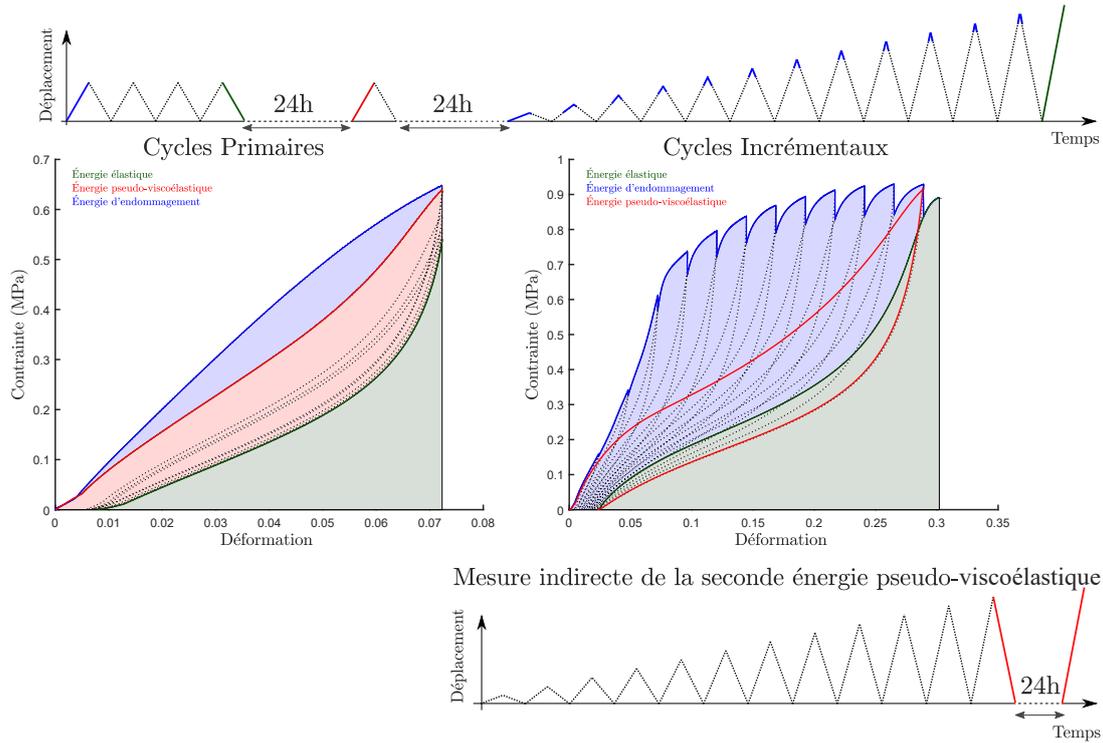


FIGURE 1.11 : Synopsis des sollicitations cycliques proposés par Heuillet (1992) pour mettre en évidence l'endommagement des propergols et identification des énergies dissipées/stockées d'un propergol à liant inerte.

y ait une répartition équivalente entre les trois types d'énergies identifiées.

Par ailleurs, les décohésions à l'échelle microscopique ont été identifiées comme source principale de l'endommagement des propergols (Oberth et Bruenner, 1965; Cornwell et Schapery, 1975; Bencher *et al.*, 1995; Tao *et al.*, 2013). Heuillet associe donc l'ensemble de l'énergie d'endommagement à la rupture d'interface liant/charge.

Les différences d'évolution de l'adoucissement des propergols (Figure 1.10) mettent alors en évidence, pour chacun d'eux, un développement spécifique de l'endommagement. Ainsi, cette approche a été brièvement étendue à l'analyse de propergols à liant inerte. Si une réponse similaire a été obtenue avec la même répartition d'énergie (Figure 1.11), des valeurs quantitativement bien plus importantes ont été enregistrées.

Ces analyses permettent de mettre en exergue l'importance des phénomènes d'endommagement dans le comportement des propergols ($\approx 1/3$ de l'énergie totale en jeu), mais aussi de proposer les premiers liens entre la réponse macroscopique du matériau et les phénomènes intervenant à l'échelle microscopique. Cependant, le processus d'évaluation des énergies stockées et consommées par le matériau proposé par Heuillet reste complexe à mettre en œuvre du fait de la dispersion des propriétés effectives des propergols. De plus, cette approche ne permet qu'une estimation des énergies après rupture et le lien avec l'adhésion à l'échelle microscopique repose sur de lourdes hypothèses (pas d'énergie consommée par l'endommagement du liant).

Ainsi, afin d'estimer continûment l'état d'endommagement du matériau, directement relié à l'apparition de décohésions liant/charge, Farris (1964) a proposé de suivre la variation de volume du matériau au cours d'une sollicitation mécanique. Le composite étant considéré comme quasi-incompressible, la seule variation de volume peut donc être attribuée à l'apparition de décohésions au sein de la structure. Des évolutions telles que celles reportées sur la Figure 1.12 peuvent alors être obtenues que ce soit pour un propergol ou même un des composites modèles. On note une

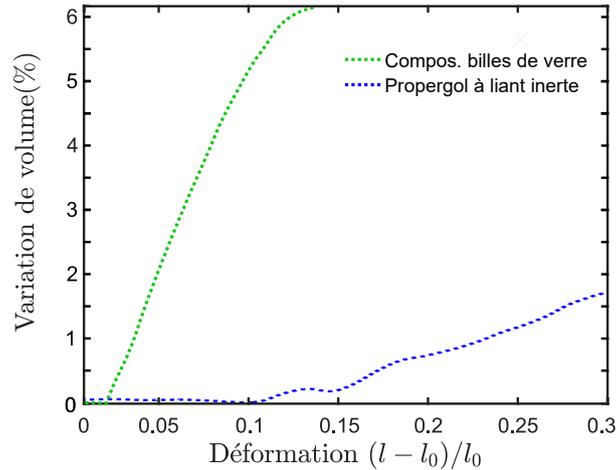


FIGURE 1.12 : Variation de volume en traction uniaxiale à 20°C et $0.1\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$ d'un propergol à liant inerte et du composite modèle avec billes (Toulemonde, 2016).

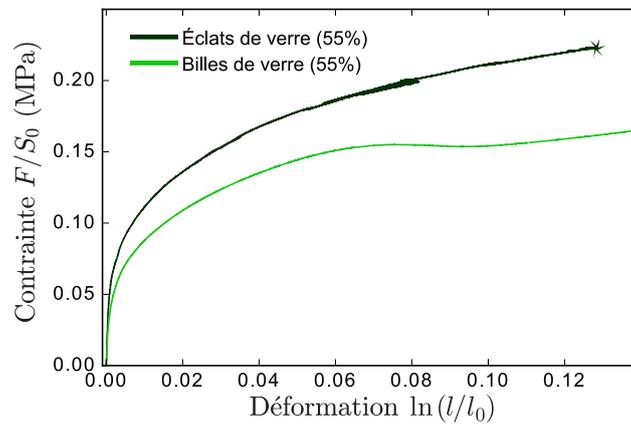


FIGURE 1.13 : Comportements en traction uniaxiale à 20°C et $0.1\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$ de trois échantillons de chacun des composites modèles.

première phase sans variation de volume, correspondant au comportement linéaire du matériau sain, puis une dilatation globale due à l'endommagement par décohésions. Cette propriété est ainsi massivement utilisée comme un paramètre global de suivi continu de l'endommagement du matériau. Heuillet (1992) a d'ailleurs proposé un modèle phénoménologique pour estimer l'évolution continue de l'énergie d'endommagement à partir de ce paramètre. Au-delà des propergols, ce type d'approche est couramment utilisé pour analyser les phénomènes d'endommagement par coalescence dans les polymères (Lawrimore II *et al.*, 2016).

Les réponses en grandes déformations des matériaux composites modèles sont aussi reportées sur la Figure 1.13. Cette réponse est tout à fait cohérente avec les tendances générales du comportement des propergols (Figure 1.10). Quelques soient les particules introduites, les matériaux ont tous un comportement initial linéaire suivi d'un adoucissement vraisemblablement dû à la décohésion matrice/particule. En effet, Toulemonde (2016) a étudié la variation de volume sous sollicitation pour ces composites simplifiés et a obtenu une évolution similaire à celle des propergols (Figure 1.12), bien que leurs amplitudes soient différentes.

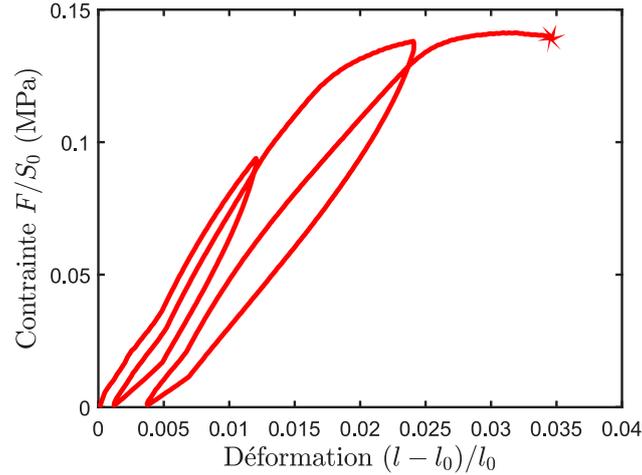


FIGURE 1.14 : Comportement mécanique sous sollicitation cyclique jusqu'à rupture à 20°C et 5mm.min⁻¹ d'un propergol à liant nitré.

Non-linéarités de comportement

Malgré la faible proportion de liant élastomérique dans le composite, ce dernier impacte au premier ordre la réponse mécanique des propergols. Ils ont ainsi un comportement viscoélastique (Lepie et Adicoff, 1974). Par ailleurs, l'équivalence temps/température reste valide pour le composite (Nevière, 2006), permettant l'obtention de courbes maîtresses de modules de conservations et de pertes en viscoélasticité linéaire. Néanmoins, contrairement au liant, la réponse du composite présente de nombreuses non linéarités qui ont été analysées et modélisées dans le cadre des petites déformations (Azoug, 2010; Jalocha, 2015). Comme justifiés précédemment, ces phénomènes visqueux et les non linéarités associées seront négligés dans la présente étude au profit de l'endommagement.

Cependant, si on s'intéresse spécifiquement à la viscoélasticité, on peut noter que l'équivalence temps/température du propergol est limitée à des vitesses de sollicitations faibles (Nevière, 2006). De plus, le comportement cyclique du matériau reproduit les variations de rigidité mises en évidence par Mullins (1969) pour des caoutchoucs chargés au noir de carbone. Après une première sollicitation, la rigidité initiale du composite s'adoucit lors de la phase de décharge et lors de la recharge suivante. Par la suite, une fois le déplacement maximum du cycle précédent atteint le matériau rejoint le comportement initial (Figure 1.14). Ce type de comportement a fait l'objet de nombreuses études particulièrement dans le cadre de l'industrie du pneumatique (Diani *et al.*, 2013; Chai *et al.*, 2013). Néanmoins, certainement du fait des différences de ces matériaux avec les propergols, ces derniers ne reproduisent pas exactement le même comportement cyclique que les élastomères chargés. En effet, les analyses de variation de volume d'un élastomère chargé au noir de carbone ($f_{vol} < 30\%$) ont montré une évolution très singulière (Figure 1.15(a)) : lors de la charge initiale, une variation de volume est enregistrée à partir d'un premier seuil de déformation. Après une phase de décharge/recharge, la déformation seuil à partir de laquelle une nouvelle variation de volume sera enregistrée est modifiée et correspond à la déformation maximum atteinte au cycle précédent (Crevoisier *et al.*, 2012; Zhang *et al.*, 2013). Dans le cas des propergols, la variation de volume est enregistrée pour des seuils de déformations équivalents, quel que soit le cycle de chargement mécanique, comme le montre la Figure 1.15(b). Ainsi, l'analyse du comportement cyclique des propergols constitue à elle-seule un sujet de recherche, bien qu'elle puisse s'appuyer sur les travaux déjà proposés pour les caoutchoucs. Contrairement à l'effet Mullins classique, l'origine physique du phénomène qui affecte les propergols n'a pas

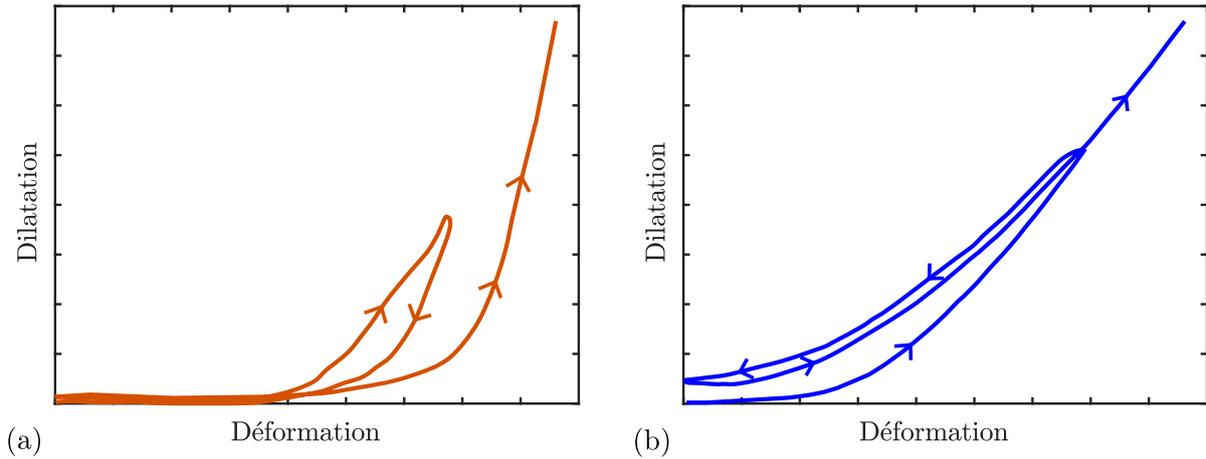


FIGURE 1.15 : Évolution schématique de la variation de volume sous sollicitations cycliques (a) d'un propérol (d'après [Tunç et Özüpek \(2017\)](#)) (b) d'un caoutchouc chargé au noir de carbone (d'après [Zhang *et al.* \(2013\)](#)).

encore été clairement identifiée.

Par ailleurs, le matériau présente de l'effet [Payne \(1962\)](#). Ce phénomène peut être caractérisé lors de sollicitations dynamiques ([Jalocha, 2015](#)) ; il traduit une influence de l'amplitude de la sollicitation sur la rigidité du matériau, en plus de l'impact de la température et de la fréquence. Cet effet, caractéristique des élastomères chargés, est d'autant plus marqué que la fraction volumique de particules est importante. À l'inverse de l'effet Mullins, il semble que ce phénomène ne soit pas dépendant de la taille des charges. Ainsi, il existe de la même façon tant pour des charges nanométriques que pour des charges micrométriques, cependant son origine physique est toujours en cours d'analyse ([Höfer et Lion, 2009](#)).

Enfin, si on s'intéresse à une sollicitation multiaxiale, [Farris \(1968\)](#) a démontré que l'application d'une pression hydrostatique entraîne un raidissement important du propérol et une modification globale de son comportement. On parle alors d'un effet pression dont l'impact est loin d'être anodin notamment pendant les phases de tir où la pression du moteur augmente considérablement. [Jalocha \(2015\)](#) a complété ces analyses en étudiant en détails l'effet d'un chargement mécanique biaxial sur la viscoélasticité. Néanmoins, très peu d'études sont consacrées au comportement multiaxial des propérols qui reste un domaine à explorer, d'autant plus que [Traissac \(1995\)](#) a démontré la nécessité de prendre en compte la triaxialité des contraintes pour construire leur enveloppe de rupture.

En plus des non-linéarités de comportements macroscopiques, le très fort contraste des phases du matériau peut induire la présence d'interphases dont l'impact important sur le comportement global a été démontré, notamment par [Spring et Paulino \(2015\)](#) et [Toulemonde \(2016\)](#), en particulier en cas de percolation. L'existence de ce phénomène a été caractérisé par analyse AFM sur composition propérol présentant des épaisseurs d'interphases radicalement différentes en fonction de la nature du liant (Figure 1.16). Cette interphase pourrait être à l'origine de l'effet pseudo-Mullins des propérols décrit plus tôt.

1.2.3 Lien vers l'échelle microscopique

Le risque que peut induire un endommagement non contrôlé réside notamment en l'augmentation de la surface de combustion (fissure, décohésion) qui peut créer une surpression et finalement l'éclatement du propulseur.

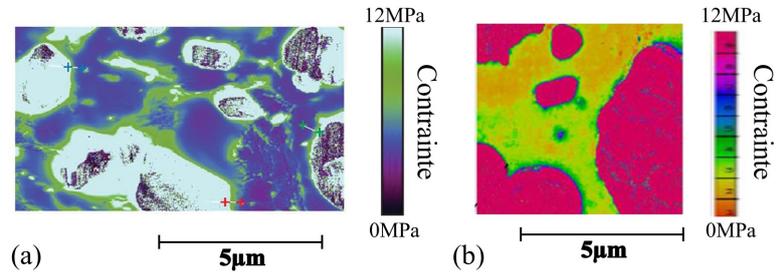


FIGURE 1.16 : Observations AFM des petites particules (a) de compositions à liant inerte avec des interfaces importantes et percolantes et (b) de composition à liant nitré pour lequel les interfaces sont quasiment absentes. Les analyses ont été réalisées sur deux appareils différents d'où la modification des échelles de couleur (ArianeGroup).

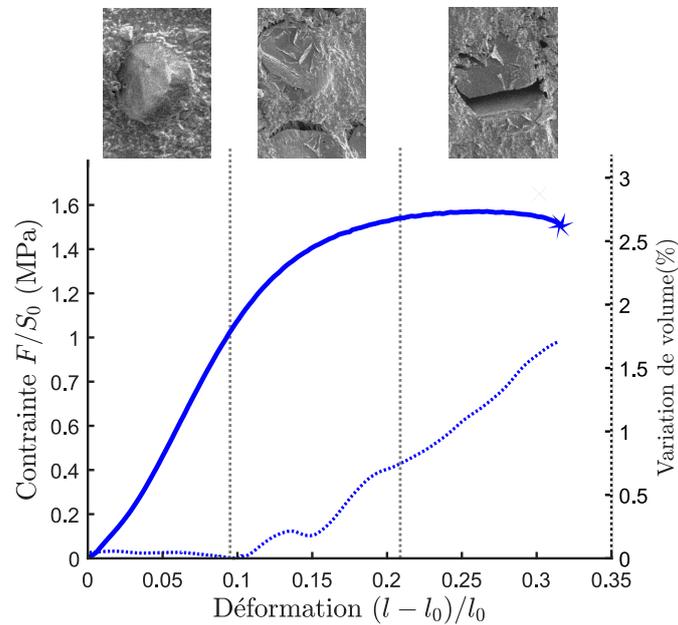


FIGURE 1.17 : Comportement en traction uniaxiale à $5\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$ et 20°C d'un propergol à liant inerte avec suivi de sa variation de volume. Les liens avec les phénomènes microstructuraux sont illustrés par des observations MEB réalisées au début de chacune des étapes de l'endommagement.

De ce fait, la compréhension de l'endommagement, qui est majoritairement causé par les décohésions, est capitale pour les propergols. Les études les plus récentes ont donc cherché à établir des liens entre ce phénomène microscopique et le comportement global du composite (Toulemonde, 2016). Nevière (2006) et Azoug (2010) ont ainsi proposé une première décomposition du comportement des propergols, celle-ci ayant été par la suite enrichie grâce aux études postérieures (Figure 1.17) :

- Aux petites déformations, la réponse du composite est presque linéaire et, du fait de son caractère quasi-incompressible, aucune variation de volume n'est enregistrée. L'adhésion liant/charge permet la transmission des efforts sans décohésion, le matériau est sain.
- Pour un niveau de déformation supérieur, on note un assouplissement de la réponse du matériau et un début de variation de volume. Les observations MEB sur matériau chargé révèlent l'apparition de décohésions (en surface). Ces analyses confirment le lien entre l'adoucissement et la variation de volume à l'échelle macroscopique et l'apparition de décohésions liant/charge. Dans certains cas, pour ce niveau de sollicitation, des fibrilles sont visibles dans les décohésions (observation MEB du milieu de la Figure 1.17). Elles permettent une transmission réduite, mais persistante, des efforts.
- Pour des déformations proches de la rupture, la variation de volume suit une évolution quasi-linéaire alors que le comportement atteint un plateau. Ce phénomène est classiquement relié à la fois à l'accroissement des décohésions qui sont dans ce cas complètes (Nevière, 2006) et la coalescence des interfaces rompues qui induisent localement des fissures (Oberth et Bruenner, 1965). Il semble que ces phénomènes soient responsables d'une localisation instable que Toulemonde (2016) associe à la rupture du matériau.

La localisation à l'échelle microscopique et la rupture finale sont en effet liées. À partir de travaux de Liu *et al.* (2004), ce phénomène a été considéré comme un critère de rupture dans les simulations de Toulemonde (2016). Néanmoins, des analyses par corrélation d'images sur propergols ont révélé que des localisations interviennent à de multiples endroits et bien avant la rupture. Comme on peut l'observer sur la Figure 1.18(a) et (b), ce phénomène est présent aussi bien dans les compositions à liant inerte et que celle à liant nitré, mais il les affecte d'une manière très différente. Les analyses MEB sur échantillons maintenus en relaxation ont également révélées la présence de nombreuses localisations à l'échelle microscopique, bien avant qu'intervienne la rupture (Figure 1.18(c)). Ces observations remettent en question le lien exclusif entre localisation et rupture globale du propergol. Néanmoins, elles confirment l'intervention des coalescences évoquées par Oberth et Bruenner (1965) lors de la dernière phase du comportement du matériau.

Pour compléter la validation de la cohérence des matériaux modèles vis-à-vis des propergols, des liens similaires ont été établis avec le composite chargé en particules sphériques. Des observations tomographiques ont été menées sur une éprouvette maintenue en relaxation par deux plaques de verre afin de ne pas perturber les acquisitions (Toulemonde, 2016). Des coupes échantillonnées à l'état initial puis à 5, 10 et 15% sont reportées sur la Figure 1.19. À l'état initial, seul les particules (blanc) et la matrice (gris) sont visibles. À 5% de déformation, de nombreuses cavités (noir) sont réparties de manière homogène dans le matériau, localisées à l'interface matrice/particule alors que la réponse du matériau s'est adoucie (Figure 1.13). Par la suite à 10% de déformation, quelques zones de localisation de l'endommagement peuvent être dénombrées, vraisemblablement dû à la coalescence de décohésions. À l'échelle macroscopique, elles interviennent au niveau de déformation pour lequel le comportement macroscopique est affecté par l'infection singulière évoquée précédemment (Figure 1.13). Enfin, lorsque le matériau est proche de la rupture (15% de déformation), le nombre de zones de localisation est largement supérieur.

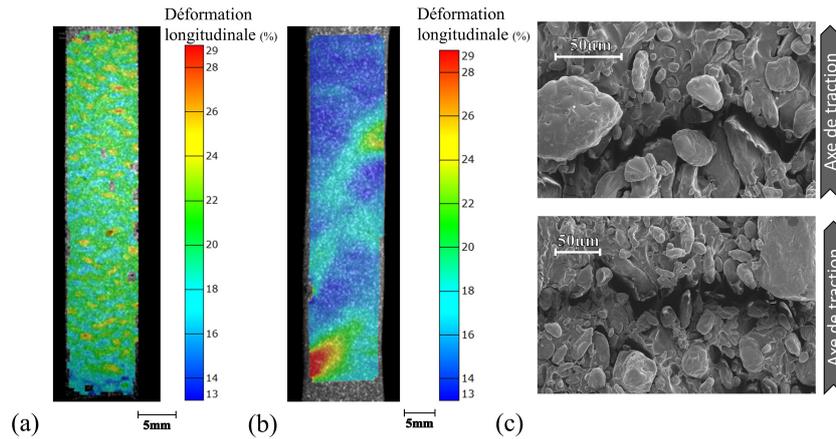


FIGURE 1.18 : Localisations intervenant pour des déformations au moins 20% inférieures à la rupture : (a) Champs de déformation longitudinale d'un propergol à liant inerte soumis à une traction (20%), de nombreuses zones ponctuelles de localisation sont réparties uniformément. (b) champs de déformation longitudinale d'un propergol à liant nitré soumis à une traction (16%), trois zones de localisation macroscopique sont visibles. (c) Observations MEB d'un propergol à liant nitré sollicité en traction uniaxiale (7%), la localisation de l'endommagement par coalescence des décohésions est nettement visible. Images obtenues sur le MEB Zeiss JSM-6510 du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 10 kV.

Deux sont visibles sur la dernière coupe de la Figure 1.19, bien que leur ouverture (mode I) respective semble être restée constante. Ainsi, les différentes observations du composite sous sollicitation mécanique démontrent d'une part un lien clair entre la réponse globale du matériau et les modes d'endommagement à l'échelle microscopique, d'autre part une cohérence remarquable avec l'endommagement des propergols à l'échelle des inclusions. Enfin, malgré l'intervention de localisations dès 10% de déformation, la rupture a lieu au-delà de 15% de déformation. Cette observation souligne une fois encore la complexité de la définition d'un critère de rupture à partir de la simple observation de localisation.

Les matériaux modèles reproduisent ainsi de manière satisfaisante les propriétés clés des propergols, en particulier au niveau de l'endommagement et quel que soit l'échelle d'analyse. Ils constituent donc un outil d'intérêt pour caractériser les propriétés morphologiques qui affectent leur comportement. Néanmoins, ils ne sauraient se substituer à des outils de simulation numérique qui sont utiles dans un premier temps à la compréhension des comportements mécaniques et dans un second temps à leur prédiction.

1.3 Simulation micromécanique

La nécessité de modéliser le comportement mécanique des propergols est freinée par leur complexité largement détaillée en section 1.2. Ainsi la modélisation s'est originellement reposée sur une approche phénoménologique pour permettre le dimensionnement des propulseurs. Néanmoins, les liens entre les propriétés microstructurales et la réponse globale, évoqués dans la section précédente, ont conduit au développement de nouvelles approches dites micromécaniques. Ces dernières reposent sur une simulation plus ou moins exhaustive d'une cellule élémentaire reprenant certains des composants du propergol de façon à analyser leur impact sur la réponse globale de la structure : le comportement homogène du matériau. Ce type de démarche de simulation,

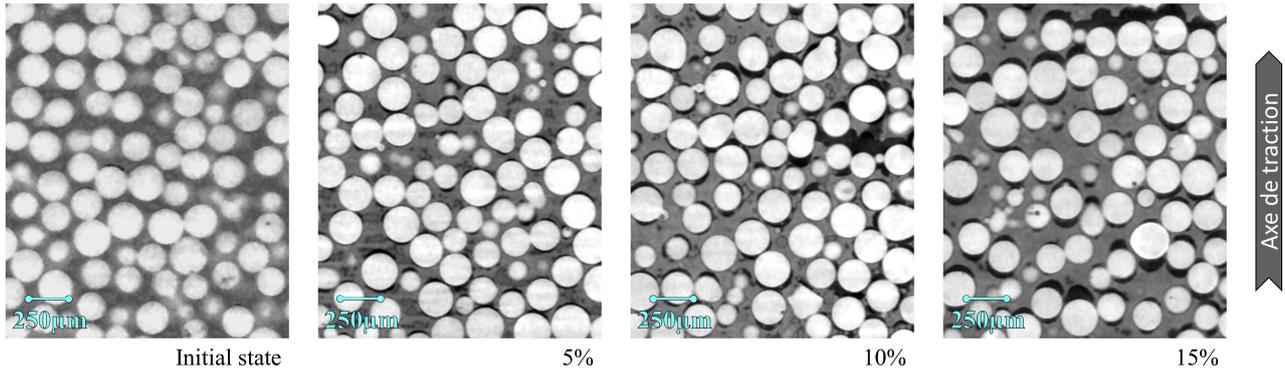


FIGURE 1.19 : Coupes issues de microtomographies du composite modèle chargé avec des billes dans son état initial puis à 5%, 10% et 15% de déformation uniaxiale. Observations obtenues sur le microtomographe *Ultratom* développé par RX-Solutions du laboratoire Navier (École nationale des ponts et chaussées ParisTech), pour les paramètres de source de 73 kV–70 μ A (Toulemonde, 2016).

initié analytiquement par Eshelby (1957), suit alors un processus classique d’homogénéisation que Bornert (2001) a proposé de diviser en considérant la séquence suivante :

- En premier lieu, les propriétés de chaque constituant doivent être identifiées ainsi que leur dispersion dans le composite (analyse morphologique). À partir de cette caractérisation et éventuellement de la littérature, un volume élémentaire représentatif (VER) doit être généré en reprenant au moins les propriétés impactant au premier ordre le comportement à analyser.
- Dans un second temps, une analyse mécanique, qu’elle soit numérique ou analytique doit permettre d’estimer l’hétérogénéité des champs mécaniques au sein du VER. Cette étape permet de prendre en compte une éventuelle modification du comportement des matériaux si, du fait d’une localisation, ils subissent des déformations locales bien supérieures à celles appliquées globalement. Par ailleurs, l’endommagement à l’échelle des constituants peut aussi être considéré à ce stade de la simulation.
- Enfin en se focalisant sur la réponse macroscopique du VER, c’est à dire en moyennant les hétérogénéités précédemment évaluées, une réponse du matériau est obtenue. Elle peut alors être utilisée pour développer des modèles homogénéisés compatibles avec le dimensionnement d’un chargement.

Le projet détaillé ici se focalise exclusivement sur la mise en œuvre des deux premières étapes de ce processus afin de poser de solides bases pour le développement de futures lois phénoménologiques (dernière étape). Seuls les paramètres ayant un impact de premier ordre ont été sélectionnés en vue d’établir une démarche complète avec un minimum de variables. C’est dans cet esprit que les matériaux composites modèles ont été élaborés avec une seule taille de particules, contrairement à la morphologie réelle des propergols, et que les effets de la viscoélasticité ont été négligés.

1.3.1 Approches semi-analytiques

Les nombreuses démarches qui ont été entreprises afin de simuler le comportement endommageable des élastomères chargés, ont été fondées sur des hypothèses simplificatrices de niveaux très variables. Si les approches analytiques d’homogénéisation sont courantes pour les matériaux hétérogènes, l’intégration de l’endommagement nécessite souvent de les combiner à des approches

phénoménologiques. Ainsi [Xu *et al.* \(2008\)](#) proposent de fixer une déformation limite à l'interface des particules à partir de laquelle ces dernières seront supprimées pour simuler la décohésion. [Hur *et al.* \(2016\)](#) proposent, par la suite, d'étendre la simulation en prenant en compte la viscoélasticité de la matrice. Bien que cette approche soit très simplificatrice, elle a démontré une capacité intéressante à reproduire certains résultats expérimentaux. En parallèle, une formulation a été développée par [Dvorak et Zhang \(2001\)](#) à partir de la démarche d'homogénéisation d'[Eshelby \(1957\)](#). Elle a permis de retrouver une tendance tout à fait cohérente avec les caractérisations expérimentales de [Vratsanos et Farris \(1993\)](#). En outre, [Tan *et al.* \(2007\)](#) et plus tard [Ngo *et al.* \(2010\)](#) ont choisi d'intégrer un modèle de zone cohésive à un calcul analytique. Ils retrouvent alors de manière particulièrement satisfaisante l'influence de la taille des particules sur la réponse homogénéisée du matériau.

Néanmoins, l'ensemble de ces formulations sont restreintes aux petites déformations, notamment parce qu'elles sont majoritairement développées pour les élastomères très fortement chargés (près de 95% de charges) en particulier les PBX. Ainsi, elles ne peuvent prendre en compte l'influence des grandes déformations sur l'endommagement.

De la même façon, à partir d'une représentation morphologique proposée par [Christoffersen \(1983\)](#), les équipes du CEA Gramat ont développé une approche semi-analytique dans laquelle les particules polyédriques sont séparées par de fines couches de matrice d'épaisseur constante (variable d'une couche à l'autre). [Nadot-Martin *et al.* \(2003\)](#) ont proposé une première formulation incorporant la viscoélasticité de la matrice permettant d'aboutir à un comportement homogénéisé à partir d'une description cinématique simplifiée fondée sur une linéarisation par morceaux du champ de déplacement local. Cette démarche a été étendue en transformations finies par [Nadot-Martin *et al.* \(2008\)](#) en considérant le comportement de la matrice hyper- puis viscohyperélastique et [Dartois *et al.* \(2013\)](#) ont introduit une variable d'endommagement local à partir de la définition d'une distance critique entre les particules. Bien qu'elle ait permis de reproduire quantitativement l'impact de certaines propriétés morphologiques (taille et orientation des interfaces) sur la réponse du matériau et la chronologie de l'endommagement ([Trombini *et al.*, 2015](#)), la démarche reste contrainte par la configuration de base de [Christoffersen \(1983\)](#) sans possibilité de considérer une couche non uniforme de matrice entre les particules. Or cette configuration est peu cohérente avec la conformation réelle des propergols solides (Figure 1.5(b)) ou même du matériau composite simplifié observable sur la Figure 1.7(b).

Pour gagner en flexibilité et prendre en compte les différentes configurations morphologiques tout en menant des analyses en grandes déformations, des simulations purement numériques sont souvent envisagées.

1.3.2 Simulation numérique

Dans le cadre des simulations micromécaniques numériques, le composite est considéré comme une structure constituée des composants en interactions les uns les autres, elles s'appuient donc sur des microstructures représentatives du matériau cible. Le plus souvent la dispersion des charges est simplifiée pour ne considérer qu'une ou deux tailles de particules, néanmoins, pour ces approches, seule de faibles fractions volumiques sont généralement prises en compte.

La complexité des morphologies simulées a suivi l'évolution des capacités de calcul, qui s'avèrent être un facteur très limitant avec ce type d'approche. Les premières simulations de [Zhong et Knauss \(1997\)](#) ont proposé d'étudier le comportement en deux dimensions d'une unique particule sphérique en utilisant un modèle de zone cohésive, pour simuler l'endommagement par décohésion matrice/charge. Par la suite, ils ont étendu leur approche en considérant une réparti-

tion ordonnée de sphères tout en étudiant deux tailles de particules (Allan Zhong, 2000). Enfin, Matouš et Geubelle (2006) ont proposé une extension en trois dimensions, que ce soit pour une seule sphère ou une répartition ordonnée. Néanmoins, de même que pour la simulation analytique reposant sur Christoffersen (1983), une répartition ordonnée de sphères ne permet pas de reproduire les configurations réellement présentes dans le matériau, au-delà de la forme des charges.

En effet, une organisation ordonnée limite l'hétérogénéité des champs mécaniques simulés. Ainsi Segurado et LLorca ont à la fois généré des microstructures aléatoires avec une trentaine de sphères (Llorca et Segurado, 2004) et proposé une formulation d'un élément cohésif en trois dimensions pour simuler l'endommagement (Segurado et LLorca, 2004). Ils restreignent leur analyse à des microstructures ayant une fraction volumique maximum de 30% de particules. À partir de leurs travaux, Matouš *et al.* (2007) puis Moraleda *et al.* (2009) ont réalisés des simulations en deux dimensions pour étudier soit un propergol, soit un composite à fibres longues, avec des fractions volumiques allant jusqu'à 45%. Inglis *et al.* (2007) proposent de leur côté de relier les approches d'homogénéisation numérique aux approches analytiques en comparant le modèle de Tan *et al.* (2007) et une simulation éléments finis en deux dimensions avec des éléments cohésifs. Cette approche est limitée aux petites déformations, mais elle considère de très fortes fractions volumiques de particules (jusqu'à 80%). Ils démontrent que, si les comportements homogénéisés obtenus sont cohérents, la simulation éléments finis permet de mieux analyser les phénomènes intervenant à l'échelle de la microstructure. Ainsi cette étude évoque la possibilité d'établir des liens entre les phénomènes intervenant à l'échelle microscopique et le comportement global, tous deux étant obtenus numériquement.

Toujours dans le cadre de la simulation des PBX, Yan-Qing et Feng-Lei (2009) et Arora *et al.* (2015) proposent d'extraire expérimentalement (à partir d'observations MEB) des microstructures pour réaliser des simulations numériques avec zones cohésives, les particules sont alors irrégulières et avec une forte fraction volumique. De façon à négliger l'impact des petites particules (notamment l'aluminium) dans l'endommagement uniquement, Arora *et al.* (2015) proposent d'utiliser un modèle homogénéisé de comportement pour la matrice chargée en petites particules. Les tendances spécifiques des comportements expérimentaux peuvent être retrouvées avec ces approches et elles concluent que les sommets des particules sont des lieux privilégiés d'initiation de l'endommagement. Néanmoins, la représentativité des microstructures simulées est peu étudiée et l'extension de cette approche en trois dimensions n'est pas évidente.

Ainsi, bien que de nombreuses simulations aient été proposées, elles se focalisent sur les PBX et sont donc restreintes aux petites déformations ou bien elles ne considèrent que de faibles fractions volumiques. Toulemonde (2016) propose des simulations en grandes déformations de l'endommageant des propergols à l'aide de zone cohésive sur des structures en deux dimensions. Ces simulations ont permis de comprendre l'influence de nombreuses propriétés morphologiques sur le comportement global du matériau. Néanmoins, l'extension vers une simulation volumique s'est heurtée aux divergences de calcul et à la complexité de la génération de structures représentatives.

En effet, qu'elles soient menées en deux ou en trois dimensions, les simulations numériques nécessitent des cellules élémentaires reprenant les caractéristiques morphologiques du matériau composite simulé. Drugan et Willis (1996) ont montré que restreindre la simulation à quelques douzaines de particules permet d'obtenir une bonne estimation moyenne des propriétés en élasticité linéaire, malgré les dispersions. Celles-ci sont d'autant plus faibles qu'un nombre important de particules est considéré. Ainsi, à partir de leurs travaux et étant donné les capacités limitées de calcul, une approche classique consiste à ne pas considérer un seul grand volume avec

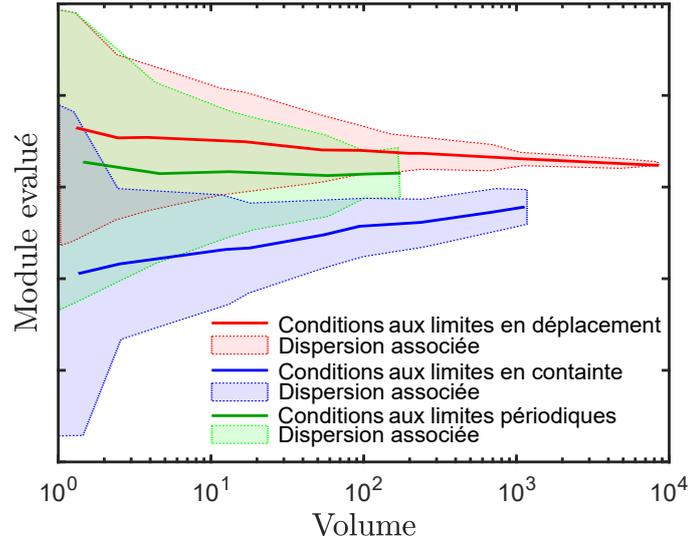


FIGURE 1.20 : Influence schématique des conditions aux limites sur l'estimation des propriétés élastiques d'une microstructure (d'après Kanit *et al.* (2003)). L'effet de la taille de la structure sur la dispersion des propriétés est aussi nettement visible.

une excellente représentativité, mais à réaliser une étude statistique sur des volumes plus petits avec une représentativité moindre, quoique tout de même contrôlée. La démarche invite alors à se focaliser sur les propriétés moyennes plutôt que sur leur dispersion. On parle dans ce cas de volume élémentaire statistique bien que, par extension, l'appellation volume élémentaire représentatif reste couramment employée. Par ailleurs, comme l'ont démontré les travaux de Kanit *et al.* (2003), en fonction des conditions aux limites imposées aux cellules élémentaires, le comportement moyen est soit surestimé (conditions aux limites uniformes en déplacement) soit sous-estimé (conditions aux limites uniformes en contrainte) comme le montre la Figure 1.20. Les deux évolutions tendent vers une asymptote pour un VER de très grande taille. Ils ont aussi démontré que la prise en compte de conditions aux limites périodiques permet d'obtenir un comportement médian par rapport aux estimations calculées avec les deux autres types de conditions aux limites et ce, quel que soit le nombre de particules considérées (Figure 1.20). Ce comportement intermédiaire est très proche des propriétés asymptotiques vers lesquelles tendent les deux autres jeux de conditions aux limites pour de grand volumes. Ainsi la prise en compte de conditions aux limites périodiques permet d'obtenir une estimation précise des propriétés élastiques avec un faible nombre de particules, malgré une dispersion importante. Cette analyse confirme la cohérence des résultats de l'étude de Gusev (1997) qui sert de référence pour la simulation de cellules chargées avec des sphères monodisperses. Elle démontre que considérer une soixantaine d'inclusions, avec des conditions aux limites périodiques, permet d'obtenir une bonne évaluation des propriétés moyennes avec une convergence intéressante sur les niveaux de dispersion.

Il convient de noter que lorsque des particules très élancées sont considérées, elles ont tendance à traverser l'ensemble de la microstructure. Dans ce cas, la condition de périodicité entraîne un risque très important de blocage géométrique, en particulier pour des fibres avec longueur tendant vers l'infini. Ainsi la mise en œuvre des conditions aux limites périodiques dans la présente configuration est facilitée par le faible élanement des inclusions. Dans le cas de la simulation de composites à fibres longues, cette solution ne peut être appliquée et la taille des VER doit être largement supérieure (Dirrenberger *et al.*, 2014).

1.3.3 Génération de microstructure

L'introduction de conditions aux limites périodiques permet de réaliser les simulations sur des VER de tailles raisonnables. Néanmoins, elles impliquent nécessairement une périodicité géométrique des cellules, empêchant une extraction directe des microstructures sur la base de tomographie ou d'autres techniques d'imagerie (Louis et Gokhale, 1995; Buffière *et al.*, 2008; Maire *et al.*, 2003; Tarel *et al.*, 2011). Cette contrainte s'ajoute à la nécessité de retranscrire les propriétés morphologiques du propergol. L'étape de génération devient alors une phase importante de la simulation numérique, d'autant que les contraintes morphologiques sont loin d'être anodines : fraction volumique de particules identiques de 55% avec une dispersion aléatoire pour assurer l'isotropie des VER. Ainsi de nombreuses approches ont été proposées se focalisant majoritairement sur les particules sphériques ou ellipsoïdales tant pour simuler des inclusions (Jouan *et al.*, 2018) que des cavités (Anoukou *et al.*, 2018).

Analyse de l'étape de génération

La méthode de génération la plus courante est l'ajout aléatoire séquentiel (Random Sequential Addition, RSA) proposée par Widom (1966) : chaque particule est incorporée dans une cellule à une position aléatoire en rejetant toute disposition qui entraîne une interpénétration. Cette méthode a d'abord été utilisée pour des sphères (Böhm *et al.*, 2002; Williams et Philipse, 2003), mais elle a été étendue avec succès pour des particules facettées, qu'elles fassent partie des polyèdres de Platon (Böhm et Rasool, 2016; Drach *et al.*, 2016) ou qu'elles soient irrégulières (Lavergne *et al.*, 2015; Sheng *et al.*, 2016). Néanmoins, ce procédé est limité à des fractions volumiques faibles (théoriquement 38% dans le cas de sphères) du fait de la position fixe des particules (Cooper, 1988).

Des approches alternatives ont donc été proposées, majoritairement pour les particules sphériques. On trouve ainsi le *rate densification algorithm* (Jodrey et Tory, 1985), ou le *drop and roll* (Visscher et Bolsterli, 1972) plutôt orientés vers l'analyse des arrangements compacts de sphères réparties aléatoirement (Torquato *et al.*, 2000). Des travaux plus récents suggèrent de partir de sphères réparties suivant une distribution de Poisson et d'optimiser leur position afin de supprimer les interpénétrations (Pathan *et al.*, 2017). Néanmoins, cette méthode permet difficilement d'obtenir des fractions supérieures à 40%. Une approche de Monte-Carlo peut aussi être envisagée pour obtenir des fractions volumiques plus importantes en partant d'une distribution ordonnée de sphères et en appliquant une perturbation aléatoire des positions (Tobochnik et Chapin, 1988). En réduisant et en optimisant l'amplitude des perturbations, un état d'équilibre de la distribution peut être atteint. Ce type d'approche est parfois nommé algorithme de Metropolis (Metropolis *et al.*, 1953; Torquato, 2002). Bien que des fractions allant théoriquement jusqu'à 74% puissent être considérées, le caractère aléatoire de la distribution est largement remis en question pour de fortes fractions volumiques. En effet, en faisant une analogie entre la génération d'un système de sphères rigides et la dynamique moléculaire, Rintoul et Torquato (1996a) ont établi l'existence d'une transition de phase, faisant alors appel à la théorie des fluides (Hansen et McDonald, 1986). Ainsi, le phénomène peut être mis en évidence en suivant l'évolution d'une pression dans le système (Figure 1.21). Cette propriété fera l'objet d'une présentation plus détaillée dans le chapitre suivant. À faible densité, le nombre de configurations pour lesquelles les sphères sont réparties de manière aléatoire est très grand comparé aux arrangements ordonnés possibles. C'est pour cette raison que le RSA est efficace à faible fraction volumique. Lorsque la fraction volumique augmente au-delà du *freezing point* (49.4%), le nombre de configurations ordonnées devient plus important que les arrangements désordonnés envisageables dont la fraction volumique limite (*random close*

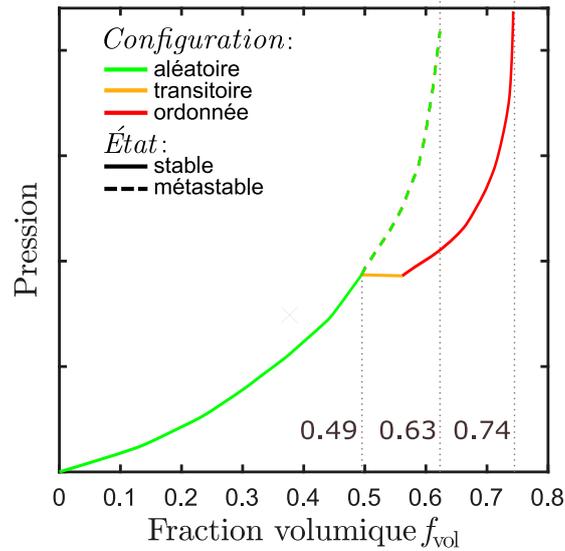


FIGURE 1.21 : Évolution théorique de la pression d'un système de sphères rigides en fonction de la fraction volumique (d'après Rintoul et Torquato (1996a)).

packing) est de 63% contre 74% dans le cas d'une distribution cubique face centrée (FCC). En fonction de la fraction volumique, un système de sphères rigides atteindra donc une configuration stable qui sera aléatoire ($f_{\text{vol}} < 49.4\%$) ou ordonnée ($f_{\text{vol}} > 49.4\%$). Les perturbations appliquées à une répartition ordonnée à faible fraction volumique conduiront alors toujours à une distribution aléatoire. Inversement, lorsqu'elle est perturbée, une configuration désordonnée de particules à forte fraction volumique s'ordonnera. Une distribution ordonnée de sphères rigides à forte fraction volumique soumise à des perturbations aléatoires ne pourra donc jamais aboutir à un arrangement aléatoire de particules du fait de la stabilité de son état initial.

La complexité de la génération d'une microstructure représentative des propergols réside donc dans la nécessité de combiner une forte fraction volumique de particules ($>49.4\%$) à une dispersion aléatoire afin d'assurer l'isotropie des microstructures.

Hoover et Ree (1968) ont évoqué en premier ce phénomène, démontrant qu'il intervient pour des fractions volumiques d'autant plus faible que la dimension du problème est importante. Ainsi, la génération d'une répartition aléatoire de disques à forte fraction volumique (50%) avec un algorithme de Metropolis a pu être mise en œuvre avec succès par Toulemonde (2016), mais sans possibilité d'extension directe en trois dimensions (sphères).

Détail des solutions proposées

Pour obtenir des structures ayant une distribution aléatoire de particules à forte fraction volumique, il faut donc obtenir une configuration dans un état métastable (Figure 1.21). Cet état est couramment obtenu à partir de différentes combinaisons des approches précédentes. Cependant, aucun arrangement n'est considéré comme idéal (Bargmann *et al.*, 2018). Par exemple le *RSA modifié* part d'une distribution aléatoire de petites sphères (faible fraction volumique). Par la suite, un déplacement aléatoire est imposé aux billes alors que la taille de la cellule est réduite, augmentant ainsi la fraction volumique sans blocage (Gusev, 1997; Segurado et Llorca, 2002; Bailakanavar *et al.*, 2014; Gusev, 2016). Dans la même lignée, la taille de la cellule peut être maintenue constante alors que les sphères grossissent tout en ayant une vitesse qui suit une distribution de Maxwell Boltzmann. Cette configuration revient à simuler une dynamique

moléculaire (Lubachevsky et Stillinger, 1990; Skoge *et al.*, 2006; Ghossein et Lévesque, 2012). En complément, l'ajout de perturbations de Monte-Carlo à l'issue de la génération a été proposé par Buryachenko *et al.* (2012). Néanmoins, l'approche par dynamique moléculaire simple a été sélectionnée dans le présent projet pour sa cohérence vis-à-vis de l'analyse de Rintoul et Torquato (1996a) et du fait de sa disponibilité (Skoge *et al.*, 2006).

Lorsque des particules polyédriques sont considérées, les approches proposées pour s'affranchir de la limite du RSA ont plutôt recours à des divisions de l'espace à partir de plans de Poisson ou d'un diagramme de Voronoï, suivies d'une contraction des polyèdres afin d'atteindre la fraction volumique cible. Ces approches ont été mises en œuvre pour la simulation des bétons (Carol *et al.*, 2007; Caballero *et al.*, 2006), des composites à matrice métallique (Fritzen et Boehlke, 2011) des asphaltes (Wimmer *et al.*, 2016) ainsi que des matériaux énergétiques (Nadot-Martin *et al.*, 2011). La différence majeure induite par l'introduction de polyèdres, par rapport à des sphères, vient de la complexité à évaluer rapidement les zones d'interpénétration. L'algorithme de Gilbert-Johnson et Keerthi (Gilbert *et al.*, 1988) permet de s'affranchir de cette difficulté lorsque des polyèdres convexes sont considérés. Il constitue donc un outil indispensable pour la prise en compte de particules irrégulières.

Fonction de caractérisation de l'ordre géométrique

Le caractère aléatoire de la dispersion des particules est un élément essentiel de la représentativité des microstructures, du fait du comportement isotrope des propergols. Or, les méthodes de génération ont un impact variable sur celui-ci, aussi, de nombreuses fonctions de caractérisation peuvent être mobilisées pour évaluer la qualité du désordre d'une cellule. Chaque fonction permet d'analyser, d'un certain point de vue, l'arrangement des particules et une infinité de fonction sont nécessaires pour justifier d'un arrangement parfaitement aléatoire (Torquato, 2002). Ainsi, les fonctions compatibles du faible nombre de particules considérées et les plus discriminantes vis-à-vis de l'ordre doivent être considérées.

Alors que la fonction de distribution radiale, généralement notée g , est certainement la plus couramment utilisée dans le cas de sphères (Rintoul et Torquato, 1997), elle nécessite des distributions de plusieurs centaines de particules afin de lisser son évolution. Dans la même lignée, le *bond orientationnal order*, notée Q_6 , a prouvé son efficacité pour discriminer les arrangements de sphères ordonnés (Steinhardt *et al.*, 1983; Rintoul et Torquato, 1996b). Néanmoins, il nécessite la définition d'une zone d'effet, le plus souvent à partir du rayon correspondant au minimum de la fonction de distribution radiale. Pour s'affranchir de cette difficulté, des zones d'effet définies à partir de cellules de Voronoï ont été envisagées (Mickel *et al.*, 2013). Cependant elles restent complexes à mettre en œuvre.

La fonction d'autocorrélation ou fonction de corrélation à deux points (S_2) fait aussi partie des approches classiques (Lee *et al.*, 2011; Chiu *et al.*, 2013). Elle consiste à évaluer la probabilité pour un segment donné (orientation et longueur fixées) d'avoir ses deux extrémités incluses dans les particules (Torquato, 2002). Elle s'adapte très bien à un faible nombre d'inclusions et est très couramment utilisée quelle que soit la forme des particules, soit au travers d'une évaluation moyenne (Pathan *et al.*, 2017), soit à partir d'une représentation directe pour différentes directions (Zeman et Šejnoha, 2001; Toulemonde, 2016; Francqueville *et al.*, 2019). L'évolution de la fonction pour les microstructures peut être confrontée à son estimation par Torquato et Stell (1985) pour une distribution de Percus-Yevick (Percus et Yevick, 1958). En effet, cette distribution peut être considérée comme une représentation quasiment parfaite d'une distribution aléatoire pour des fractions volumiques autour de 50% (Katzav *et al.*, 2019). Alors que les

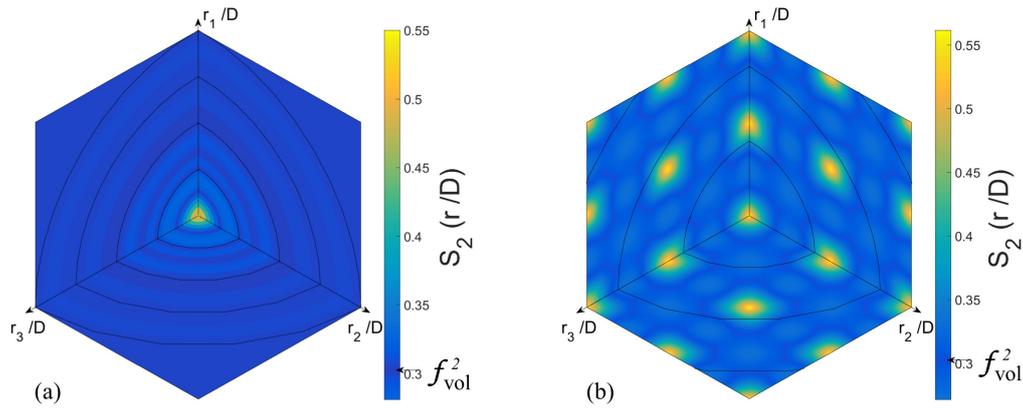


FIGURE 1.22 : Fonction de corrélation à deux points S_2 évaluée pour (a) une distribution de Percus-Yevick et (b) une structure parfaitement ordonnée (FCC), toutes deux contenant 55% de fraction volumique de particules.

caractérisations classiques ne considèrent généralement que quelques directions, des évaluations exhaustives sur l'ensemble de l'espace sont proposées (Figure 1.22), r_1/D , r_2/D , r_3/D correspondant aux trois composantes des segments tests, normalisées par le diamètre D des particules. La représentation de la fonction peut être restreinte à un huitième de l'espace du fait à la fois de sa périodicité et de sa parité. La fonction S_2 part de la fraction volumique de particules (f_{vol}), puisqu'elle correspond alors à la probabilité qu'un unique point soit dans une particule (segment nul). Par la suite, une symétrie sphérique centrée sur l'origine et tendant vers f_{vol}^2 est attendue pour une répartition aléatoire (Figure 1.22(a)). Ainsi, des lignes circulaires correspondant à $|\mathbf{r}|/D = 1, 2, 3, \dots$ ont été ajoutées pour faciliter l'analyse du désordre. Par opposition, l'évolution obtenue pour une distribution FCC (Figure 1.22(b)) suit des symétries planaires avec l'occurrence de nombreux pics proches de f_{vol} .

La fonction S_2 présente l'avantage de pouvoir non seulement caractériser les microstructures générées mais également des tomographies de matériaux réels. Collins *et al.* (2008) a ainsi proposé des représentations exhaustives semblables pour des propergols, obtenant une évolution cohérente avec Percus-Yevick et justifiant alors le caractère aléatoire du matériau. De la même façon, S_2 appliquée à une tomographie du composite modèle contenant des billes (Figure 1.7(a)) conduit à la représentation reportée sur la Figure 1.23. Cette évolution est, elle aussi, cohérente avec une distribution aléatoire permettant donc de confirmer la représentativité morphologique des composites modèles.

Si cette fonction est régulièrement utilisée, il a été démontré par Roberts (1997) et plus récemment par Zerhouni (2019) qu'elle ne suffisait pas à discriminer parfaitement un arrangement aléatoire. Il est donc courant de la compléter soit par une fonction de corrélation à trois points (très complexe à évaluer numériquement) soit par d'autres fonctions de caractérisation. Dans le cas de particules sphériques, il est possible de faire appel à une distribution des plus proches voisins (Rintoul et Torquato, 1998) qui évalue la probabilité qu'un point de la microstructure soit situé à une distance donnée d'un autre élément (par exemple le centre des sphères). Quel que soit la distribution des plus proches voisins considérée, les évolutions obtenues peuvent être confrontées aux évolutions théoriques d'une configuration parfaitement aléatoire, telle que proposée par Torquato *et al.* (1990) à partir de Reiss *et al.* (1959).

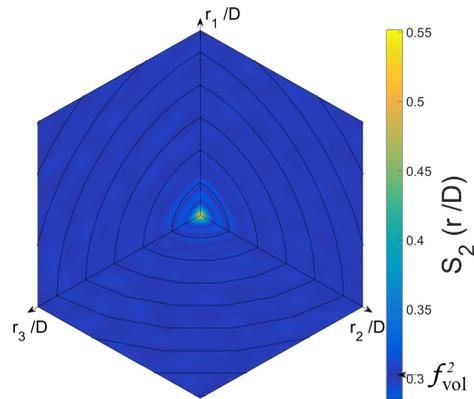


FIGURE 1.23 : Fonction de corrélation à deux points S_2 évaluée à partir d’une tomographie (Figure 1.7(a)) du composite modèle contenant 55% de fraction volumique de billes.

1.3.4 Modèle de zone cohésive

Une fois les VER générés et validés, deux méthodes peuvent être employées pour réaliser les simulations numériques : la résolution de champ mécanique par transformée de Fourier (solveur FFT, [Moulinec et Suquet \(1998\)](#)) et les analyses éléments finis. La première méthode a été utilisée pour analyser le comportement de microstructures chargées avec des particules sphériques dans l’étude fondatrice de [Gusev \(1997\)](#) mais aussi par [Ghossein et Lévesque \(2012\)](#) ou [Dunant et al. \(2013\)](#). Cependant, la très forte fraction volumique de charges induit régulièrement la présence de zones où les particules sont très proches. Une discrétisation très raffinée est alors nécessaire pour s’assurer que chaque inclusion est bien différenciée. En effet, l’association de plusieurs particules, au travers d’un (ou plusieurs) élément(s) commun(s), induit de gros défauts d’isotropie perturbant l’évaluation des propriétés élastiques. Des tests, menés pour des fractions volumiques de 55%, ont révélé la nécessité de considérer, dans ce cas, une discrétisation d’au moins 1024^3 . Or, une discrétisation de cette ampleur ne peut être mise en œuvre sans une parallélisation de l’algorithme. Il contraint alors à recourir à un code élaboré qui n’était pas disponible dans le cadre du présent projet de recherche. De plus, de même que pour les modèles semi-analytiques, l’intégration de l’endommagement reste excessivement complexe pour cette approche notamment du fait du maillage non conforme qui ne suit pas les directions normales aux interfaces. Alors que les premières tentatives de prise en compte de l’endommagement sont en cours de développement ([Lieberman et al., 2016](#)), les analyses éléments finis offrent de leur côté des outils déjà largement éprouvés pour le simuler : les éléments cohésifs. Ces éléments, déjà évoqués en section 1.3.2, sont capables de reproduire numériquement l’ouverture d’une fissure dans un matériau. Une revue détaillée des différentes zones cohésives a été proposée par [Park et Paulino \(2011\)](#).

Principe et applications courantes

La mécanique linéaire de la rupture, initiée par Griffith, repose sur une hypothèse de tenseurs des contraintes et des déformations avec des valeurs infinies en pointe de fissure ([Dugdale, 1960](#)). Cette hypothèse permet avantageusement de s’affranchir des phénomènes complexes et non-linéaires qui interviennent en pointe de fissure. Les analyses ne s’intéressent alors qu’à la modification du comportement global du fait de la présence de la fissure (énergie, facteur d’in-

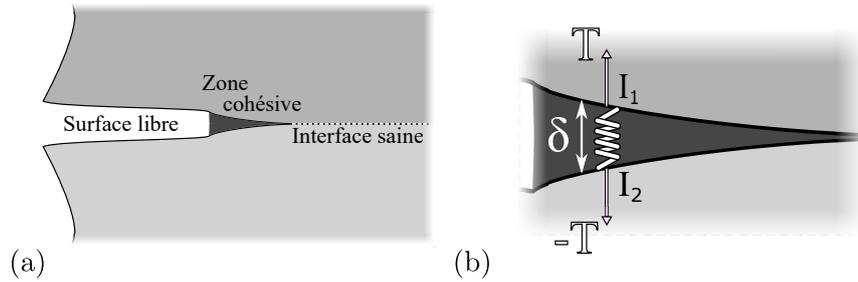


FIGURE 1.24 : (a) Principe des zones cohésives à l'échelle d'une décohésion. (b) Zoom sur la zone cohésive : les points I_1 et I_2 initialement confondus sont désormais séparés par une distance δ et exercent l'un sur l'autre un effort T . En trois dimensions, ces deux grandeurs sont généralement multiaxiales avec une composante normale (indice $-n$) et une composante tangentielle (indice $-t$ ou indices $-t_1$ et $-t_2$).

tensité de contrainte, ...). Néanmoins, cette approche est trop simpliste pour être intégrée à une simulation micromécanique qui doit reproduire l'ensemble de la propagation de la fissure. Ainsi, [Barenblatt \(1959\)](#) se propose de reprendre la séparation classique des champs en présence d'une fissure (Figure 1.24(a)) et d'affecter un comportement spécifique à la zone cohésive. Une loi de comportement relie alors l'interaction de deux points (I_1 et I_2 , Figure 1.24(b)), initialement confondus et qui sous l'effet du champ de déformation vont se séparer. Le déplacement (δ) de ces points en fonction de l'effort imposé (T) est régi par une loi de comportement de zone cohésive.

Deux catégories de loi de zone cohésive ont été développées. D'une part celles qui ne reposent pas sur un potentiel. Elles sont simples à mettre en œuvre, mais peuvent conduire à des résultats incohérents en particulier en cas de sollicitation mixtes. D'autre part les lois reposant directement sur un potentiel qui décrit la variation de l'énergie de rupture en fonction de la séparation des surfaces de fissuration. Ce potentiel régit alors le comportement de la pointe de fissure et les interactions normales et tangentielles peuvent être obtenues par dérivation. Leur complexité leur donne la possibilité d'aboutir, dans certain cas, à des formulations thermodynamiquement admissibles ([Spring et al., 2016](#); [Gilormini et Diani, 2017](#)) et donc reposant sur des bases physiquement fiables.

Les éléments cohésifs sont très simples à mettre en œuvre avec un solveur explicite contrairement aux solveurs implicites qui induisent souvent des problèmes de convergence ([Gözlüklü et Coker, 2012](#)). Néanmoins, l'utilisation d'un solveur explicite peut induire des oscillations artificielles conduisant à des résultats incohérents ([Mi et al., 1998](#); [Gonçalves et al., 2000](#)). Par ailleurs, les incréments de temps nécessaires pour obtenir une solution stable peuvent entraîner des temps de calcul rédhibitoires, en particulier pour simuler des sollicitations quasi-statiques. Ainsi l'approche implicite, pour laquelle l'équilibre statique est confirmé à chaque incrément, est parfois sélectionnée car elle permet de confirmer la validité de la simulation malgré les problèmes de convergence ([Gilormini et al., 2017](#); [Spring et Paulino, 2015](#)). C'est pour ces raisons que cette dernière méthode sera mise en œuvre dans la suite de l'étude au travers du code commercial [Abaqus/Standard.2018](#).

Mise en œuvre dans la simulation micromécanique

La loi de zone cohésive utilisée dans la majeure partie de ce projet est la loi de [Tvergaard et Hutchinson \(1993\)](#) qui dérive d'un potentiel (Φ). Elle a déjà été utilisée à de nombreuses reprises pour simuler les décohésions de particules sphériques dispersées dans une matrice ([Segurado et](#)

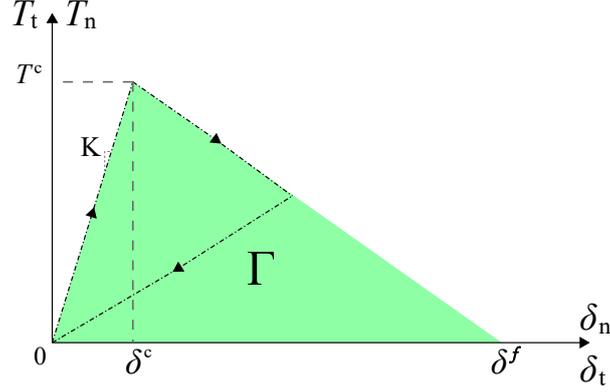


FIGURE 1.25 : Loi de Tvergaard et Hutchinson pour un élément cohésif soumis à un déplacement purement normal δ_n (ou purement tangentiel δ_t) pilotée par trois paramètres indépendants parmi les cinq (K , Γ , T^c , δ^c , δ^f) affichés.

LLorca, 2005; Matouš et Geubelle, 2006; Cho *et al.*, 2017; Gilormini *et al.*, 2017). Une version simplifiée a été mise en œuvre en ne considérant qu'une évolution bilinéaire, alors que la version originale (Tvergaard et Hutchinson, 1993) propose une loi trapézoïdale, c'est à dire avec un plateau de contrainte. De plus, les réponses normales et tangentielles n'ont pas été différenciées. Une illustration de l'évolution de cette loi dans le cas d'un déplacement purement normal (ou d'un déplacement purement tangentiel) est reportée sur la Figure 1.25, avec les cinq paramètres pilotant son comportement. Elle repose à la fois sur un facteur de décohesion d'interface $\lambda = \sqrt{(\delta_n/\delta^c)^2 + (\delta_t/\delta^c)^2}$, avec δ_n et δ_t définissant les composantes normales et tangentielles de la séparation de l'interface et sur le potentiel de d'interaction défini comme :

$$\Phi(\delta_n, \delta_t) = \delta^c \int_0^\lambda T(\lambda') d\lambda' \quad (1.1)$$

ainsi les efforts normaux et tangentiels peuvent être évalués par dérivation :

$$T_n = \frac{\partial \Phi}{\partial \delta_n} = \frac{T(\lambda) \cdot \delta_n}{\lambda \cdot \delta^c}, \quad T_t = \frac{\partial \Phi}{\partial \delta_t} = \frac{T(\lambda) \cdot \delta_t}{\lambda \cdot \delta^c} \quad (1.2)$$

En outre, les paramètres pilotant l'évolution de la loi sont liés par le système :

$$\begin{cases} \delta^c = \frac{T^c}{K} \\ \Gamma = \frac{T^c \cdot \delta^f}{2} \end{cases} \quad (1.3)$$

par conséquent, seul trois paramètres indépendants contrôlent le comportement de la zone cohésive.

Cette loi permet de considérer très peu de paramètres dans la simulation afin de distinguer précisément leurs impacts respectifs sur la réponse globale des microstructures. D'autres lois de zone cohésive, plus élaborées (voir Park et Paulino (2011) pour une revue détaillée), offrent une plus grande flexibilité pour reproduire quantitativement le comportement du composite (Toulemonde, 2016; Gilormini *et al.*, 2017). Néanmoins, elles induisent une très grande complexité dans l'analyse de l'impact des paramètres sans même parler de l'identification de leur valeur physique (Park et Paulino, 2011).

De manière générale, l'identification des paramètres de zone cohésive est extrêmement com-

plexe en particulier dans le cas d'une structure avec plusieurs fronts de fissure. En effet, les caractérisations expérimentales donnent presque exclusivement accès à des comportements macroscopiques. Lorsqu'une seule fissure est simulée, il est encore possible d'établir un lien direct entre ces comportements et les phénomènes microscopiques, même pour de lois complexes simulant une propagation en fatigue (Bouvard *et al.*, 2007). Dans le cas de décohésions multiples, des considérations de représentativité, de changement d'échelles et de statistique perturbent largement l'analyse.

Tan *et al.* (2005) ont tout de même proposé une méthode d'évaluation d'une loi de zone cohésive sur du PBX à partir d'un essai sur une éprouvette *compact tension* (ISO 7539-6). Si cette approche permet d'identifier très clairement une loi bilinéaire de zone cohésive avec les paramètres afférents, elle repose sur des hypothèses fortes telle qu'une identification directe des contraintes à partir d'un champ de déformation obtenu par corrélation numérique d'images. Cette hypothèse serait d'autant plus forte dans le cas de l'analyse des propergols dont l'endommagement intervient en grandes déformations. Gilormini *et al.* (2017) ont proposé une identification de l'énergie de la zone cohésive à partir d'une caractérisation à l'échelle macroscopique des interfaces, afin d'identifier les paramètres de zone cohésive d'un matériau modèle similaire à celui présenté en section 1.1.3. Un film de méthacrylate déposé sur une plaque de verre a été caractérisé par un test de pelage. L'énergie évaluée a été prise en compte dans la simulation et les autres paramètres de zone cohésive ont été identifiés de façon à faire correspondre au mieux les réponses homogénéisées numériques et expérimentales. Néanmoins, cette dernière approche a abouti à une loi de zone cohésive incohérente dans la mesure où le déplacement à rupture de l'interface (δ^f) obtenu est largement supérieur au déplacement à rupture des composites, ce qui revient à simuler des interfaces encore intactes au moment de la fracture. Or, les observations du champ de décohésions à l'échelle microscopique sur éprouvette chargée proposée en section 1.2.3 (Figure 1.19) contredisent cette simulation. Dans ce contexte d'interactions complexes, le projet de recherche s'est focalisé plutôt sur l'analyse de l'impact des paramètres de zone cohésive que sur l'identification de ces paramètres. Le déplacement à rupture δ^f qui définit la longueur caractéristique de la zone cohésive a ainsi été fixé de façon à être cohérent avec la géométrie et les déplacements globalement imposés à la microstructure, ce qui revient à lui donner des valeurs de l'ordre d'un dixième du rayon du cercle circonscrit aux particules.

1.4 Synthèse

La découverte des propergols solides a débuté par une présentation détaillée du contexte historique qui a permis leur essor, mettant en évidence les enjeux actuels et futurs de cette technologie. Ces circonstances conduisent à mener une politique d'optimisation maximum de cette solution de propulsion en anaérobie, particulièrement en se focalisant sur l'amélioration du matériau lui-même. L'introduction de ces indispensables perfectionnements a conduit à proposer une description précise des grandes familles de propergols solides ainsi que de leurs constituants majeurs, pour conclure par une brève évocation de leur processus d'élaboration. La morphologie de ces matériaux peut par ailleurs être analysée par tomographie, elle est marquée par une très forte fraction volumique de charges pyrotechniques procurant au matériau de bonnes performances énergétiques, avec une distribution aléatoire de ces particules, induisant un comportement mécanique isotrope. En outre, les observations à l'échelle des particules mettent en évidence une géométrie très variable des charges, certaines étant sphériques (perchlorate d'ammonium) et d'autres facettées (nitramine, dont le RDX).

Une fois les spécificités générales des propergols détaillées, l'évocation des risques que peuvent induire des défauts de comportements mécaniques a permis de présenter l'objectif du projet de recherche : le développement d'outils de simulation numérique permettant une meilleure compréhension de l'endommagement des propergols. Il également a été proposé de s'affranchir du caractère énergétique du matériau en élargissant le cadre de l'étude aux élastomères fortement chargés ayant une morphologie proche des propergols. Les ruptures d'interface matrice/particule ayant été identifiées comme principales responsables de l'endommagement, l'étude se focalisera tout spécifiquement sur celles-ci. De plus, en s'appuyant sur la littérature, qui met en évidence une concentration des décohésions autour des particules les plus grosses, l'analyse s'est concentrée sur des charges monodisperses avec un diamètre de quelques centaines de microns. Ainsi, des composites inertes avec une matrice élastomérique de méthacrylate, intégrant une forte fraction volumique de particules de verre tamisées ayant soit une forme sphérique soit une forme irrégulière ont été considérées. Le but de ces matériaux est de se conformer à la morphologie des différentes familles de propergols et de mettre en évidence une éventuelle influence de la géométrie des inclusions sur le comportement ou l'endommagement du matériau.

Pour confirmer l'intérêt de l'ouverture de l'étude à des matériaux inertes, une validation de la cohérence de leur comportement mécanique vis-à-vis de celui des propergols est nécessaire. Cette démarche a permis de détailler les spécificités du comportement mécanique des propergols en commençant par celui de leurs composants. La matrice élastomère présente un comportement viscoélastique linéaire qui offre la particularité d'être très proche d'un comportement élastique à température ambiante et pour une sollicitation quasi-statique. Par ailleurs, les charges énergétiques présentent une structure cristalline conduisant à un comportement élastique fragile avec une rigidité très supérieure à celle de la matrice. Les constituants des élastomères simplifiés ont un comportement en accord avec ces caractéristiques, d'autant que le contraste de phases (rapport des rigidité) impacte d'abord le comportement du composite : celui-ci est bien supérieur à 10^4 dans les deux cas.

De son côté, le comportement des propergols, comme celui des composites simplifiés, est marqué par une réponse linéaire suivie d'un adoucissement très prononcé. Des études énergétiques ont permis d'expliquer cette perte de raideur par l'intervention d'un phénomène d'endommagement, quelques soit la famille de propergol considérée. De plus, des mesures de dilatation de matériau subissant une traction (propergol, composite d'étude) ont confirmé le rôle premier que jouent les décohésions matrice/particule sur cet endommagement. Dans la mesure où un phénomène microscopique (adhésion locale) affecte le comportement global du matériau, des liens entre l'évolution du comportement macroscopique et l'endommagement à l'échelle des particules ont été proposés. Ces analyses offrent un regard précis sur la manière dont les interfaces cèdent tout en mettant en évidence l'intervention de localisation de l'endommagement ou la déformation bien avant la ruine du matériau. En outre, les élastomères fortement chargés présentent différentes non-linéarités de comportements qui ont été brièvement présentées. Dans la mesure où celles-ci ont déjà fait l'objet d'étude détaillées, elles ont été négligées au profit de la simulation de l'endommagement.

Fort de cette connaissance approfondie du comportement mécanique des propergols et de son lien étroit avec les propriétés morphologiques, les stratégies de simulations qui ont déjà été développées en se focalisant sur ces liens ont pu être présentées. Les principales approches de ce type, dite micromécaniques, sont soit dérivées de modèles analytiques soit fondées sur une simulation numérique. Si la première stratégie présente une efficacité reconnue dans le cadre des petites déformations, la prise en compte de l'endommagement nécessite soit de poser des hypothèses simplificatrices fortes, soit de mettre en place des modèles phénoménologiques complexes. Ces solutions ont donné des résultats encourageants, cependant, elles présentent le

défaut de lisser les phénomènes locaux. À l'inverse, les simulations numériques offrent une plus grande flexibilité ainsi qu'une analyse détaillée des comportements à l'échelle des particules. Des résultats très encourageants ont été obtenus avec cette stratégie, bien qu'elle soit contrainte par les puissance de calcul et la nécessité de s'appuyer sur des VER. L'intérêt de la prise en compte de conditions aux limites périodiques pour obtenir ce type de cellules, ainsi que celui d'une approche statistique ont alors pu être détaillés.

Cependant, si ces approches facilitent les simulations en permettant de considérer des VER de taille raisonnable, la génération explicite d'une microstructure reprenant les propriétés morphologiques principales du matériau d'étude reste nécessaire. Or, la création d'une distribution aléatoire de particules à très forte fraction volumique est complexe du fait de l'intervention d'une transition de phase dans les systèmes de particules rigides. Des stratégies de génération sophistiquées doivent alors être mises en œuvre en combinant des mouvements particulières et des variations de volume (de la cellule ou des inclusions). Le désordre très variable des configurations qui sont alors obtenues nécessite le déploiement d'outils de caractérisation de leur ordre géométrique. Les simplifications permises par les conditions aux limites périodiques et l'approche statistique permettent de ne considérer que des microstructures de petites taille conduisant à sélectionner d'abord la fonction de corrélation à deux points, pour laquelle une évolution de référence, basée sur une distribution de Percus-Yevick, est accessible.

Dans la mesure où cette fonction est connue pour ne fournir qu'une évaluation partielle de la qualité du désordre, la prise en compte de distributions statistiques supplémentaires est envisagée dès lors que les évolutions théoriques de ces dispersions, pour des systèmes parfaitement aléatoires, sont accessibles.

Si une résolution de champs mécanique par transformé de Fourier peut être envisagée pour calculer le comportement des VER générés, elle s'avère très complexe du fait de la morphologie particulière du composites. Aussi une approche éléments finis a été préférée d'autant qu'elle offre un outil largement éprouvé pour simuler l'endommagement : les zones cohésives. Cette solution propose d'affecter un comportement phénoménologique aux zones où des fissures peuvent se propager. Parmi les stratégies disponibles pour mettre en œuvre cette solution une approche implicite avec une loi de zone cohésive bilinéaire basée sur un potentiel a été choisie, dans la mesure où ces approches présentent une fiabilité accrue pour obtenir des résultats physiquement cohérents. Des éléments cohésifs dont le comportement est piloté par ce modèle sont positionnés à l'interface entre les particules et la matrice. Si l'identification des paramètres phénoménologiques de la loi de zone cohésive est envisageable dans le cas de la propagation d'une seule fissure, elle s'avère particulièrement complexe, voire hasardeuse, avec plusieurs fissures, comme c'est le cas pour les VER considérés. La présente étude propose donc de mettre en œuvre ce type de simulations numériques en se focalisant d'abord sur la définition d'un comportement cohésif géométriquement cohérent afin de de mettre clairement évidence l'impact des phénomènes intervenant à l'échelle des particules sur le comportement global du matériau.

Chapitre 2

Simulations dans le cadre de l'élasticité linéaire

Ce deuxième chapitre propose une présentation détaillée des stratégies de génération qui ont été mise en œuvre pour obtenir des microstructures contenant une très forte fraction volumique de particules sphériques ou polyédriques. Afin d'assurer la représentativité de ces cellules, des outils de caractérisation de leur désordre géométrique sont proposés. Par ailleurs, le cadre des simulations numériques sera détaillé avec les critères d'évaluation de l'isotropie des microstructures. Par la suite, pour permettre de confronter les simulations à des données expérimentales, une campagne de caractérisation du comportement de composites simplifiés sera présentée. Les propriétés élastiques estimées numériquement à partir d'une analyse statistique pourront alors être confrontées tant à des modèles analytiques qu'à ces données expérimentales. Enfin, ce chapitre se conclura par une analyse comparative des comportements linéaires obtenus avec des particules polyédriques ou sphériques.

« À la source de toute connaissance, il y a une idée, une pensée, puis l'expérience vient confirmer l'idée. »

Claude Bernard (1813–1878)

Sommaire

2.1	Génération de microstructures	41
2.1.1	Inclusions sphériques	41
	Détail de la stratégie de génération	41
	Lien entre la pression et l'ordre géométrique	43
	Maillage et contexte des calculs éléments finis	45
2.1.2	Inclusions polyédriques	48
	Méthode de génération	48
	Taille des VER dans le cas d'inclusions polyédriques	49
2.2	Analyse statistique des microstructures chargées avec des sphères et validation de leur représentativité	50
2.2.1	Étude d'un cas réel	51
	Élaboration des composites modèles	51
	Caractérisation des propriétés élastiques	51
	Comportements en grandes déformations	55
2.2.2	Étude statistique et optimisation	56
	Analyse brute	57
	Sélection à partir de propriétés géométriques	57
	Analyse optimisée	61
2.2.3	Validation de la représentativité des comportements mécaniques	62
	Confrontations aux estimations analytiques	62
	Intégration de la caractérisation expérimentale	65
	Un regard sur les microstructures rejetées	65
2.3	Cas des inclusions irrégulières et comparaison polyèdres <i>vs.</i> sphères	67
2.3.1	Analyse statistique dans le cas des inclusions polyédriques	67
2.3.2	Impact de la géométrie des particules sur le comportement élastique linéaire	67
2.4	Synthèse	71

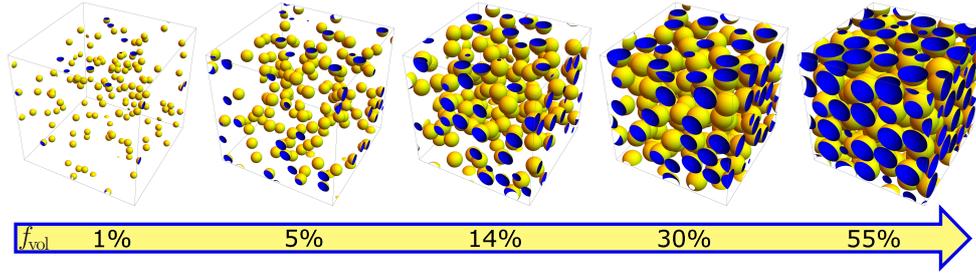


FIGURE 2.1 : Exemple de configurations prélevées au cours de la génération d'une microstructure avec l'algorithme de Lubachevsky et Stillinger (1990) pour une distribution de vitesse pilotée par la température $T = 0.2$ et un facteur de grossissement $g_{fact}(t) = 0.005$.

2.1 Génération de microstructures

2.1.1 Inclusions sphériques

La simulation micromécanique des propergols solides s'est historiquement reposée sur une représentation sphérique des charges. Deux facteurs expliquent ce choix, d'une part la forme spécifique des charges traditionnelles (perchlorate d'ammonium, Figure 1.4(a)) et d'autre part l'important support bibliographique dédié à la génération de systèmes de sphères rigides.

Détail de la stratégie de génération

La méthode de génération reproduisant une dynamique moléculaire a été sélectionnée au travers d'un algorithme de Lubachevsky et Stillinger (1990). Une présentation détaillée de son implémentation est disponible dans Ghossein et Lévesque (2012) et une version de l'algorithme (Skoge *et al.*, 2006), peut être directement téléchargée sur le site de Torquato (<http://chemlabs.princeton.edu/torquato/links-and-codes/sphere-packings-registration/>).

En premier lieu, une RSA est employée pour créer une cellule cubique avec une dispersion aléatoire de sphères rigides monomodales (faible fraction volumique). Dans un second temps, une vitesse initiale \mathbf{v} est appliquée à chaque particule suivant une distribution de Maxwell-Boltzmann :

$$f(\mathbf{v}) = \left(\frac{m}{2\pi k_B T} \right)^{3/2} \exp \left(-m \frac{\mathbf{v} \cdot \mathbf{v}}{2k_B T} \right) \quad (2.1)$$

où chaque particule a une masse normalisée $m = 1$, k_b étant la constante de Boltzmann. Ainsi, le seul paramètre pilotant la distribution de vitesse $f(\mathbf{v})$ est la température thermodynamique T . Par ailleurs, pour atteindre la fraction volumique cible, un facteur de grossissement temporel $g_{fact}(t)$ est appliqué à chaque sphère. Leur masse étant fixe, ce gonflement n'implique pas de perturbation de la distribution des vitesses. En revanche, il induit une augmentation de la probabilité qu'elles entrent en collision. Une liste chronologique des collisions à venir, prenant en compte l'évolution des rayons, peut alors être assemblée. L'algorithme fait ensuite évoluer le système jusqu'à l'occurrence de cet évènement, puis il évalue les modifications dues à la collision entre les particules (choc élastique) et met à jour la chronologie des évènements à venir. On parle par conséquent d'un processus piloté par l'occurrence d'évènements (*event driven*). En plus des collisions, un second type d'évènement est pris en compte : il s'agit du transfert, sur la face opposée, de toute particule traversant une frontière de la cellule, permettant ainsi la génération de microstructures périodiques. Des configurations échantillonnées au cours de la génération sont visibles sur la Figure 2.1.

Enfin, une pondération des vitesses des particules par la vitesse moyenne globale est imposée après un nombre choisi d'évènements (cycles). Cette étape permet de réduire le risque (croissant avec le grossissement) de collision entre plus de deux particules, évènement qui mettrait l'algorithme en échec. Cette pondération permet aussi d'éviter une multiplication incontrôlée des collisions ; cela réduirait alors l'intervalle de temps entre deux évènements au point d'empêcher l'évolution du système. La génération est donc pilotée majoritairement par deux paramètres : la température T qui contrôle la distribution des vitesses et le facteur de grossissement g_{fact} . La possibilité de modifier le nombre d'évènements par cycle offre de son côté une légère flexibilité. Néanmoins elle est trop faible pour faire l'objet d'une étude détaillée.

En plus d'être cohérente avec l'esprit de [Rintoul et Torquato \(1996a\)](#), cette approche permet d'estimer une pression réduite p dans le système pendant le grossissement des sphères. Celle-ci est obtenue à partir de l'équation du viriel normalisée par la pression des gaz parfaits, $P_{gaz} = nk_B T/V$, avec n le nombre de particules et V le volume de la cellule :

$$p = 1 + \frac{1}{2E_c} \left\langle \sum_{i=1}^n \mathbf{r}_i \cdot \mathbf{F}_i^{Int} \right\rangle \quad (2.2)$$

avec l'énergie cinétique de Boltzmann $E_c = 3nk_B T/2$, les crochets correspondent à une moyenne temporelle et le point désigne le produit scalaire de deux vecteurs. Dans la mesure où le seul potentiel introduit dans la simulation est l'interaction due à la collision entre les particules ([Skoge et al., 2006](#)), le produit scalaire des positions des sphères \mathbf{r}_i avec les forces internes \mathbf{F}_i^{Int} peut être estimé à partir de la quantité de mouvement X_m échangée lors des collisions entre particules durant une période de temps Δt . L'algorithme est ainsi en mesure d'estimer numériquement la pression normalisée suivant :

$$p = 1 + \frac{X_m}{2E_c \Delta t} \quad (2.3)$$

Ce paramètre moyenné est alors évalué à l'issue de chaque cycle et les détails de l'obtention de cette formule sont disponibles en [Annexe A](#). Par ailleurs, l'évolution théorique de la pression en fonction de la fraction volumique dans un système aléatoire de sphères rigides peut aussi être estimé à partir de différentes équations d'état (equation of state, EOS). Parmi elles, la formule de Carnahan-Starling-Kolafa ([Boublík et Nezbeda, 1986](#)) révisée par [Robles et al. \(2014\)](#) a été sélectionnée :

$$p = \frac{1 + f_{vol} + f_{vol}^2 - \frac{2}{3}(1 + f_{vol})f_{vol}^3}{(1 - f_{vol})^3} \quad (2.4)$$

Par conséquent, en accord avec [Gusev \(1997\)](#), des microstructures périodiques contenant 64 sphères monomodales ont été générées. En fonction des valeurs relatives de paramètres de génération T et g_{fact} , trois types d'évolution de la pression peuvent être obtenus et sont reportés sur la [Figure 2.2](#).

On note d'abord une évolution conjointe des pressions jusqu'à une fraction volumique d'environ 30% à partir de laquelle une divergence notable d'une des pressions est enregistrée. Ce phénomène est accompagné d'une décroissance incontrôlée de l'intervalle entre deux évènements, aboutissant à des niveaux de pression colossaux et parfois même à un blocage de la génération. Les deux autres types d'évolution suivent, de leur côté, une progression stable jusqu'à environ 50% puis une chute brutale de la pression est enregistrée dans le cas d'une distribution de vitesses importante vis-à-vis du grossissement des particules.

Ces différents types d'évolution sont symptomatiques de l'obtention, pour une même méthode de génération, de microstructures aux propriétés très différentes. Or, la caractéristique essentielle

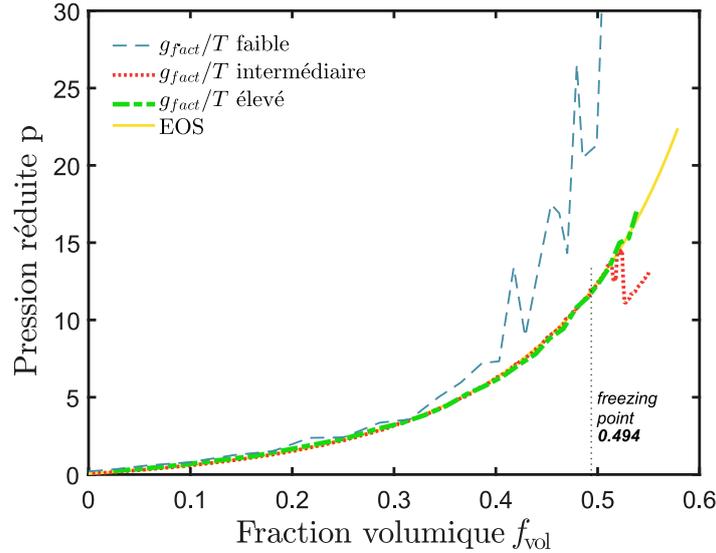


FIGURE 2.2 : Trois types d'évolution de la pression réduite en fonction du rapport g_{fact}/T comparés à l'équation d'état (EOS) de Carnahan-Starling-Kolafa (Boublík et Nezbeda, 1986).

visée est la répartition aléatoire des sphères afin d'assurer la représentativité des microstructures. Ce désordre peut alors être analysé par les fonctions de caractérisation géométrique.

Lien entre la pression et l'ordre géométrique

La fonction de corrélation à deux points S_2 a été mise en œuvre en priorité de façon à évaluer la qualité du désordre des différents types de microstructures générées en fonction de l'évolution de la pression.

L'évaluation exhaustive, en trois dimensions, de cette distribution nécessite d'abord une discrétisation de l'espace (*voxélisation*). Elle ne peut se contenter d'une analyse statistique sur une sélection de segments tests, au risque d'entraîner des temps de calcul rédhibitoires ou des incertitudes trop importantes. Une approche optimisée de la voxélisation des microstructures a donc été mise en œuvre et combinée à une procédure classique d'évaluation rapide de S_2 dans l'espace de Fourier, rappelée en Annexe B (Ohser et Schladitz, 2009). Ces stratégies ont permis d'aboutir à des temps de calcul raisonnables de moins de 20 minutes sur un ordinateur standard (2.59 GHz Intel Core i7-6700HQ CPU avec 16 Go de RAM) avec une routine Matlab.2017a. Cette caractérisation du désordre étant non exhaustive (section 1.3.3), elle a été complétée par une analyse d'une distribution des plus proches voisins, notée H_v , qui évalue la probabilité pour un point de la matrice d'être située à une distance r du centre de la particule la plus proche (de diamètre D). Cette caractérisation, aisée à mettre en œuvre numériquement à partir de la liste des centres des sphères, a été implémentée dans une routine Fortran avec des temps de calculs similaires au cas de S_2 .

Avant de mettre en œuvre ces caractérisations, la première propriété des systèmes accessible est l'évolution de la pression qui est directement évaluée pendant leur génération. Une confrontation atypique entre les familles d'évolution de pression et leur propriétés géométriques a aussi été mise en œuvre. Les microstructures présentant une chute de pression au-delà de 49.4% sont caractérisées sur la Figure 2.3, elles aboutissent toutes à une fonction de corrélation caractéristique

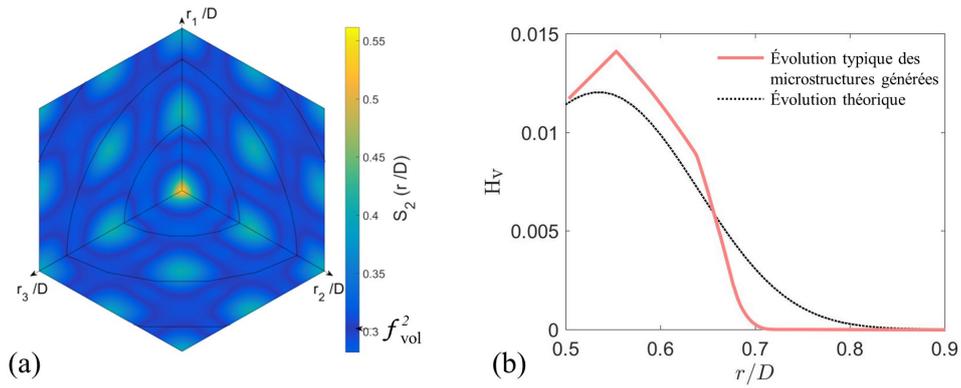


FIGURE 2.3 : (a) Fonction de corrélation à deux points S_2 et (b) distribution des plus proches voisins H_v typiquement obtenues pour des microstructures montrant une chute de pression durant leur génération (Figure 2.2).

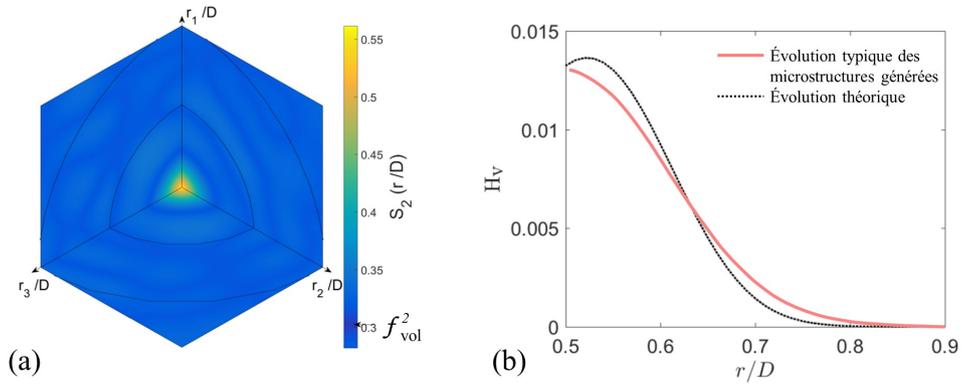


FIGURE 2.4 : (a) Fonction de corrélation à deux points S_2 et (b) distribution des plus proches voisins H_v typiquement obtenues pour des microstructures montrant une pression divergente durant leur génération (Figure 2.2).

d'une configuration ordonnée (Figure 1.22(b)), suggérant la mise en place d'une organisation au cours de la génération. Ce constat est renforcé par la divergence flagrante de leur distribution des plus proches voisins H_v par rapport à l'évolution théorique d'un système aléatoire (Figure 2.3(b)). Ces caractéristiques sont cohérentes avec les paramètres de génération induisant ce type d'évolution de pression : une distribution de vitesses (T) prépondérante par rapport au grossissement des particules (g_{fact}) permet ainsi aux particules de prendre une configuration stable avant que l'algorithme atteigne la fraction volumique cible.

Inversement, dans le cas où les particules grossissent bien plus vite qu'elles ne bougent, la pression diverge. Si cette divergence reste modérée, la fraction volumique cible peut parfois être atteinte. Les microstructures présentent alors une évolution de S_2 proche de la référence pour une configuration de Percus-Yevick (Figure 1.22(a)) mais ont une distribution des plus proches voisins éloignée de l'évolution théoriquement attendue (Figure 2.4). Ce type de caractérisation pourrait être expliqué par un phénomène de *clustering* dans la structure qui serait cohérent avec l'explosion du nombre de collisions. Néanmoins, l'intervention de ce type de configuration, non détectée pour l'instant dans les propergols, remet en question la représentativité des microstructures ainsi générées.

Enfin, un équilibre entre les deux paramètres de génération conduit à une évolution stable de

la pression qui suit de manière remarquable l’EOS. Les microstructures obtenues présentent cette fois des propriétés beaucoup plus variables du point de vue des deux fonctions de caractérisation de l’ordre géométrique (S_2 et H_v). Ce constat confirme néanmoins que seul des systèmes ayant une pression suivant l’équation d’état peuvent, parfois, aboutir à une configuration aléatoire. Bien que ce lien ne soit pas systématique, il permet tout de même de discriminer, dès la fin de la génération, les microstructures qui sont assurément non représentatives. Un ajustement des paramètres de l’algorithme peut ainsi être opéré directement sur la base de l’évolution de la pression, permettant alors une réduction drastique du nombre d’échecs de génération de VER.

Par ailleurs, cette analyse permet de confirmer, avec le cas de la pression divergente, l’absence de réciprocity entre une évolution sphérique de S_2 et une configuration aléatoire, conformément à l’analyse de [Roberts \(1997\)](#) ou [Zerhouni \(2019\)](#). Cette remarque peut également soulever la question du consensus sur le désordre de la dispersion des particules dans les matériaux réels (notamment les protergols). En effet, cette propriété est presque exclusivement caractérisée au travers de S_2 , du fait d’une complexité accrue pour appliquer les autres fonctions de caractérisation à des tomographies. Elle est aussi confortée par le caractère isotrope du comportement mécanique de ces matériaux.

Maillage et contexte des calculs éléments finis

L’enjeu principal du processus de génération est surtout de permettre l’obtention de microstructures ayant un comportement mécanique cohérent avec les matériaux réels, en particulier représentant l’isotropie. L’étude, restreinte en premier lieu à l’élasticité linéaire, nécessite donc l’évaluation numérique du comportement mécanique au travers d’une analyse éléments finis.

Si l’utilisation d’un solveur éléments finis est particulièrement utile pour de futures extensions de la simulation, notamment pour prendre en compte l’endommagement, il nécessite la génération d’un maillage conforme. De plus, pour appliquer les conditions aux limites périodiques le maillage doit être, lui aussi, périodique. Les discrétisations de chaque face doivent ainsi comprendre un point de référence (R_1 et R_2 , [Figure 2.5](#)) et être parfaitement superposables par effet miroir. Chaque nœud d’une face est alors associé à un nœud de la face opposée (N_1 et N_2 , [Figure 2.5](#)) et leurs déplacements \mathbf{u}^{N_1} et \mathbf{u}^{N_2} sont liés par le système :

$$\begin{cases} u_x^{N_2} + u_x^{R_1} = u_x^{N_1} + u_x^{R_2} \\ u_y^{N_2} + u_y^{R_1} = u_y^{N_1} + u_y^{R_2} \\ u_z^{N_2} + u_z^{R_1} = u_z^{N_1} + u_z^{R_2} \end{cases} \quad (2.5)$$

l’un des points de référence est généralement fixe (supposons R_1), son vecteur déplacement \mathbf{u}^{R_1} est donc nul.

Le mailleur *opensource* Netgen ([Schöberl, 1997](#)) a été choisi pour sa capacité à générer des maillages périodiques ([Schneider et al., 2016](#)) et à lister ces systèmes d’équations dans un formalisme directement compatible avec [Abaqus/Standard.2018](#), le logiciel commercial qui a été sélectionné ici avec des éléments quadratiques C3D10 (éléments tétraédriques à 10 nœuds). La [Figure 2.6\(a–b\)](#) donne un exemple d’une structure générée et de sa discrétisation. La plupart des analyses éléments finis de microstructures avec des sphères monodisperses ([Gusev, 1997](#); [Segurado et Llorca, 2002](#); [Barello et Lévesque, 2008](#)) ont choisi de restreindre la distance minimum (λ) entre sphères pour éviter l’apparition d’éléments distordus. Néanmoins, [Gusev \(2016\)](#) a montré que les propriétés élastiques évaluées pouvaient être sensiblement sous-estimées si cette

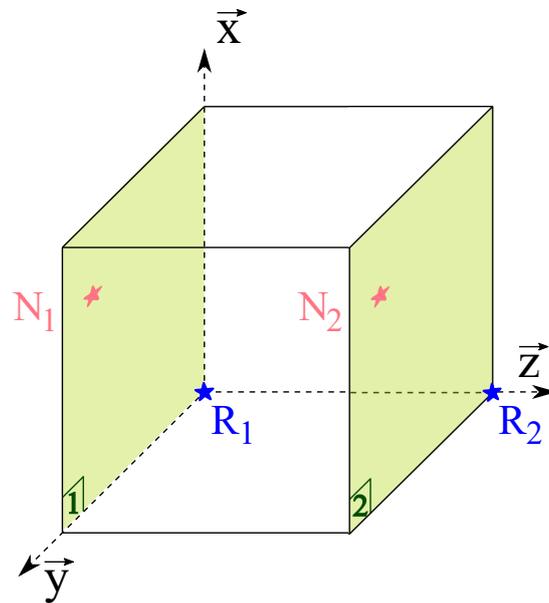


FIGURE 2.5 : Schéma détaillant les paramètres de la formulation des conditions aux limites périodiques (Eq. (2.5)).

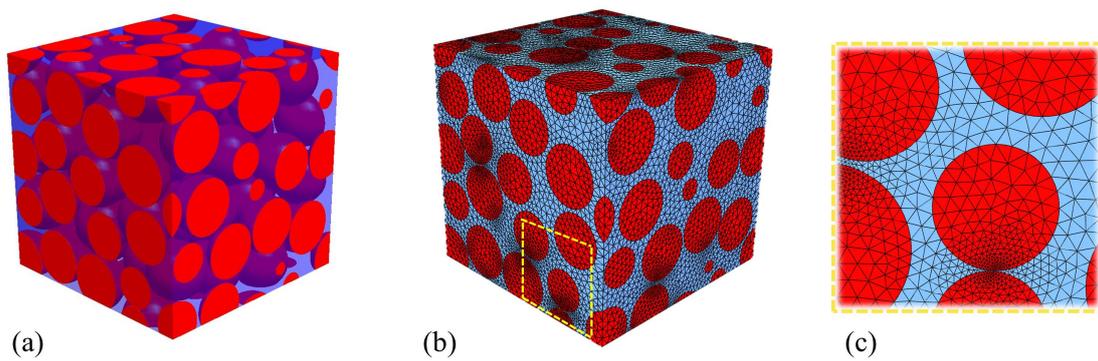


FIGURE 2.6 : (a) Exemple d'une microstructure générée avec 64 sphères pour $f_{vol}=55\%$. (b) Sa discrétisation périodique obtenue avec Netgen (c) Zoom illustrant le raffinement local du maillage qui a été implémenté.

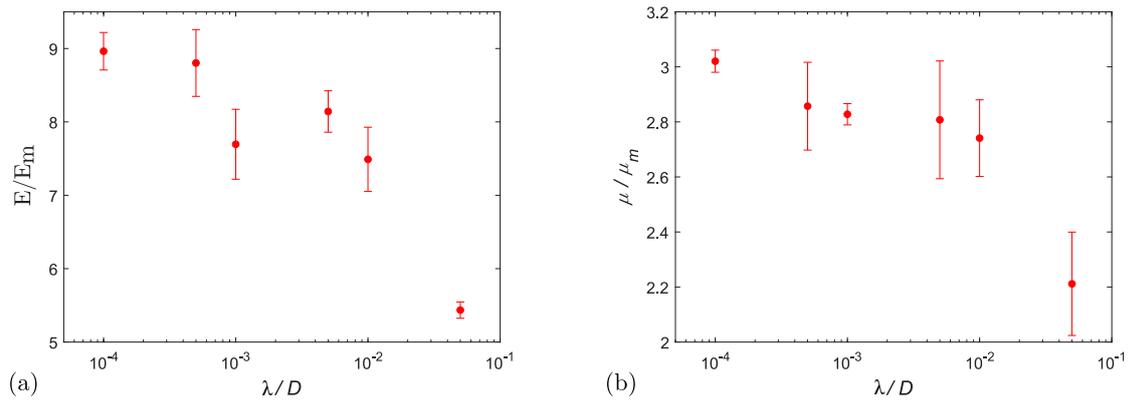


FIGURE 2.7 : Valeurs moyennes et dispersion des modules de Young (a) et de cisaillement (b) normalisés par ceux de la matrice, obtenues avec six microstructures contenant une fraction volumique (f_{vol}) de 50% de sphères en fonction des interdistances minium normalisées. La dispersion des modules est obtenue en évaluant le comportement de chaque microstructure suivant ses trois axes principaux.

distance était trop importante, typiquement $\lambda/D \approx 10^{-3}$, D étant le diamètre des sphères. Ce phénomène est d'autant plus marqué que le contraste des comportements mécaniques des phases est important. La solution proposée est alors de réduire cette interdistance relative autour de $\lambda/D \approx 10^{-4}$ et d'effectuer un raffinement du maillage dans les zones où deux sphères sont très proches pour éviter les défauts de maillage (éléments distordus).

Cette approche a pu être mise en œuvre dans Netgen en créant, a priori, une liste de points de raffinement autour desquels la taille maximale des éléments est limitée. Une routine [Matlab.2017a](#) a permis la détection des paires de particules très proches. Pour chacune d'elles, des cercles de latitude sont définis, centrés autour du point le plus proche de l'autre sphère, puis les points de raffinement y sont répartis uniformément. Une liste de leur position peut ainsi être générée dans un formalisme compatible avec le mailleur. Le raffinement obtenu est clairement visible sur le zoom proposé sur la Figure 2.6(c). Il permet de supprimer très efficacement la présence d'éléments distordus. Ce processus offre donc une méthode de maillage à la fois robuste et automatique sans paramètre à modifier. Il pourrait alors être déployé pour des analyses systématiques presque aussi facilement que les solveurs FFT qui sont souvent préférés, en élasticité linéaire, du fait de l'uniformité de leur discrétisation ([Ghossein et Lévesque, 2012](#)).

En supposant la matrice incompressible de faible module de Young (6 MPa) et des billes rigides avec un module de Young de 69 GPa et coefficient de Poisson de 0.25, les premières analyses éléments finis sur les microstructures ont pu être mises en œuvre, notamment pour confirmer l'influence des interdistances récemment décrite par [Gusev \(2016\)](#) et l'intérêt de l'étape de raffinement local du maillage. Ainsi, six microstructures avec une fraction volumique de 50% de sphères et des interdistances spécifiques ont été générées, aboutissant aux propriétés reportées sur la Figure 2.7. Une tendance tout à fait similaire à l'étude de [Gusev \(2016\)](#) est obtenue avec un impact important des grandes interdistances sur le comportement et une asymptote atteinte autour de $\lambda/D = 10^{-4}$. Cette brève analyse confirme d'une part la cohérence du protocole complet de génération vis-à-vis de la littérature, et d'autre part l'efficacité de la solution de maillage pour gérer les cas d'interdistances très faibles.

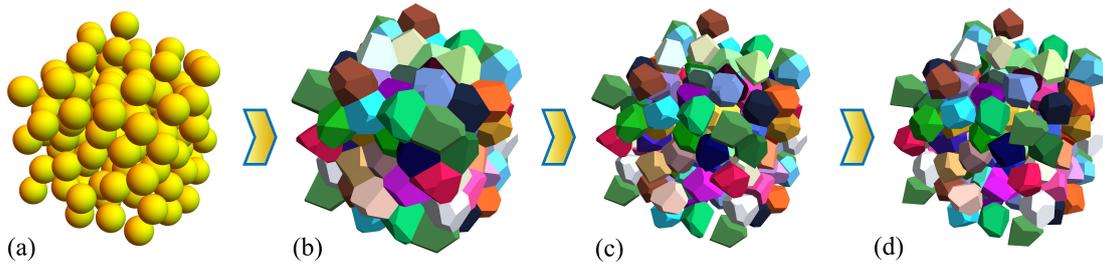


FIGURE 2.8 : Processus de génération d'une microstructure chargée avec une distribution aléatoire de polyèdres irréguliers. (a) Initialisation à partir d'une distribution aléatoire de sphères ($f_{\text{vol}} = 55\%$). (b) Utilisation de leur centre en tant que point de germination du diagramme de Voronoï. (c) Les particules sont contractées pour faire décroître la fraction volumique de 100 à 55%. (d) Application à chaque polyèdre de rotation et translations aléatoires.

2.1.2 Inclusions polyédriques

Le cadre classique de la simulation micromécanique des propergols a été étendu pour considérer des charges de formes plus irrégulières.

Méthode de génération

Le processus de génération des microstructures chargées avec des polyèdres a été développé à partir d'un diagramme de Voronoï. En premier lieu, une microstructure chargée avec des sphères monomodales est obtenue suivant le processus de génération et la paramétrisation détaillée dans la section précédente. Les centres des sphères correspondent alors à une répartition aléatoire de points de germination avec des zones d'effet similaires (Figure 2.8(a)). Dans un second temps, afin d'assurer la périodicité de la microstructure, la série de points est dupliquée 26 fois autour de la cellule originale. Cette extension n'est que temporaire et les frontières de la microstructure finale seront bien les mêmes qu'originellement. La tétraédrisation de Delaunay du système global est ensuite calculée et les sommets de chacun des tétraèdres sont listés de façon à obtenir le diagramme de Voronoï. Les polyèdres occupent dès lors l'ensemble de la cellule (Figure 2.8(b)), une contraction est donc appliquée à chaque polyèdre en introduisant une homothétie centrée sur leur point de germination. À la fin de ce processus, librement inspiré de [Fritzen et Boehlke \(2011\)](#), des microstructures telles que celle proposée sur la Figure 2.9(c) peuvent être obtenues. Les polyèdres générés présentent alors une dispersion de volume de 10% autour du volume moyen, sont globalement équiaxes et possèdent en moyennes 14 faces.

Afin de se conformer au caractère monomodale des particules sphériques, le volume de chaque polyèdre est ajusté avec une nouvelle homothétie pour supprimer toute dispersion. Par ailleurs, malgré la forme irrégulière des polyèdres, le processus de contraction induit la présence régulière de plans parallèles et de même épaisseur comme on peut l'observer sur la Figure 2.8(c). Cette propriété a parfois été recherchée, notamment par [Nadot-Martin *et al.* \(2011\)](#) qui propose de confronter l'approche semi-analytique reposant sur [Christoffersen \(1983\)](#) (section 1.3.1) à une simulation numérique. Néanmoins, elle est en contradiction tant avec la morphologie des propergols chargés en RDX (Figure 1.5(b)) qu'avec celle du composite modèle chargé avec des éclats de verre (Figure 1.7(b)). C'est pourquoi le processus de génération a été complété en appliquant des rotations et des translations aléatoires à chaque polyèdre pour supprimer ces plans réguliers.

Une permutation aléatoire de l'indexation des polyèdres est générée et les perturbations sont

appliquées à chacun d'entre eux suivant la séquence suivante : le type de déplacement, rotation ou translation, est d'abord choisi aléatoirement. Par la suite, dans le premier cas, une rotation aléatoire, à partir des angles d'Euler, pondérées par un facteur d'amplitude et centrée sur le point de germination est appliquée à chaque sommet du polyèdre. En cas de translation, un vecteur de déplacement aléatoire, pondéré par un autre facteur d'amplitude, est généré et appliqué au point de germination puis à chacun des sommets du polyèdre. Enfin, la transformation est validée ou rejetée à partir d'un critère de non-interpénétration des particules évalué grâce à l'algorithme GJK de Gilbert-Johnson et Keertie ([Gilbert *et al.*, 1988](#)). En effet, le diagramme de Voronoï ne génère que des polyèdres convexes. Lorsque la permutation a été entièrement parcourue, chaque facteur d'amplitude est augmenté si au moins la moitié des transformations ont été validées. Dans le cas contraire, il est réduit. Cette séquence est répétée une centaine de fois, jusqu'à ce que les facteurs d'amplitude atteignent des valeurs négligeables.

Ce processus a été développé en accordant une attention toute particulière à ne pas perdre la périodicité de la microstructure. Ainsi pour chaque polyèdre issu de la cellule originale, une liste de polyèdres associés, venant des 26 duplications, est définie et les mêmes perturbations sont appliquées aux polyèdres associés dès lors qu'elles ont été validées sur la base du critère de non-interpénétration. L'ensemble du processus a été implémenté dans un routine [Matlab.2017a](#) et nécessite environ une heure pour générer une microstructure de 64 particules sur un ordinateur standard (2.59 GHz Intel Core i7-6700HQ CPU avec 16 Go de RAM). Des microstructures telles que celle visible sur la Figure 2.9(a) sont alors obtenues.

Taille des VER dans le cas d'inclusions polyédriques

De même que pour les microstructures chargées avec des sphères, Netgen a été utilisé pour réaliser les maillages périodiques et mener les analyses éléments finis. Contrairement au premier cas, aucun élément distordu n'a été détecté pour ce type de microstructures. Néanmoins, le mailleur est mis en échec dès lors que la distance entre deux éléments est plus petite que $10^{-4}.a$, où a est la longueur d'un côté de la cellule. Cette nouvelle difficulté a été corrigée en introduisant une étape de pré-maillage. Ainsi, à l'issue du processus de génération, pour chaque polyèdre, l'ensemble des distances internes (longueur des arêtes) a été évalué de même que l'ont été les distances à tous les éléments alentour (faces, arêtes ou sommets de la cellule ou des polyèdres voisins). Pour les polyèdres traversant une ou plusieurs faces de la cellule, toutes les intersections ont aussi dû être localisées. Toutes les interdistances internes inférieures au seuil limite sont supprimées soit en réunissant les deux points (dans l'esprit de [Quey *et al.* \(2011\)](#)), soit en ajoutant une petite surface supplémentaire (effet négligeable sur la fraction volumique). Si le seuil est dépassé du fait d'un élément externe ou d'une intersection, de très petites translations sont appliquées jusqu'à ce qu'une position valide soit atteinte. Une fois encore, l'algorithme de GJK est un élément important de cette étape, dans la mesure où il permet également d'évaluer, très rapidement, la distance minimum entre deux polyèdres. Cette étape induit parfois des échecs de génération, néanmoins ils restent rares ($<1/10$). À l'issue de ce processus complet, les microstructures peuvent être maillées et des discrétisations semblables à celle de la Figure 2.9(b) peuvent être obtenues.

Si l'étude de [Gusev \(1997\)](#) a fait naître un consensus sur le nombre de particules sphériques à intégrer pour obtenir un VER (au moins statistique), cette quantité est beaucoup moins évidente dans le cas de particules irrégulières. De façon à éclaircir ce point, le processus proposé par [Fritzen *et al.* \(2009\)](#) pour une microstructure entièrement remplie de particules irrégulières a été reproduit. Des lots de cinq microstructures contenant 8, 16, 32, 64 ou 128 inclusions polyédriques

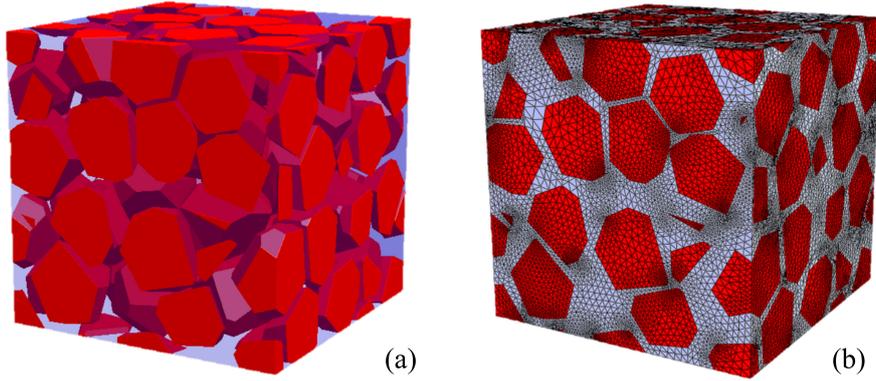


FIGURE 2.9 : Exemple de microstructure générée avec 64 polyèdres pour $f_{\text{vol}}=55\%$ (a) avant et (b) après son maillage en vue de l'analyse éléments finis.

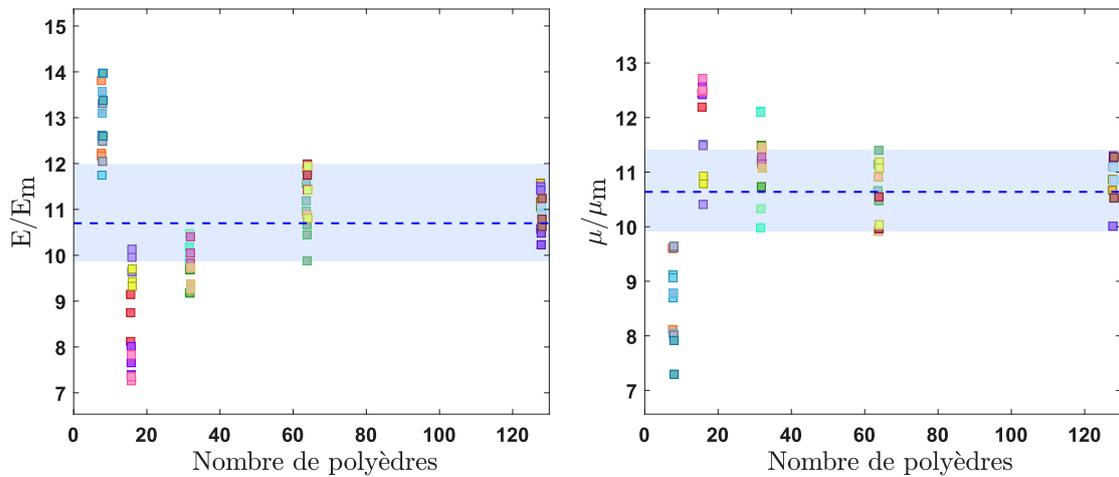


FIGURE 2.10 : Propriétés élastiques de microstructures chargées à 55% avec des polyèdres irréguliers en fonction de leur nombre. Cinq microstructures ont été testées pour chaque nombre d'inclusions considéré. Pour faciliter l'identification de la convergence, une ligne en pointillés reporte le comportement moyen de toutes les configurations testées et l'étendue de la dispersion obtenue avec les microstructures contenant 64 particules est couverte par une bande bleutée.

ont été générés et soumis à des tractions uniaxiales et des cisaillements simples suivant leurs axes principaux, dans le cadre de l'élasticité linéaire avec les mêmes comportements de phases que lors du test de la Figure 2.7. Leurs modules de Young et de cisaillement ainsi évalués ont été reportés sur la Figure 2.10. Les valeurs moyennes comme les dispersions obtenues avec des 64 polyèdres semblent avoir atteint une asymptote similaire à celle obtenue avec des sphères par Gusev (1997). Ainsi, sur la base de cette analyse, l'ensemble des VER générés dans ce projet, quelle que soit la forme des inclusions, seront périodiques avec 64 particules.

2.2 Analyse statistique des microstructures chargées avec des sphères et validation de leur représentativité

Le contexte de la génération et du maillage de microstructures chargées en particules sphériques ou polyédriques ayant été détaillé, il s'agit désormais d'évaluer leur représentativité. Cette analyse nécessite une présentation détaillée des composites simplifiés ainsi que de leur caractérisation, permettant par la suite d'envisager des confrontations qualitatives et quantitatives avec

les comportements obtenus grâce aux simulations numériques.

2.2.1 Étude d'un cas réel

Le processus d'élaboration des matériaux composites de référence va être détaillé ainsi que la démarche mise en œuvre afin d'évaluer leurs propriétés élastiques. Cette présentation sera complétée par la caractérisation de leur comportement en grandes déformations. Bien que ces réponses dépassent le cadre du présent chapitre, elles seront un support particulièrement intéressant pour les futures extensions des simulations numériques.

Élaboration des composites modèles

Une matrice élastomérique a été obtenue en mélangeant 98% en masse molaire de méthacrylate (MA) et 2% en masse molaire de polyéthylène glycol diméthacrylate (PEGDEMA) ayant une masse molaire de 750g/mol. Du 2,2-Diméthoxy-2-phénylacétophenone (DMPA) a enfin été ajouté en tant que photo-initiateur, l'ensemble des composants ayant été directement fournis par Sigma Aldrich.

Le processus d'élaboration commence par un nettoyage des particules suivant les recommandations de [Cras *et al.* \(1999\)](#). Par la suite, elles sont lentement saupoudrées dans le prépolymère en remuant continuellement afin d'obtenir un mélange homogène. La préparation est ensuite versée dans un moule constitué de deux vitres séparées par un cadre en Téflon de 3mm d'épaisseur puis l'ensemble est exposé à un rayonnement UV pendant 40 minutes pour permettre la réticulation du polymère. Une fois le composite démoulé, il est soumis à une température de 45°C pendant 15 minutes de façon à supprimer d'éventuelles contraintes résiduelles. Au cours du processus d'élaboration, une partie du prépolymère est conservée avant l'introduction des particules afin de réaliser des échantillons de matrice pure. Le liquide vierge est alors versé dans un moule similaire à celui utilisé pour le mélange matrice/particule avec une épaisseur réduite à 1 mm. Les étapes principales de ce processus sont visibles sur la [Figure 2.11](#). Enfin, des échantillons d'une taille de 40x10x3 mm³ (ou 40x10x1 mm³) peuvent être extraits du composite, à l'aide d'un emporte-pièce, pour caractériser leur comportement mécanique ([Figures 2.12\(a\)](#)).

Le procédé de fabrication n'est pas à même de contrôler précisément la fraction volumique en particule qui résulte de l'effet de la gravité lors de la phase de coulée dans le moule. Cette propriété peut dépendre de la position dans la plaque et doit donc être évaluée pour chaque éprouvette grâce à un rapport de densités mesurées à l'aide d'un pycnomètre à gaz (AccuPycII 1340). Ainsi, les billes et les éclats de verre présentent une densité commune $d_{part} = 2.53 \pm 0.02$ g.cm⁻³ et la matrice a une densité d_{mat} évaluée à 1.20 ± 0.02 g.cm⁻³. La densité d_{compo} de chaque échantillon permet alors d'évaluer sa fraction volumique en particule f_{vol} suivant :

$$f_{vol} = \frac{d_{compo} - d_{mat}}{d_{part} - d_{mat}} \quad (2.6)$$

Les séries d'éprouvettes présentant la plus faible dispersion de fraction volumique à l'issue du processus d'élaboration sont sélectionnées pour les caractérisations mécaniques, leurs sections sont au préalable mesurées à l'aide d'un micromètre.

Caractérisation des propriétés élastiques

La campagne de caractérisation des propriétés élastiques s'est déroulée au laboratoire PIMM (Procédés et Ingénierie en Mécanique et Matériaux, ENSAM Paris), sur une machine de traction

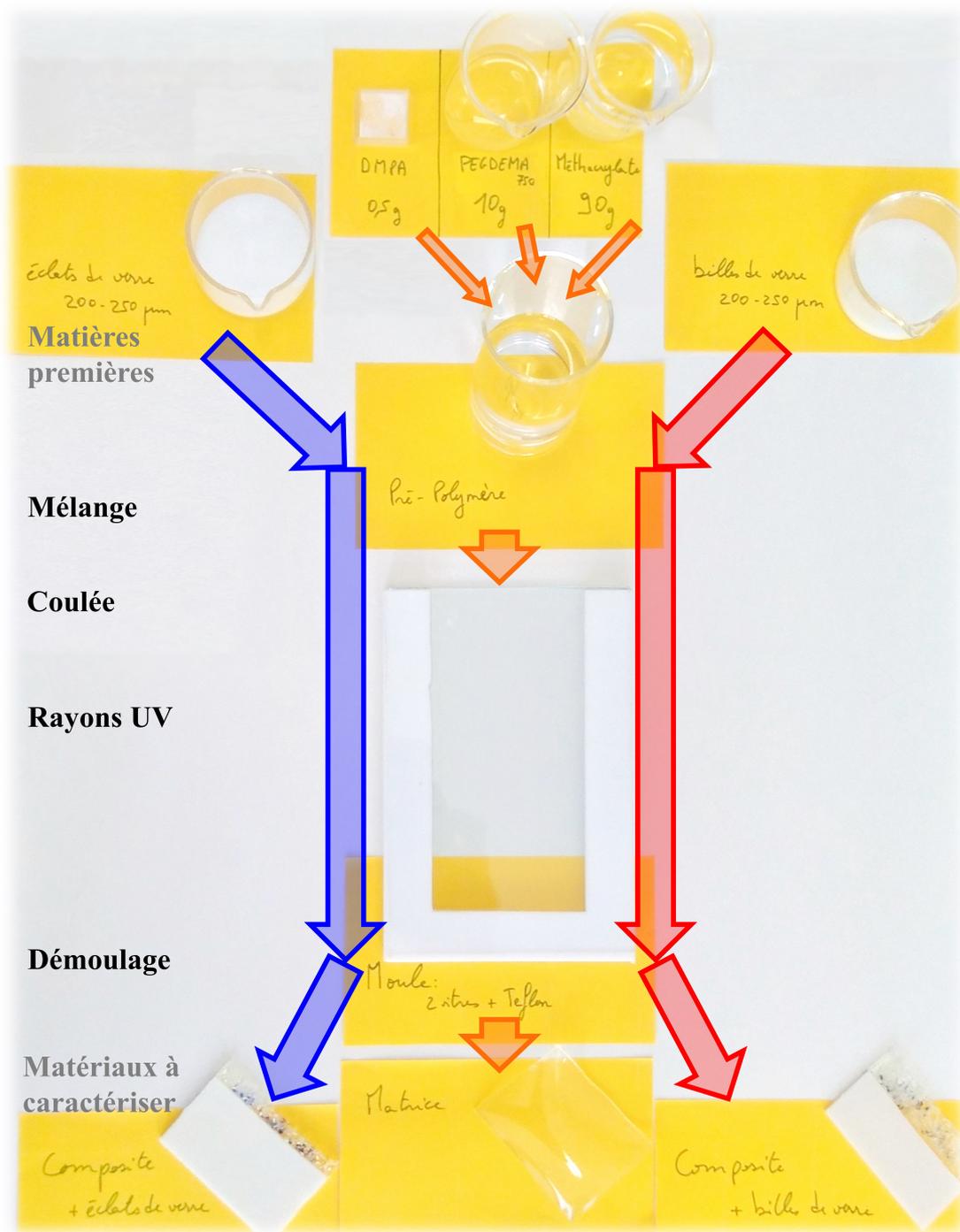


FIGURE 2.11 : Étapes du processus d'élaboration des deux matériaux composites et des échantillons de matrice pure.

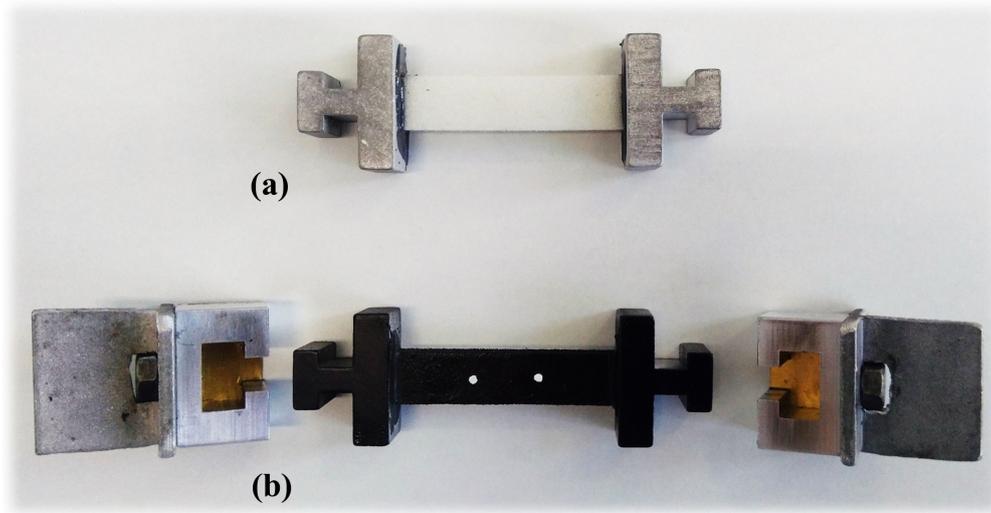


FIGURE 2.12 : (a) Échantillon du matériau composite avec des billes de verre après les étapes de découpe et de collage. (b) Éprouvette prête pour la caractérisation en traction. On distingue les marqueurs blancs pour la vidéoextensométrie, les mors en aluminium collés et enfin leurs supports assurant la compatibilité du montage avec des fixations standard de la machine de traction.

électromécanique Instron 5966 avec une cellule de force de 10 kN (classe 0.5). Cette première approche s'est exclusivement focalisée sur le comportement élastique des composites modèles chargés avec des billes de verre. Les échantillons de composites réalisés pour cette campagne présentaient une fraction volumique moyenne de 52%, légèrement inférieure à la référence des simulations numériques.

La caractérisation de ces composites ne peut se reposer sur un montage classique avec des éprouvettes serrées dans des mors. Cela induirait un endommagement au niveau des parties comprimées et une perturbation importante de la caractérisation. Une autre solution, traditionnellement utilisée dans le domaine des propegols, consiste à encastrier l'éprouvette pour appliquer les déplacements. Néanmoins, cette stratégie nécessite des échantillons avec des congés importants, comme l'a détaillé [Nevière \(2006\)](#) en présentant une éprouvette standard dans le domaine propegols, avec une hauteur de 127mm (NFT 70-315). Or, le processus d'élaboration précédemment détaillé ne permet pas d'obtenir des échantillons de grande dimension tout en assurant une faible hétérogénéité de fraction volumique. Pour s'affranchir de ces difficultés, les échantillons ont été collés (Loctite Flexcomet PU 15) sur des mors en aluminium (Figure 2.12). Ces derniers peuvent alors être emboîtés dans des supports compatibles avec des mors standard de traction, permettant la préhension de l'assemblage. Afin de négliger l'effet du collage, la déformation effective des éprouvettes est mesurée par vidéoextensométrie (Instron AVE2).

Six éprouvettes de matrice ont d'abord été sollicitées en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 0.1mm/min. La réponse de trois d'entre elles est reportée sur la Figure 2.13 entre 0.1% et 0.4% de déformation. On constate une amplitude d'oscillation non négligeable du signal de force du fait d'un intervalle d'intérêt restreint vis-à-vis de la sensibilité de la cellule. Ces fluctuations entraînent, par ailleurs, une légère imperfection de la mise à zéro du signal de force pour une déformation nulle. Néanmoins, malgré ces perturbations, un comportement linéaire peut être identifié avec une pente de 6.0 MPa. Bien que les éprouvettes présentent une répétabilité intéressante, une variabilité de la pente de ± 0.5 MPa est tout de même enregistrée.

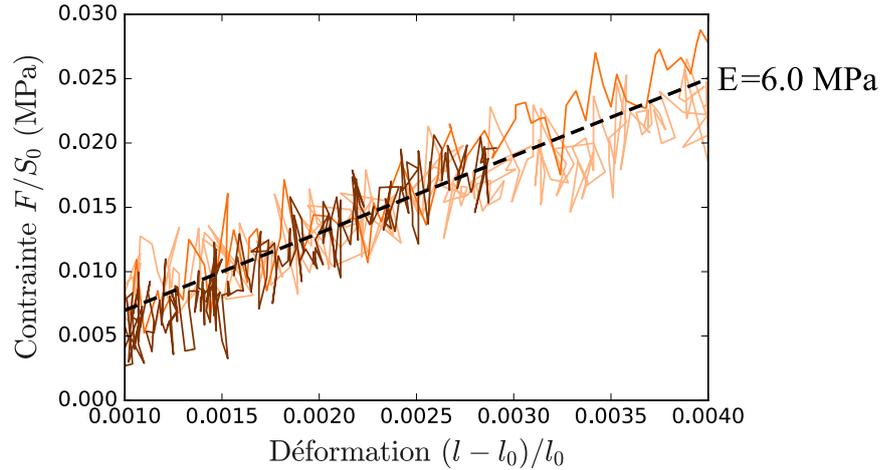


FIGURE 2.13 : Comportements mécaniques en traction uniaxiale à 20°C et 0.1mm.min⁻¹ de trois éprouvettes de matrice pure.

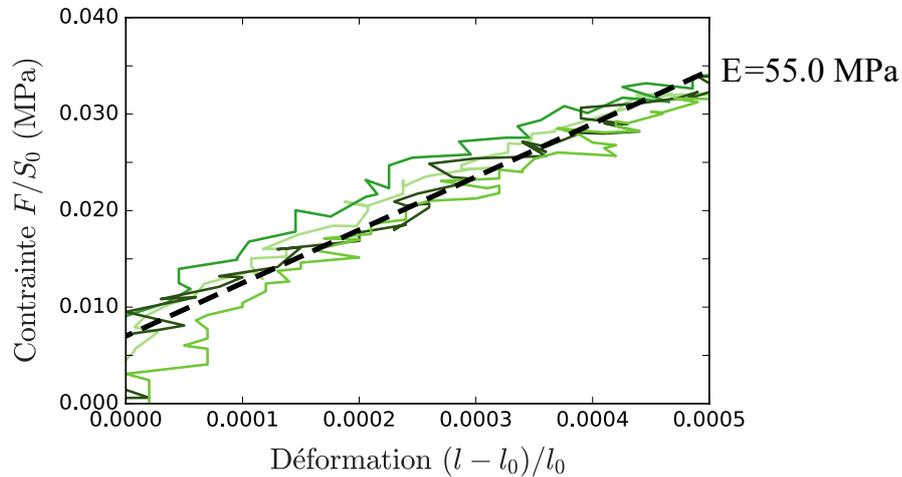


FIGURE 2.14 : Comportements mécaniques en traction uniaxiale à 20°C et 0.1mm.min⁻¹ de quatre éprouvettes de composite contenant 52±1% de fraction volumique de billes de verre.

Six éprouvettes de composite contenant une fraction volumique moyenne de 52% de billes de verre ont été sélectionnées, présentant alors une dispersion raisonnable de $\pm 1\%$. Quatre comportements obtenus en tractions uniaxiales à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 0.1mm/min sont reportés sur la Figure 2.14. Une pente de 55 MPa caractérise la réponse des composites, qui présentent également une répétabilité notable avec une dispersion des pentes de ± 5 MPa.

Cette caractérisation du matériau composite avec des billes de verre permet de définir les paramètres de comportements pour les simulations dans le cadre de l'élasticité linéaire tout en offrant un repère pour estimer la qualité des propriétés élastiques estimées numériquement. Ainsi un comportement élastique quasi-incompressible avec un module de Young de 6 MPa a été sélectionné pour la matrice, nécessitant le recours à des éléments hybrides (C3D10H). La prise en compte d'un module de compressibilité raisonnable à 3 GPa pour la matrice de méthacrylate a démontré un impact non négligeable sur les propriétés élastiques estimées. L'origine de ce choix sera plus largement détaillée par la suite, néanmoins, à la différence des simulations présentées dans Francqueville *et al.* (2019), il est intégré dès à présent dans les calcul en définissant un coefficient de Poisson de la matrice de 0.4996667. Du fait du contraste du comportement des

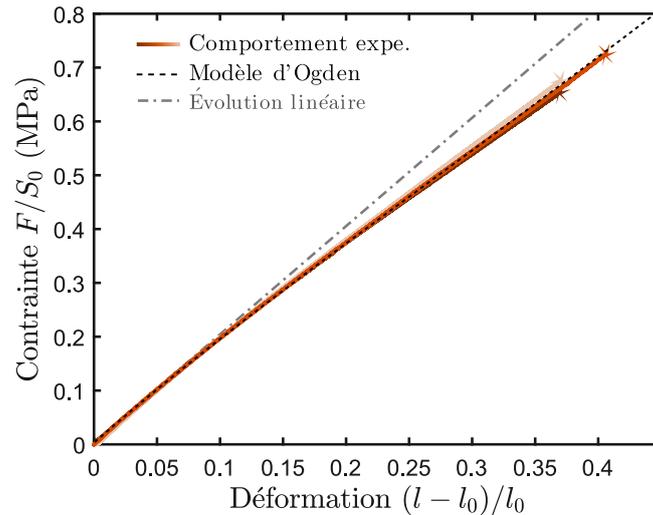


FIGURE 2.15 : Comportements mécaniques en grandes déformations pour une traction uniaxiale à 20°C et 0.1mm.min⁻¹ de trois éprouvettes de matrice pure. Une évolution rectiligne est ajoutée pour mettre en évidence la non-linéarité des comportements.

phases, les particules se déforment très peu. Un module de Young raisonnable pour verre de 69 GPa avec un coefficient de Poisson de 0.25 ont donc été choisis pour les inclusions en général et les sphères en particulier. Ces propriétés serviront alors de référence dans le cadre des petites déformations et seront implémentées dans la très grande majorité des simulations proposées par la suite.

Comportements en grandes déformations

Une nouvelle campagne a été menée ultérieurement en se focalisant sur le comportement en grandes déformations des deux matériaux composites modèles contenant des billes et des éclats de verre. Les échantillons ont été élaborés de la même façon que pour la campagne consacrée à la caractérisation des propriétés élastiques. Leur géométrie et leur stratégie de préhension sont conservées à l'identique alors que les caractérisations mécaniques ont été menées au LMS (Laboratoire de Mécanique des Solides, École Polytechnique). Une machine de traction proche de la première (Instron 5967) a été utilisée avec une cellule de force de 50N (de classe 0.5) et un extensomètre vidéo développé au sein du laboratoire. Ce dernier est implémenté dans le code commercial [Labview.2018](#) et permet de suivre, en direct, le déplacement de 2 points sur des images prises avec une caméra de 3 MPx équipée d'un objectif télécentrique. Lors de cette seconde campagne, des fractions volumiques de particules plus importantes, autour 55%, ont pu être obtenues.

Le comportement jusqu'à rupture de la matrice a d'abord été caractérisé. Trois réponses non linéaires sont reportées sur la Figure 2.15 présentant une excellente répétabilité. Un modèle d'Ogden (1982) semble alors capable de reproduire ce comportement avec un jeu de paramètres seulement, $\mu=0.3$ MPa et $\alpha=3.2$ (Figure 2.15). En adéquation avec la prise en compte d'un module de compressibilité de 3 GPa pour l'élastomère, le facteur de compressibilité de la loi hyperélastique est fixé à $D=6.6667 \cdot 10^{-4}$ MPa⁻¹. Ce modèle de comportement de la matrice sera ainsi implémenté dès lors que les simulations seront étendues aux grandes déformations.

Par ailleurs, les comportements en grandes déformations de trois éprouvettes des deux matériaux composites modèles ont été caractérisés alors qu'une fraction volumique de $55 \pm 1\%$ a été

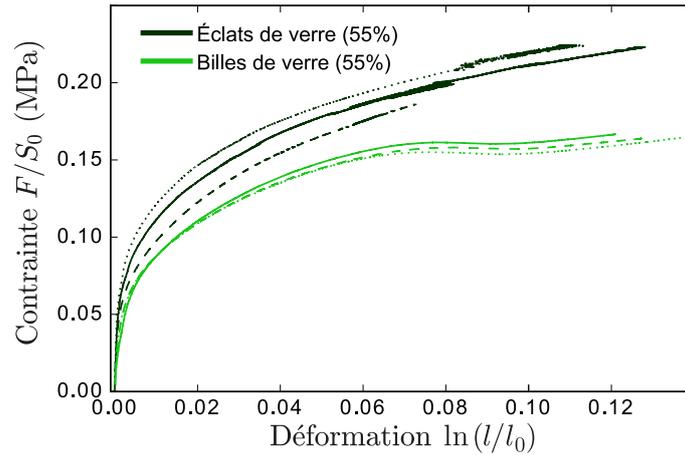


FIGURE 2.16 : Comportements mécaniques en grandes déformations pour une traction uniaxiale à 20°C et 0.1mm.min⁻¹ de trois éprouvettes des composites modèles contenant 55±1% de fraction volumique respectivement de billes et d'éclats de verre.

mesurée pour chaque série. Quelques soient les particules introduites, une bonne reproductibilité des réponses en traction quasi statique (0.1mm/min) à 20°C a été obtenue (Figure 2.16), malgré une dispersion plus forte dans le cas des composites avec des éclats de verre. Les composites ont ainsi tous deux un comportement initial linéaire suivi d'un adoucissement vraisemblablement dû à la décohésion matrice/particule. D'autre part, il convient de noter que si l'adoucissement est stable dans le cas de particules polyédriques, une inflexion très spécifique, et reproductible, est visible à partir de 7% de déformation dans le cas des composites contenant des billes de verre. Enfin, alors que seule la morphologie des charges est différente, les efforts transmis sont qualitativement supérieurs dans le cas des charges facettées, avec une contrainte critique 30% plus importante.

Dans le cadre des grandes déformations, ces comportements réels de matériaux avec une morphologie très proche de celle des microstructures numériques pourront servir de repère pour analyser la cohérence des simulations. Dans ce nouveau cadre, les propriétés de références des inclusions seront conservées alors que l'élasticité de la matrice sera remplacée par un modèle d'Ogden. Cependant avant d'envisager une extension au-delà du domaine linéaire, la représentativité des microstructures doit d'abord être confirmée dans le cadre des petites déformations.

2.2.2 Étude statistique et optimisation

Les microstructures générées représentent au mieux des volumes élémentaires statistiques. Aussi, s'ils sont dénommés par extension VER, ils ne peuvent s'affranchir d'une analyse statistique. Très peu d'études se penchent sur la question du nombre précis de VER à considérer : Kanit *et al.* (2003) proposent une méthode utilisant la portée intégrale pour évaluer, a priori, la dispersion attendue des propriétés en fonction de la taille d'un VER. De son côté, Gusev (2016) considère, sans plus de justifications, des lots de sept cellules. Afin d'éclaircir ce point, une série de microstructures a été générée et leurs propriétés élastiques ont été évaluées en les soumettant à six sollicitations (3 tractions et 3 cisaillements simples suivant les axes principaux de la cellule). La dispersion des trois modules de Young (E_1, E_2, E_3) et la dispersion des trois modules de cisaillement (μ_1, μ_2, μ_3) a permis d'évaluer l'isotropie des microstructures. Dans la mesure où la matrice est quasi-incompressible et qu'elle concentre l'ensemble de la déformation, du fait de sa souplesse, le composite peut être considéré comme quasi-incompressible dans le cadre des petites

déformations. Cette hypothèse est courante dans le domaine des propergols et a été largement exploitée par Farris (1964) pour détecter le début de l'endommagement. L'isotropie peut alors être testée avec la valeur du rapport $\bar{E}/3\bar{\mu}$ qui doit être proche de un, où $\bar{E} = (E_1 + E_2 + E_3)/3$ et $\bar{\mu} = (\mu_1 + \mu_2 + \mu_3)/3$. Ce critère supplémentaire est d'autant plus intéressant que pour une structure parfaitement ordonnée (ayant donc une symétrie cubique), il sera le seul discriminant avec un rapport $\bar{E}/3\bar{\mu} \approx 0.42$ (Nunan et Keller, 1984b,a).

Analyse brute

Une série de vingt microstructures contenant 55% de fraction volumique de particules sphériques a été générée avec des évolutions de pression suivant l'EOS (Figure 2.2). En s'appuyant sur le cadre des simulations numériques détaillé précédemment, leurs propriétés élastiques ont été calculées et sont reportées sur la Figure 2.17 montrant les modules de Young et de cisaillement normalisés par ceux de la matrice et le critère supplémentaire d'isotropie défini comme $|\bar{E}/3\bar{\mu} - 1|$. Le processus complet de génération a été répété dans son ensemble pour chaque microstructure, en partant de distributions aléatoires différentes. Chaque numéro d'indexation définit donc une réalisation indépendante avec une couleur dédiée.

La Figure 2.17 révèle des différences notables d'anisotropie d'une microstructure à l'autre. Par exemple, la microstructure 6 présente une très faible dispersion des modules de Young et de cisaillement avec un excellent critère d'isotropie. Par opposition, la microstructure 7 présente une faible dispersion de son module de Young, mais une large dispersion pour son module de cisaillement et un critère supplémentaire d'isotropie très insatisfaisant. Face à ces écarts, la question de la qualité de la population statistique analysée se pose. Deux solutions sont alors possibles : soit chercher le nombre de microstructures à considérer pour diluer l'effet des cellules anisotropes (donc peu représentatives), soit sélectionner, a priori, les VER de "bonne qualité" en s'appuyant, par exemple, sur les fonctions de caractérisation de l'ordre géométrique. Cette dernière approche semble la plus cohérente, car moins chronophage. En effet, les deux fonctions de caractérisation géométrique peuvent être évaluées en près de 20 minutes sur un ordinateur standard alors que la caractérisation numérique des six propriétés élastiques nécessite plus de trois heures sur huit nœuds de cluster de calcul (2.5 GHz Intel Xeon E5-2640 CPU avec 64 GB de RAM), sans même prendre en compte l'étape de maillage. Cette solution est d'autant plus intéressante que les comportements simulés sont complexes (grandes déformations avec endommagement dans le cas présent).

Sélection à partir de propriétés géométriques

De la même façon que pour les microstructures correspondant aux trois types d'évolution de pression, les fonctions de caractérisation géométriques (S_2 et H_v) ont été appliquées aux vingt microstructures présentées précédemment. L'idée est de démontrer leur capacité à rejeter efficacement les microstructures présentant un défaut de représentativité avant même de les mailler. Cette démonstration sera illustrée à partir de quatre microstructures représentatives des configurations qui peuvent être obtenues. Parmi elles, seule la microstructure 6 présente une isotropie acceptable alors que les cellules numéro 2, 7 et 11 sont des cas à rejeter (Figure 2.17).

La Figure 2.18 reprend l'évolution de S_2 pour ces quatre microstructures. Afin de faciliter l'analyse, l'échelle de couleurs a été réduite et centrée sur f_{vol}^2 par rapport aux représentations précédentes. Ainsi, les microstructures 2 et 7 peuvent être directement rejetées dans la mesure où elles ne présentent pas de convergence asymptotique vers f_{vol}^2 et possèdent des pics dispersés qui sont parfaitement incohérents avec l'évolution de référence de la Figure 1.22(a) qui est reproduite

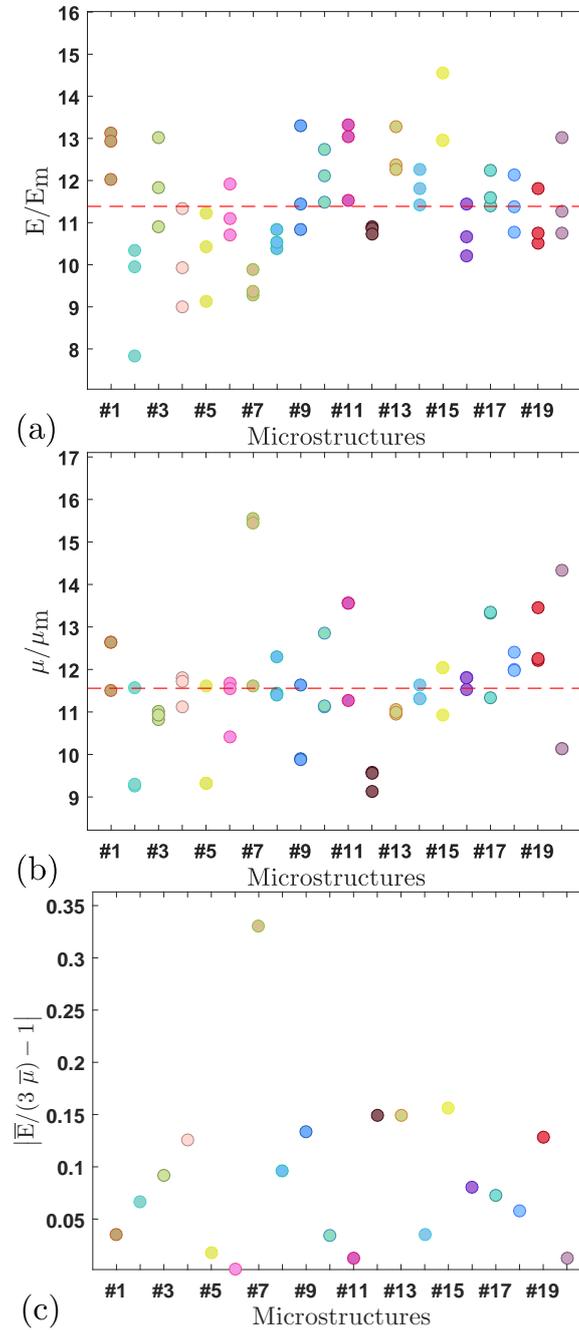


FIGURE 2.17 : Modules de Young (a) et de cisailment (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux des vingt microstructures contenant une fraction volumique de 55% de sphères. Les lignes en pointillés représentent les moyennes des modules sur l'ensemble de la série. (c) Critère supplémentaire d'isotropie évalué à partir du rapport des valeurs moyennes des modules de Young et de cisailment calculés pour chaque microstructure.

au centre de la Figure 2.18 avec l'échelle de couleurs réduite. Par opposition, les microstructures 6 et 11 reproduisent une évolution proche de celle théoriquement obtenue pour la configuration de Percus-Yevick : une symétrie quasi-sphérique et une convergence vers f_{vol}^2 pour les plus grands segments tests.

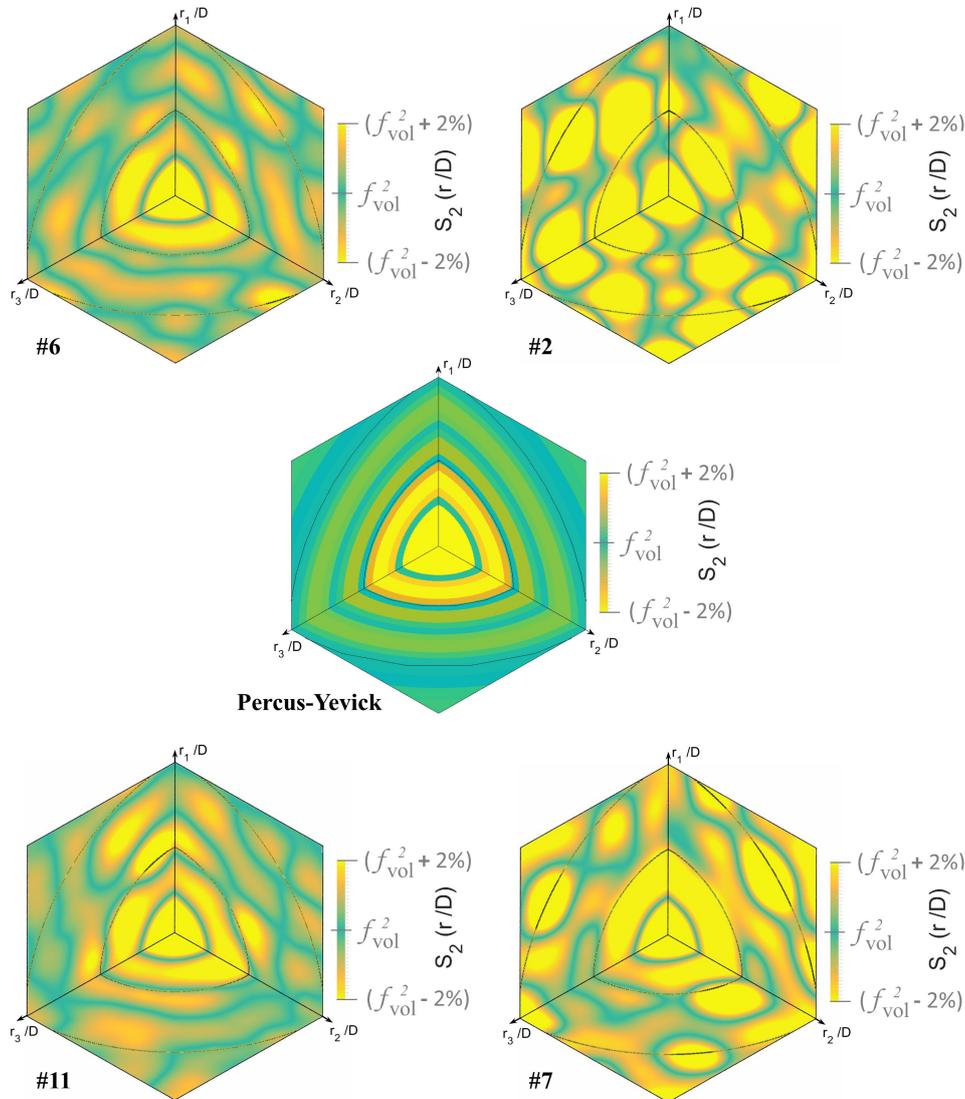


FIGURE 2.18 : Évolution de la fonction S_2 pour quatre microstructures contenant 64 sphères représentant 55% de la fraction volumique et dans le cas d'une évolution de Percus-Yevick. L'échelle de couleur a été réduite afin de faciliter l'analyse.

En complément de la caractérisation par S_2 , la Figure 2.19 compare les distributions des plus proches voisins H_v des microstructures 6 et 11. Cette nouvelle analyse permet de rejeter la microstructure 11 contrairement à la microstructure 6 qui, tant du point de vue de H_v que de S_2 , semble particulièrement aléatoire.

L'application de ces caractérisations aux microstructures de la série précédente confirme que celles qui présentent l'anisotropie la plus forte ont au moins un défaut de désordre du point de vue de S_2 ou de H_v . Il semble donc que ces deux fonctions permettent de discriminer efficacement les microstructures anisotropes pour un temps de caractérisation très raisonnable.

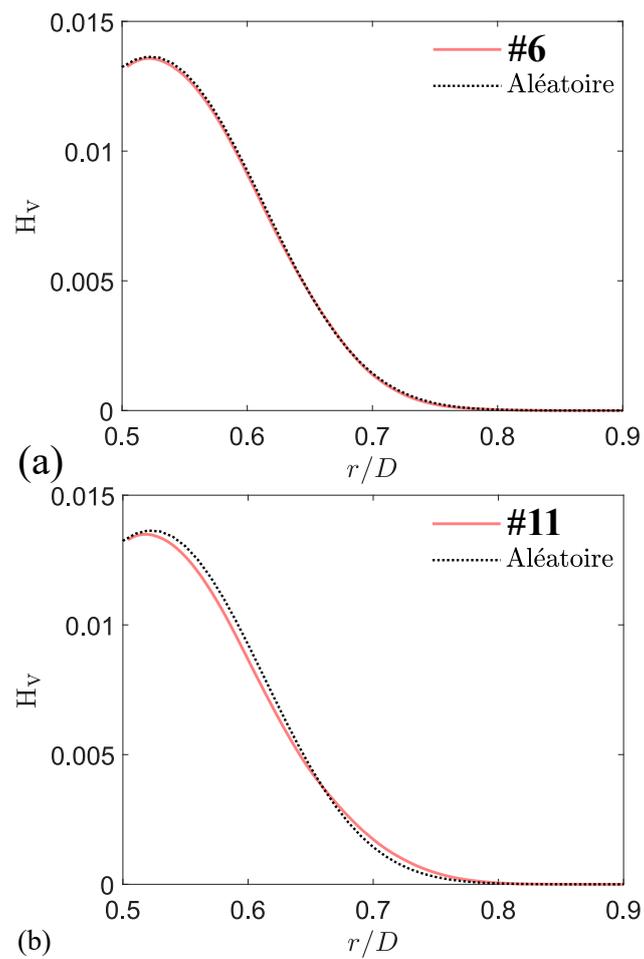


FIGURE 2.19 : Comparaison des distributions des plus proches voisins des microstructures 6 (a) et 11 (b) avec la distribution théorique d'un système parfaitement aléatoire (pointillés noirs) contenant une fraction volumique de 55% de sphères.

Analyse optimisée

Une fois ce processus de sélection appliqué à la population de vingt microstructures, seules sept sont conservées (précisément les numéros 3, 4, 6, 8, 14, 17 et 18). Leurs propriétés géométriques du point de vue des fonctions S_2 et H_v sont respectivement reportées sur les Figures 2.20 et 2.21. Enfin leurs propriétés élastiques sont reprises dans la Figure 2.22. De manière très satisfaisante, on note une réduction de la dispersion des modules d'un facteur deux et la suppression des microstructures avec les pires critères d'isotropie. Par ailleurs, le comportement moyen estimé pour chaque module (respectivement 80.9 MPa pour le module de Young et 27.9 MPa pour le module de cisaillement) est tout à fait similaire à celui obtenu avec les vingt microstructures. Ainsi, une réduction de deux tiers des efforts nécessaires à la simulation éléments finis des microstructures a pu aboutir à une caractérisation de meilleure qualité uniquement grâce à l'optimisation de la population considérée en validant a priori sa représentativité géométrique.

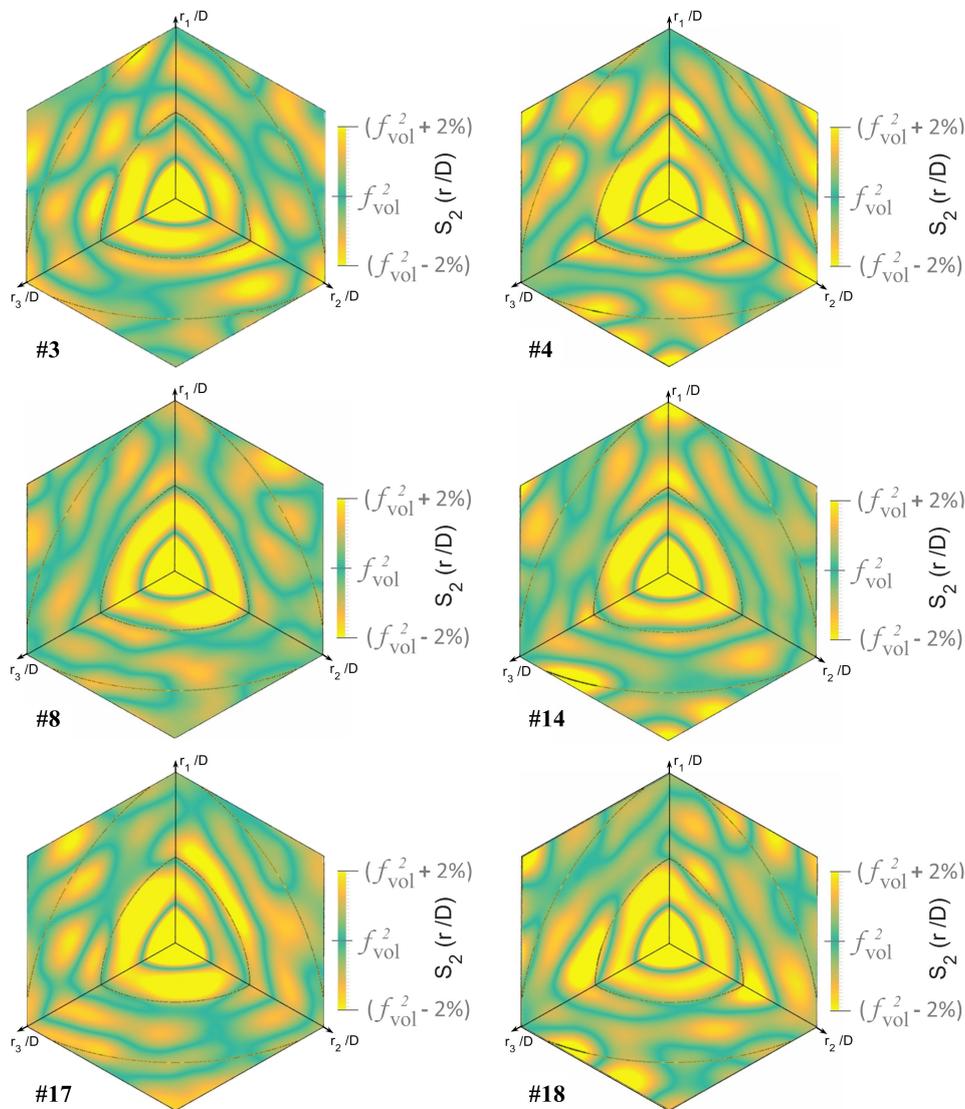


FIGURE 2.20 : Évolution de la fonction S_2 pour les six autres microstructures sélectionnées contenant 64 sphères représentant 55% de la fraction volumique.

En outre, l'imperfection rémanente de l'isotropie de la microstructure 6 (déviation standard de

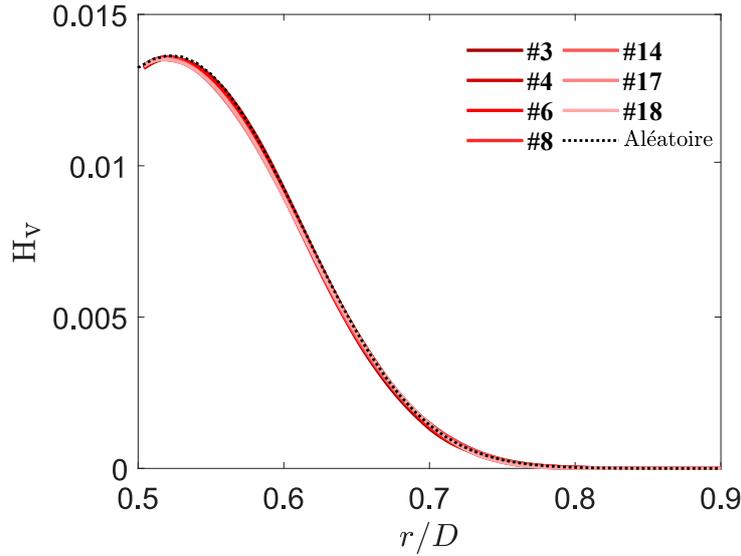


FIGURE 2.21 : Évolutions coïncidentes des distributions des plus proches voisins H_v des sept microstructures sélectionnées contenant 64 sphères représentant 55% de la fraction volumique avec la distribution théorique d'un système parfaitement aléatoire dans cette configuration (pointillés noirs).

10.2% pour le module de Young et 7.3% pour le module de cisaillement) confirme l'impossibilité de générer un VER parfait avec si peu de particules et donc la nécessité de recourir à une approche statistique, dans la configuration choisie pour cette étude.

Au-delà des microstructures présentées ici, ce processus de sélection a été mis en œuvre au moins deux autres fois par des opérateurs différents afin de gagner en objectivité. Son application dans le cadre du stage de Nassim Zeroual et les études complémentaires qu'il a menées sont résumées dans l'Annexe C. Dans tous les cas, la réduction de la dispersion des modules a été confirmée de manière remarquable. En revanche, l'influence d'une sélection contrôlée sur les propriétés moyennes estimées est moins spectaculaire, dès lors que plus de 5 microstructures sont considérées (avec une évolution de la pression de génération suivant l'EOS).

2.2.3 Validation de la représentativité des comportements mécaniques

Cette estimation moyenne des modules reste l'objectif central de la démarche de simulation à partir de volumes élémentaires statistiques. Néanmoins, les prédictions des modèles d'homogénéisation analytiques divergent d'autant plus que le comportement des phases est contrasté et que la fraction volumique considérée est importante (Gusev, 2016; Ghossein et Lévesque, 2012). La configuration actuelle est donc située dans une gamme pour laquelle une divergence maximale des modèles est enregistrée. Cependant, la confrontation peut s'appuyer sur l'étude récente de Gusev (2016) qui donne accès à des résultats de simulations numériques comparables tout en confirmant la validité du modèle autocohérent généralisé (general self-consistent model, GSC) de Christensen et Lo (1979) et Christensen (1990) dans la présente configuration.

Confrontations aux estimations analytiques

Pour consolider les bases de cette première confrontation, l'étude du comportement des VER a été étendue en considérant différentes rigidités de la matrice comme le montre la Figure 2.23(a), avec une matrice quasi-incompressible contenant une fraction volumique de 55% de billes. La cohérence des approches numériques et analytique suivant l'évolution de la fraction volumique

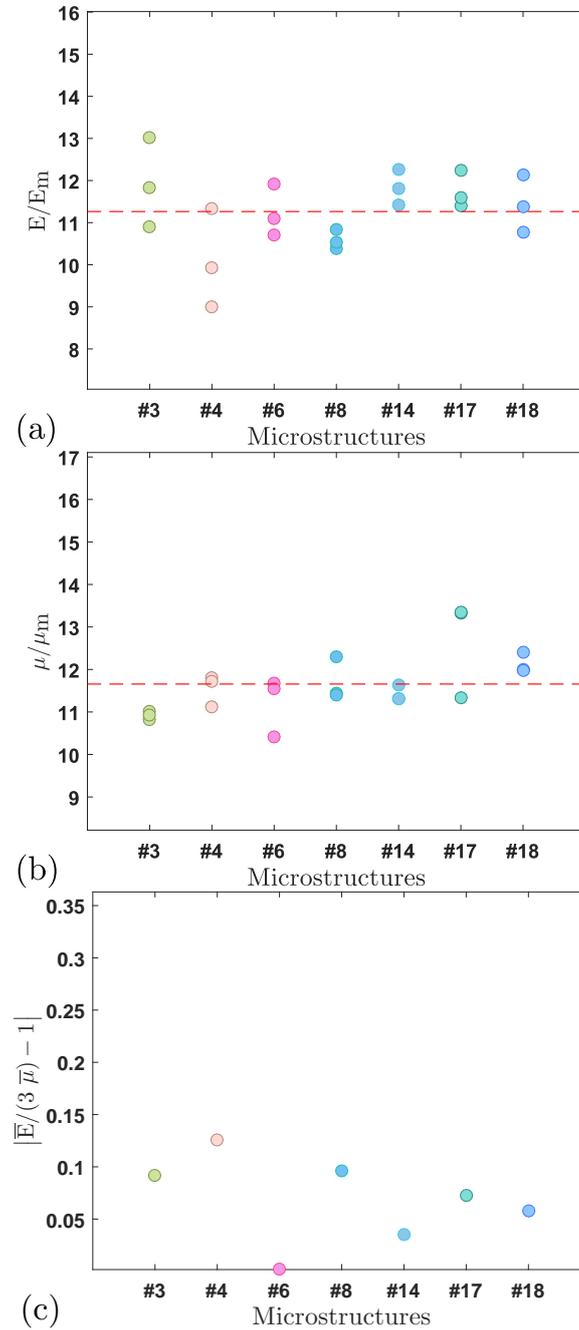


FIGURE 2.22 : Modules de Young (a) et de cisaillement (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux des sept microstructures **sélectionnées** selon les critères géométriques S_2 et H_v (Figures 2.20 et 2.21). Les lignes en pointillés représentent les moyennes des modules pour les sept microstructures. (c) Critère supplémentaire d'isotropie évalué à partir du rapport des valeurs moyennes des modules de Young et de cisaillement pour ces microstructures.

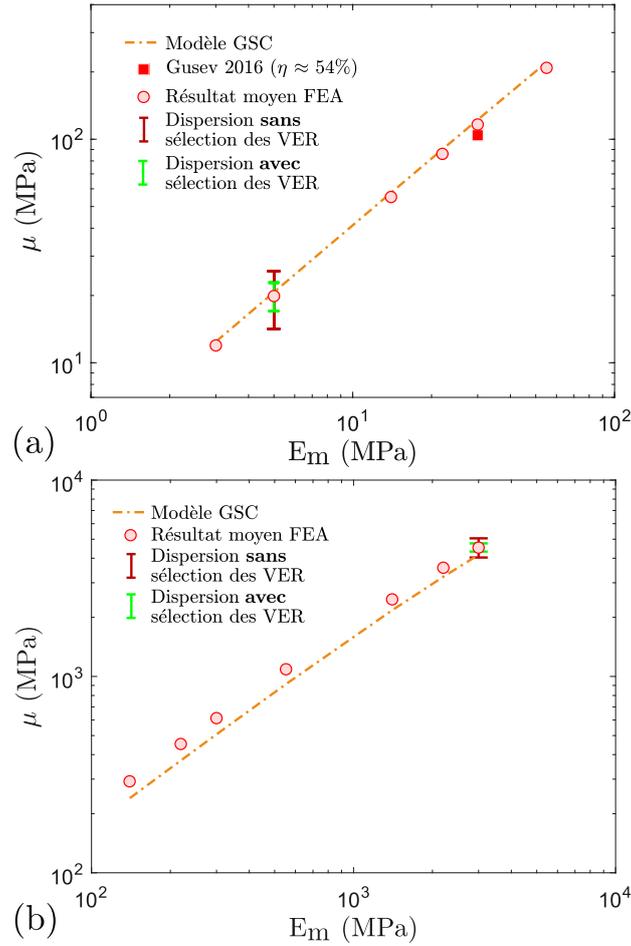


FIGURE 2.23 : Modules de cisaillement obtenus à partir des VER et des simulations éléments finis pour une matrice polymérique (Module de Young E_m) dans un état caoutchoutique (a) ou vitreux (b). La fraction volumique est de 55% en sphères et les résultats sans barre d'erreur sont directement extraits de la seule caractérisation de la microstructure numéro 14 (suivant les 3 axes principaux).

proposée par Gusev (2016) peut ainsi être étendue à une large gamme de comportements de l'élastomère (de 3 MPa à 55 MPa). En effet, les deux approches sont concomitantes quelle que soit l'étendue de la dispersion des estimations numériques prise en compte, avec ou sans sélection des VER les plus représentatifs (comme illustré pour le cas $E_m = 5$ MPa). Il convient de souligner que cette cohérence est propre à l'approche autocohérente généralisée, les modèles de Torquato (Torquato, 1991, 1998) et le modèle différentiel de McLaughlin (1977) conduisant à des estimations près de 50% inférieures aux moyennes numériques.

La comparaison a ainsi pu être étendue en considérant cette fois une matrice vitreuse, induisant alors un contraste de phase plus faible (autour de 10^3 contre 10^4 dans le reste de l'étude). Un coefficient de Poisson de 0.4 pour la matrice est également proposé. Les comportements obtenus dans cette nouvelle configuration sont reportés sur la Figure 2.23(b). En premier lieu, comme illustré pour le cas $E_m = 2$ GPa, la dispersion des modules est bien plus faible dans ce cas alors que les microstructures considérées sont parfaitement identiques. Ce constat souligne l'impact notable du contraste de phase sur l'anisotropie effective des microstructures. Par ailleurs, cette étude montre que, dans cette configuration, le modèle autocohérent généralisé sous-estime sensiblement les propriétés par rapport à l'analyse éléments finis. L'intérêt de la réduction de la dispersion obtenue grâce à la sélection des meilleurs VER prend ici une dimension particulière.

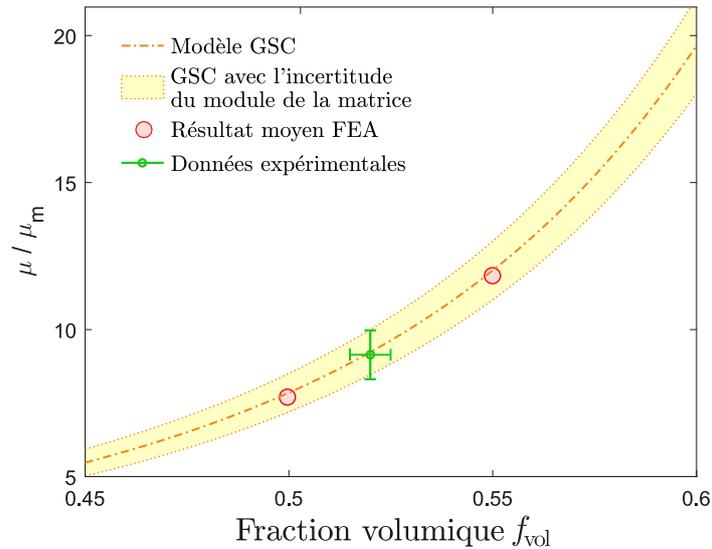


FIGURE 2.24 : Cohérence globale entre les propriétés obtenues par analyse éléments finis (dans chaque cas, moyenne obtenue sur sept microstructures sélectionnées), dans l'étude de Gusev (2016), avec le modèle GSC, et expérimentalement.

En effet, alors que la bande de dispersion brute couvre en partie l'estimation analytique, la dispersion optimisée est totalement dissociée de son évolution, confortant la remise en question de la cohérence des simulations numériques et du modèle autocohérent généralisé lorsqu'une matrice vitreuse est prise en compte.

Intégration de la caractérisation expérimentale

Alors que la plupart des études se limitent à confronter les simulations numériques à des modèles analytiques, rares sont les comparaisons directes avec le comportement de matériaux réels. Cette absence de confrontation s'explique du fait des hypothèses simplificatrices introduites dans les simulations, qui induisent des écarts substantiels dues à la complexité des matériaux réels, perturbant alors les comparaisons. Le recours aux matériaux composites simplifiés, qui ont été élaborés et caractérisés par nos soins, prend ici tout son sens. Il permet de lisser cette difficulté, au moins dans le cadre de l'élasticité linéaire. Ainsi, les comportements moyens, obtenus numériquement, pour des fractions volumiques de 50 et 55% de billes avec les propriétés matériaux de référence, ont été comparés aux données expérimentales en plus des prédictions du modèle autocohérent généralisé. Ces estimations sont reportées sur la Figure 2.24 et une cohérence globale de l'ensemble des approches est clairement visible.

Malgré les difficultés dues aux spécificités du composite analysés (contraste de phase, fraction volumique), un faisceau d'arguments vient donc étayer l'efficacité du processus proposé pour générer des VER. En effet, en plus du caractère faiblement anisotrope des microstructures sélectionnées, les propriétés moyennes estimées sont quantitativement en accord avec les données expérimentales, le modèle autocohérent généralisé et la littérature (Gusev, 2016).

Un regard sur les microstructures rejetées

Il reste, néanmoins, à confirmer le défaut de représentativité mécanique qui aurait été obtenu avec les configurations supprimées dès la phase de génération, sur la base de leur évolution de pression.

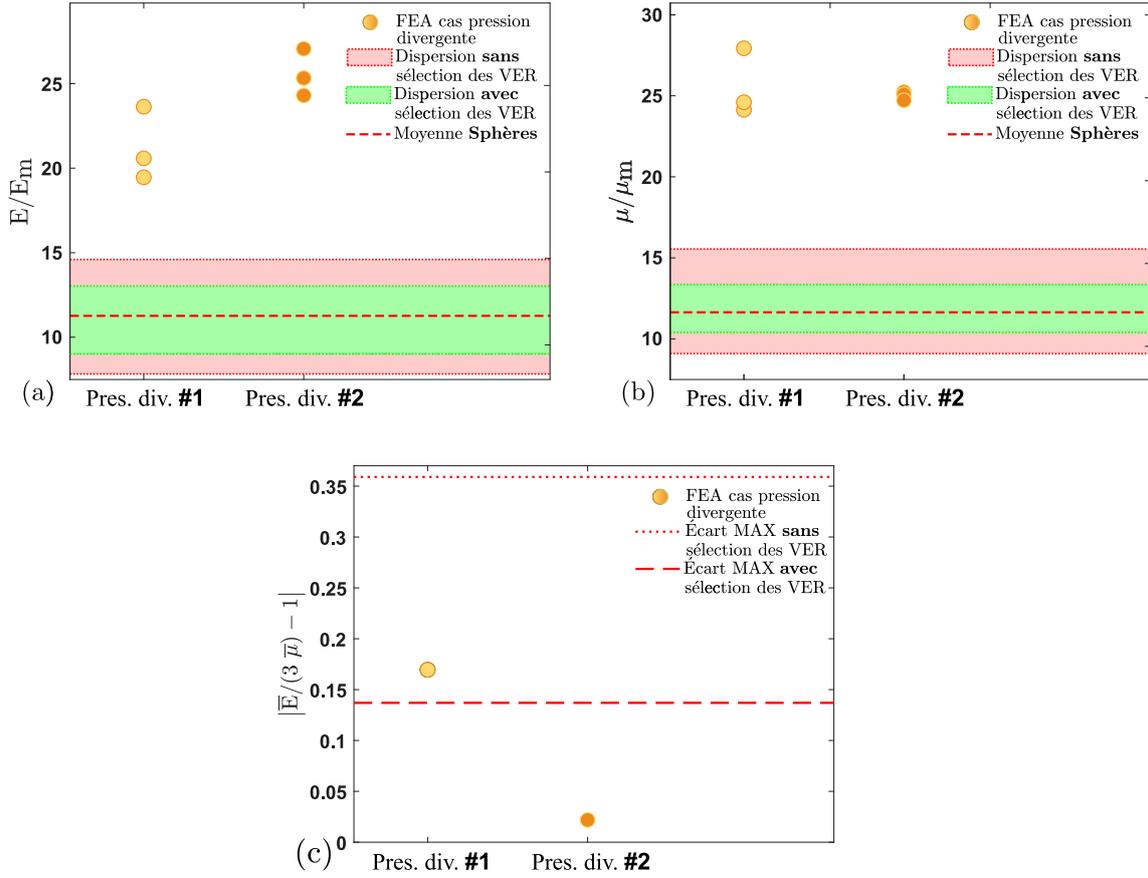


FIGURE 2.25 : Modules de Young (a) et de cisaillement (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux de deux microstructures ayant montrées **une pression divergente** lors de la génération jusqu'à la fraction volumique de 55% de sphères. (c) Critère supplémentaire d'isotropie évalué à partir du rapport des valeurs moyennes des modules de Young et de cisaillement. Pour faciliter la comparaison avec les microstructures représentatives, leurs comportements moyens ainsi que la dispersion sont reportés avec et sans sélection des VER.

Comme évoqué lors de sa présentation, le critère supplémentaire d'isotropie $|\bar{E}/(3\bar{\mu}) - 1|$ permet avantagement de détecter une réorganisation dans la cellule. Ainsi, lorsque les microstructures présentant une chute de pression sont caractérisées mécaniquement, ce critère conduit inmanquablement à leur rejet ($|\bar{E}/(3\bar{\mu}) - 1| \approx 0.58$). En revanche, la seule prise en compte de ce critère ne permet pas de rejeter les configurations ayant une divergence de la pression durant leur génération. Leur caractérisation numérique présente, dans certain cas, une faible dispersion des modules et un critère supplémentaire d'isotropie raisonnables, comme le montre la Figure 2.25. Cependant, les modules obtenus avec ces configurations sont près de deux fois supérieurs au cas des microstructures ayant une pression suivant l'EOS. Les confrontations aux comportements expérimentaux et analytiques prennent alors un intérêt tout particulier dans la mesure où elles permettent de détecter le défaut de représentativité du comportement des microstructures ayant une pression divergente autorisant leur rejet. Si pour ces microstructures, d'un point de vue morphologique, l'évolution particulière de la distribution des plus proches voisins semblait due à un phénomène de *clustering*, il semble que, d'un point de vue mécanique, ce phénomène implique la mise en place de chemins de percolation des contraintes au travers des particules, Azoug (2010) parle de *bandes de transmission*, expliquant ainsi leur rigidification.

Le cas de ces configurations reste néanmoins particulièrement intéressant dans la mesure

où l'impact sur le comportement élastique est majeur (modules $\times 2$), tout en étant difficilement détectable au travers des caractérisations classiques de la représentativité (S_2 , isotropie). C'est d'autant plus intéressant que ce type de conformations pourrait expliquer, au moins en partie, les variations de comportements observables sur des propegols ayant exactement la même formulation mais obtenus avec un processus de fabrication différent. Les enjeux capitaux qui en découlent mériteraient d'y consacrer une analyse exhaustive. Néanmoins, afin d'éviter une divergence de la présente étude, qui se ferait au détriment de la simulation de l'endommagement, cette voie n'a pas été explorée plus en détails.

2.3 Cas des inclusions irrégulières et comparaison polyèdres *vs.* sphères

Fort de l'analyse exhaustive de la représentativité des VER chargés avec des sphères, l'étude peut être étendue au cas des particules irrégulières. Une première analyse du comportement des microstructures chargées avec des polyèdres va être détaillée afin de permettre par la suite une comparaison entre les deux types de VER. L'ensemble des microstructures considérées comportera 55% de fraction volumique de particules avec les propriétés matériaux de références extraites des composites modèles.

2.3.1 Analyse statistique dans le cas des inclusions polyédriques

L'isotropie des microstructures générées avec des polyèdres a été analysée de la même façon que dans le cas des inclusions sphériques, c'est à dire la caractérisation des dispersions des modules de Young et de cisaillement et l'analyse du rapport des modules moyens (critère supplémentaire d'isotropie). Une série de vingt microstructures a alors été générée et leurs caractérisations ont été reportées sur la Figure 2.26. Le processus de génération a été répété dans son ensemble pour chaque microstructure, en partant de distributions aléatoires différentes sans aucun lien avec la série de la section précédente. Chaque numéro d'indexation définit donc une réalisation indépendante avec une couleur dédiée. On constate que, contrairement aux cas des particules sphériques, la dispersion des propriétés est bien plus restreinte que ce soit au sein d'une même microstructure ou vis-à-vis de la moyenne obtenue sur la population globale. Par ailleurs, les écarts à l'isotropie sont proches de la valeur attendue ($|\bar{E}/3\bar{\mu} - 1| < 10\%$). Ainsi, une dispersion autour des moyennes de l'ordre de $\pm 10\%$ est enregistré pour ces inclusions irrégulières contre, dans le cas des billes, environ $\pm 30\%$ sans sélection et au mieux $\pm 15\%$ après optimisation. Il semble que la forme irrégulière des particules, tout en restant équiaxiale, améliore le caractère aléatoire du système comparé au cas des sphères, pour lesquelles le seul désordre est due à la position de leur centre. Au regard de l'isotropie remarquable de ces VER et de la faible dispersion des propriétés élastiques, il semble inutile d'optimiser la sélection des VER à partir de leurs caractérisations géométriques. Ainsi, si la génération de ces microstructures est largement plus chronophage que dans le cas des sphères, elle peut avantageusement s'affranchir de l'étape de sélection à partir des fonctions d'ordre S_2 et H_V .

2.3.2 Impact de la géométrie des particules sur le comportement élastique linéaire

Une comparaison brute des propriétés moyennes estimées dans le cas des inclusions sphériques (Figure 2.22) et des inclusions polyédriques (Figure 2.26) révèle un écart proche de 10% pour

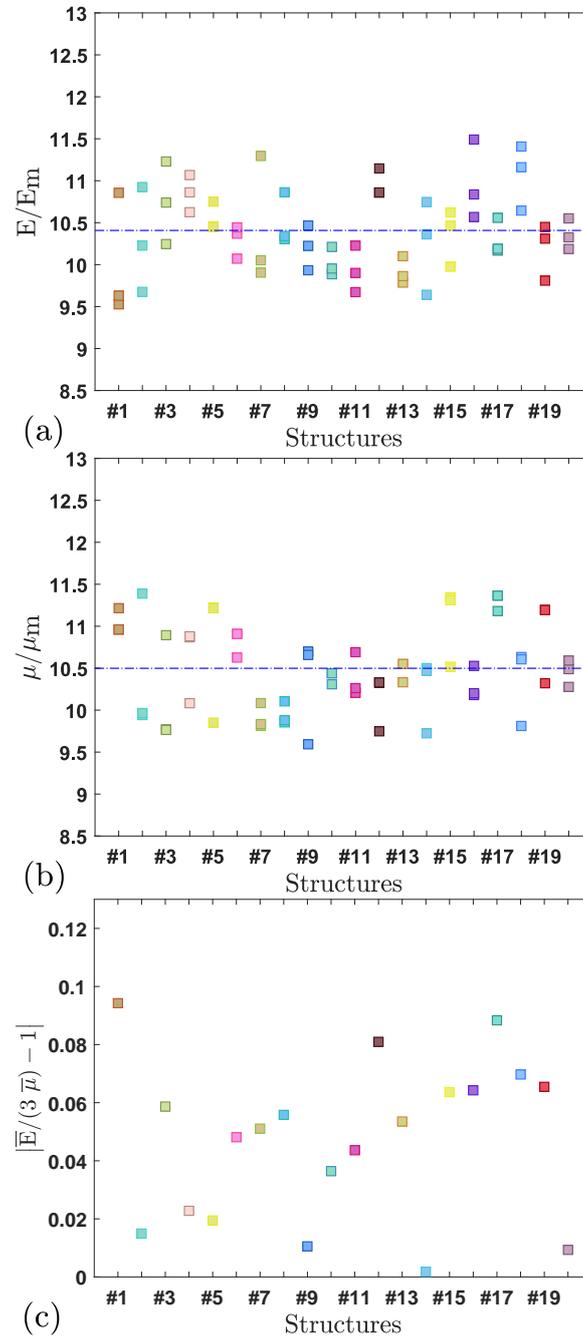


FIGURE 2.26 : Modules de Young (a) et de cisaillement (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux de vingt microstructures contenant une fraction volumique de 55% de polyèdres. Les lignes en pointillés représentent les moyennes des modules sur l'ensemble de la série. (c) Critère d'isotropie évalué à partir du rapport des modules de Young et de cisaillement moyen pour chaque microstructure.

les deux modules avec des zones de dispersions concomitantes. Ainsi, la géométrie des inclusions semble avoir un impact du second ordre sur le comportement élastique du composite. Une prise de recul vis-à-vis des simulations a alors été suggérée pour s'assurer qu'aucun biais numérique ne perturbe l'analyse comparative.

Cette démarche a permis de mettre en évidence un impact très différent de la compressibilité de la matrice en fonction de la forme des particules. La prise en compte d'un module de compressibilité de la matrice raisonnable, de l'ordre de 3 GPa (coefficient de Poisson équivalent de 0.4996667), a permis de détecter une sous-estimation de plus de 10% des propriétés des microstructures avec polyèdres lorsqu'aucune translation aléatoire, permettant d'éventuellement réduire la distance entre polyèdres, n'avait été appliquée pendant la génération. En effet, si les rotations aléatoires permettent de supprimer les couches régulières de matrice, en autorisant des sommets à se rapprocher, le volume d'élastomère confiné reste très faible car il est impossible de générer de très fines épaisseurs de matrice bloquées entre deux plans. Or, de telles configurations peuvent être observées en analysant attentivement tant la morphologie des pergols chargés en RDX (Figure 1.5(b)) que celle du composite modèle chargé avec des éclats de verre (Figure 1.7(b)). Comparativement, ce constat se rapproche des conclusions de Gusev (2016) à propos des distances interparticulaires dans le cas d'inclusions sphériques. Une prise en compte insuffisante de possibles zones de confinement de la matrice induit une sous-estimation des propriétés élastiques. C'est sur cette base que des translations aléatoires ont été adjointes, de manière standard, pour générer les VER chargés avec des polyèdres. Le choix d'un comportement quasi-incompressible de la matrice ($\kappa=3$ GPa, raisonnable pour un polymère), plutôt qu'une hypothèse théorique d'incompressibilité est également justifiée par les mêmes raisons.

D'autre part, cette configuration permet de calculer un module de compressibilité pour les microstructures, confortant à nouveau la représentativité du comportement mécanique des VER dans le cadre de l'élasticité linéaire. En effet, un gonflement hydrostatique peut être appliqué à une microstructure contenant 55% de particules polyédriques ayant subi à la fois des translations et des rotations aléatoires pendant la génération. Le module de compressibilité de 6.12 GPa obtenu est une fois encore en adéquation avec le module de 6.17 GPa estimé avec le modèle autocohérent généralisé, confirmant quantitativement la cohérence des simulations numériques pour un déplacement hydrostatique. Cette confrontation démontre ainsi l'intérêt de l'étape de translation aléatoire dans la phase de génération pour assurer la représentativité du comportement des microstructures numériques. Une fois encore, cette brève analyse souligne que la prise en compte du seul critère d'isotropie des cellules ne peut suffire à assurer leur représentativité. En effet, les microstructures obtenues avec uniquement des rotations de polyèdres, oubliant les translations, sous-estiment les valeurs moyennes des modules malgré une isotropie remarquable.

Une analyse fine a également été mise en œuvre afin de s'assurer de la bonne convergence du maillage des 40 microstructures présentées dans l'ensemble du chapitre (20 avec des sphères et 20 avec des polyèdres). Cette étude a permis de confirmer les résultats obtenus tout en démontrant un impact très positif des éléments quadrique (C3D10 et C3D10H) pour assurer cette convergence.

Conforté par les vérifications additionnelles détaillées dans les paragraphes précédents, la Figure 2.27 propose une comparaison des propriétés moyennes estimées pour les deux types d'inclusion avec la zone couverte par leur dispersion. Dans le cas des sphères, seule la sélection optimisée de VER a été considérée. On observe une superposition importante, voire complète, des zones de dispersion des modules avec une rigidité moyenne de VER chargés avec des sphères seulement 11% supérieure. Ceci confirme l'impact presque négligeable de la géométrie de charge, toute chose égale par ailleurs.

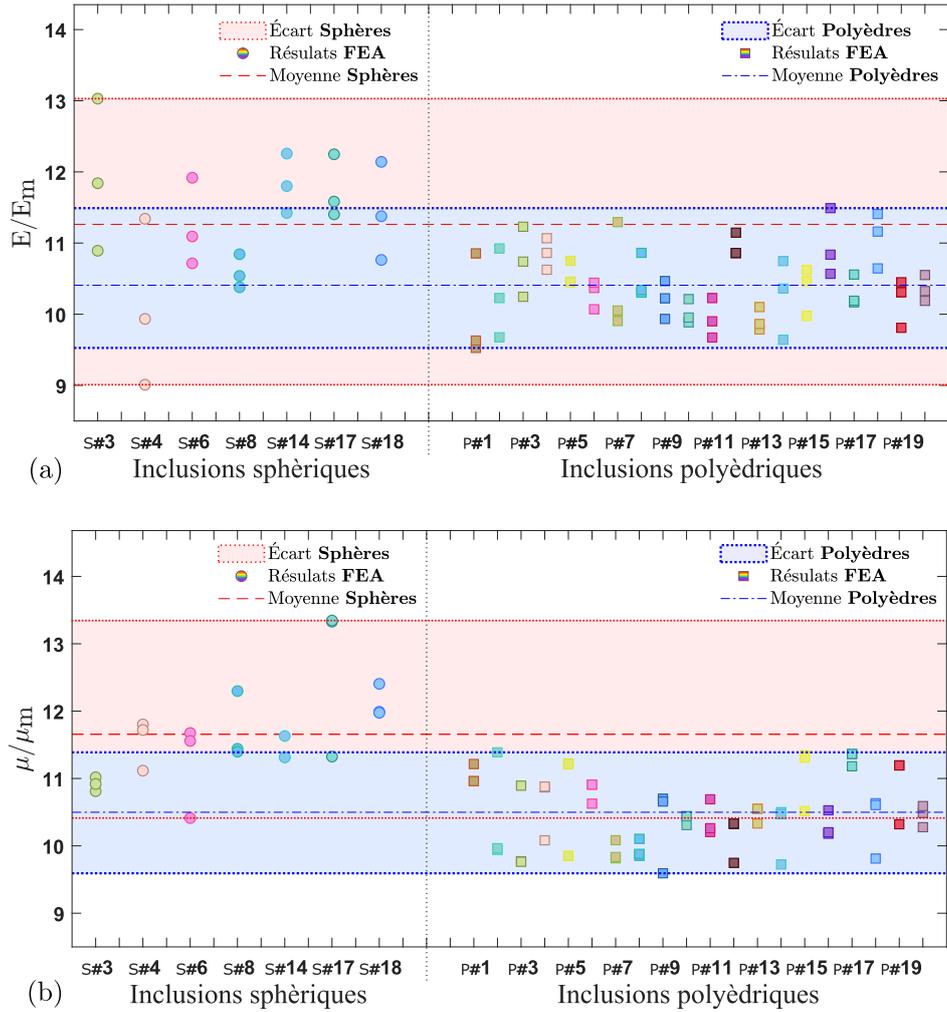


FIGURE 2.27 : Modules de Young (a) et de cisaillement (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux, de sept microstructures avec sphères sélectionnées selon les critères géométriques (S_2 & H_v) et de vingt microstructures avec polyèdres, contenant toutes deux une fraction volumique de 55%. La dispersion des propriétés ainsi que leur moyenne sont mises en évidence pour faciliter la comparaison.

Bien qu'elles soient peu nombreuses, quelques études proposent des comparaisons dans le même esprit. Les plus courantes se focalisent sur des polyèdres de Platon (donc réguliers) et ne considèrent que des fractions volumiques faibles, de l'ordre de 20% (Ogierman et Kokot, 2014; Böhm et Rasool, 2016; Drach *et al.*, 2016). Elles tendent à démontrer que ce type de polyèdres induit une rigidité supérieure aux cas des inclusions sphériques avec une convergence des propriétés qui suit l'augmentation du nombre de faces des polyèdres. Au contraire, l'analyse développée ici tend à prouver que lorsque des particules irrégulières sont prises en compte, combinées à une très forte fraction volumique, la tendance s'inverse. Ce constat est en adéquation avec une partie des résultats de Gudlur *et al.* (2014) (avec des polyèdres irréguliers) bien que la fraction volumique considérée soit de 20%. Quel que soit la famille de composites pour laquelle une rigidité plus importante est enregistrée, ces études et la présente analyse s'accordent sur l'effet très limité de la géométrie des particules sur le comportement des matériaux hétérogènes en élasticité linéaire.

2.4 Synthèse

Ce chapitre a débuté par une présentation détaillée des stratégies de génération des microstructures. Dans le cas des particules sphériques, les éléments clé de l'algorithme de Lubachevsky et Stillinger, qui simule une dynamique moléculaire, ont été présentés en se focalisant sur les paramètres pilotant son évolution. Par ailleurs, la possibilité de suivre une pression théorique pendant la génération a été introduite avec une équation d'état supplémentaire donnant accès à une évolution théorique de la pression pour un système de sphères rigides parfaitement aléatoires. En fonction du rapport des paramètres de génération, différents types d'évolution de la pression ont alors pu être observés. Les microstructures correspondant à chaque évolution ont été confrontées à deux fonctions de caractérisation de l'ordre géométrique qui se sont révélées particulièrement discriminantes dans la configuration de l'étude. Ainsi, deux des trois évolutions caractéristiques de la pression ont présenté des défauts systématiques de désordre. Par conséquent, sur la seule base de l'évolution de la pression, les défauts de représentativité de certaines microstructures peuvent être détectés. Ces analyses offrent un moyen de régler les paramètres de génération afin d'obtenir uniquement des évolutions de pression suivant l'équation d'état conduisant alors à des microstructures aux propriétés d'ordre géométrique variable. Les microstructures générées ont été maillées avec des conditions aux limites périodiques. La mise en œuvre de cette approche a été détaillée en soulignant la complexité introduite par la nécessité de ne pas trop restreindre les distances entre les particules. Ce cadre de simulation et les stratégies de raffinement du maillage mise en place ont pu être validés par comparaison avec une étude extraite de la littérature.

Dans le cas des polyèdres, un algorithme de génération a été développée sur la base d'un diagramme de Voronoï et d'une rétractation des polyèdres obtenus. Cette approche a été enrichie par une phase de perturbation de leur position (translations) et de leur orientation (rotations) afin de supprimer la régularité des espaces interparticulaires. Si la mise en place d'un maillage périodique n'a pas induit les mêmes difficultés que dans le cas des particules sphériques, une proximité trop importante entre deux points a dû être détectée et corrigée pour éviter un échec de la discrétisation. En outre, le nombre de polyèdres à considérer pour obtenir un volume élémentaire statistique n'étant pas aussi claire que pour le cas des sphères, les propriétés élastiques de microstructures avec un nombre croissant de polyèdres ont été estimées. De même que pour les sphères, cette analyse a démontré qu'une configuration périodique avec 64 inclusions présentait des estimations satisfaisantes et des dispersions raisonnables.

Par la suite, de façon à permettre une confrontation des simulations numériques à des résultats

expérimentaux, le comportement mécanique de composites simplifiés a été étudié. Le processus d'élaboration de ces matériaux en laboratoire a été détaillé, ainsi que la campagne de caractérisation de leur comportement et de celui de la matrice, dans le cadre des petites déformations. Celle-ci a été, par la suite, complétée par une caractérisation du comportement de la matrice et du composite en grandes déformations. L'ensemble de ces caractérisations d'un matériau très proche des microstructures numériques permet d'envisager des comparaisons qualitatives, voir même quantitatives, des propriétés élastiques et plus tard du comportement endommagé en grandes déformations. Par ailleurs, le comportement des phases implémenté dans les simulations éléments finis sera essentiellement basé sur ces caractérisations expérimentales.

Des analyses statistiques du comportement en élasticité linéaire ont été mises en œuvre en se focalisant sur l'anisotropie des microstructures au travers de trois critères : la dispersion des modules de Young et de cisaillement et la valeur du rapport des modules moyens. En effet, un des critères les plus classiques de validation de la représentativité de ce type de microstructure consiste à les confronter à l'isotropie des matériaux de référence.

Dans le cas des sphères, vingt microstructures générées avec une pression suivant l'équation d'état ont été analysées, aboutissant à une dispersion très large des propriétés élastiques et, dans certain cas, une anisotropie notable. Une sélection de ces microstructures, sur la base de leurs caractéristiques géométriques, a alors été proposée. Les sept microstructures qui sont finalement conservées conduisent aux mêmes modules moyens avec des dispersions réduites de moitié. La sélection des microstructures a ainsi permis de réduire drastiquement les efforts de calcul tout en aboutissant à des résultats de meilleure qualité.

Cependant la finalité de la démarche de simulation basée sur des volumes élémentaires statistiques étant l'estimation des propriétés moyennes, les valeurs obtenues ont été confrontées au modèle autocohérent généralisé dont la validité pour la configuration de l'étude ($f_{\text{vol}}=50-55\%$) a été récemment confirmée. Cette étude comparative permis de valider, sur une large gamme de rigidité de la matrice élastomérique, la cohérence quantitative des modules estimés par simulation numérique et avec le modèle analytique. En revanche, dans le cas d'une matrice vitreuse, un écart substantiel entre les simulations et l'approche analytique a été mis en évidence, en particulier lorsque la dispersion des comportements est réduite grâce à la sélection des microstructures. Enfin, les estimations obtenues par simulation numérique ont aussi été confrontées aux caractérisations expérimentales démontrant alors une cohérence remarquable entre les deux approches.

Cette étude comparative a été complétée par une brève analyse des propriétés mécaniques des microstructures rejetées du fait de leur évolution de pression trop éloignée de l'équation d'état. Si dans un cas (chute de la pression) elles présentent un défaut évident d'isotropie, dans le cas d'une évolution de la divergence de la pression, des microstructures remarquablement isotropes peuvent parfois être obtenues. En revanche, leur rigidité est largement supérieure (facteur ≈ 2) aux données expérimentales et aux estimations analytiques, confirmant l'intérêt de la validation expérimentale mise en œuvre précédemment. Cette effet de rigidification étant particulièrement marquant, il pourrait cependant faire l'objet d'une étude exhaustive.

Les microstructures contenant des particules irrégulières (polyèdres) ont enfin été analysées avec une nouvelle approche statistique. De manière remarquable, leurs propriétés présentent une dispersion bien moindre que dans le cas des particules sphériques, même en prenant en compte l'amélioration offerte par la démarche de sélection des microstructures les plus représentatives. Aussi, dans cette nouvelle configuration, la détection des microstructures les plus aléatoires ne présente qu'un intérêt très limité. L'étude a donc pu se focaliser directement sur l'impact de la forme des inclusions, en petites déformations. Du fait d'un écart très réduit des propriétés

moyennes obtenues ($\approx 10\%$), cette analyse comparative a été menée avec un soin particulier pour s'assurer qu'elle n'était perturbée par aucun biais numérique. Ainsi, la prise en compte de la quasi-incompressibilité de la matrice ($\kappa=3\text{GPa}$), plutôt qu'une incompressibilité parfaite ($\kappa=\infty$) a pu être analysée démontrant un effet modeste mais non négligeable sur le comportement linéaire, d'où sa prise en compte dans l'ensemble de l'étude. Par ailleurs, ce nouveau module de compressibilité, plus cohérent avec la réalité, a mis en évidence la nécessité de perturber la position (translation) des particules irrégulières lors de la génération des microstructures contenant des polyèdres. Bien que ces considérations aient modifié, a priori, l'ensemble du cadre des simulations numériques, un effet toujours très restreint de la forme des particules a été identifié, avec une rigidité légèrement supérieure dans le cas des VER contenant des particules sphériques.

Chapitre 3

Simulations de l'endommagement

Ce troisième chapitre propose une présentation des outils et des stratégies mis en œuvre afin d'implémenter les modèles de zone cohésive avec une validation des approches sélectionnées. Le comportement en grandes déformations des composites simplifiés ainsi que les particularités de leur endommagement à l'échelle locale sont ensuite rappelés et confrontés aux tendances obtenues par simulation numérique à partir de trois jeux de paramètres de zone cohésive. Par la suite, une comparaison quantitative des comportements macroscopiques sera envisagée et conduira à proposer une étude paramétrique numérique mettant en évidence l'influence des propriétés d'interface sur le comportement global. Cette analyse donnera accès à une meilleure compréhension de l'endommagement permettant d'identifier quelles modifications des propriétés locales peuvent conduire à une optimisation du comportement global. Enfin, l'influence de la géométrie des charges, dans le cadre des grandes déformations avec endommagement, sera analysée.

« Réaliser la représentation de l'irreprésentable, voir l'invisible, toucher et percevoir l'impalpable. »

Novalis (1772–1801)

Sommaire

3.1	Mise en œuvre des zones cohésives	79
3.1.1	Contexte de mise en œuvre des zones cohésives	79
3.1.2	Régularisation visqueuse	80
3.1.3	Implémentation des éléments cohésifs et affichage d'un paramètre d'état	80
3.1.4	Validation de la stratégie de mise en œuvre des zones cohésives	84
3.2	Tendances des comportements simulés aux échelles globale et locale	85
3.2.1	Endommagement du composite modèle contenant des billes de verre	86
3.2.2	Paramètres de référence	87
3.2.3	Augmentation du déplacement à rupture	89
3.2.4	Réduction de la contrainte critique	90
3.3	Vers une simulation quantitative	91
3.3.1	Influence de la rigidité initiale	91
3.3.2	Influence de la contrainte critique	92
3.3.3	Influence du déplacement à rupture	94
3.3.4	Prise en compte d'un modèle de zone cohésive plus complexe	94
3.3.5	Optimisation du comportement mécanique	96
3.4	Analyse de l'impact de la morphologie des charges en grandes déformations	97
3.4.1	Comportement des microstructures chargées avec des polyèdres	97
3.4.2	Impact de la géométrie des particules sur le comportement en grandes déformations	99
3.4.3	Retour sur les comportements expérimentaux	101
3.4.4	Synthèse	102

3.1 Mise en œuvre des zones cohésives

La simulation micromécanique dans le cadre de l'élasticité linéaire a permis d'analyser et de conforter la représentativité des microstructures sélectionnées permettant de les considérer comme des VER. Elle a, par ailleurs, offert la possibilité de mener une première étude de l'impact de la forme des charges sur les propriétés des composites fortement chargés, démontrant uniquement un effet de second ordre aux petites déformations. Cependant, les propegols ont une gamme de comportements qui dépasse largement les petites déformations. De plus, l'endommagement constitue une caractéristique importante de leur réponse mécanique dès lors que de grandes déformations sont considérées. Les modèles de zone cohésive semblent être un outil idéal pour permettre la simulation des décohésions (section 1.3.4), autorisant alors une extension de l'étude à des déformations plus importantes.

3.1.1 Contexte de mise en œuvre des zones cohésives

L'analyse va donc se focaliser sur la capacité des zones cohésives à reproduire les principales tendances du comportement des élastomères fortement chargés, en particulier celles des matériaux composites simplifiés (section 1.1.3). Une première mise en œuvre de cette approche, en trois dimensions, a déjà été proposée par [Toulemonde \(2016\)](#). Néanmoins, elle ne s'est pas reposée sur une analyse préalable aux petites déformations de la représentativité des cellules. En outre, si la paramétrisation de la loi de zone cohésive choisie repose sur une évaluation expérimentale de l'énergie d'endommagement et une mise en adéquation du comportement macroscopique, elle aboutit à un comportement local incohérent. En effet, dans les simulations de [Toulemonde \(2016\)](#) comme dans celles de [Gilormini *et al.* \(2017\)](#), des analyses complémentaires ont démontré qu'à l'issue des calculs, les zones cohésives endommagées ne l'étaient que très partiellement.

Fort de ce constat, avant d'envisager une analyse quantitative similaire à celle proposée par ces études, l'applicabilité des zones cohésives, dans un cadre concordant avec la géométrie à l'échelle microscopique, va être étudiée. Afin d'éviter toute incohérence, l'analyse propose une combinaison originale de l'examen du comportement global simulé et de l'observation de l'endommagement local des microstructures numériques.

Dans ce contexte, dès les premières simulations avec des zones cohésives, la problématique de la convergence des calculs, apparaît comme critique. En effet, si les zones cohésives permettent théoriquement de reproduire l'endommagement par décohésion des interfaces matrice/particule, les simulations ont tendance à diverger dès qu'apparaissent les premières décohésions complètes. Elles ne permettent alors qu'une simulation très partielle du comportement endommagé. Ce phénomène est d'autant plus marqué que les zones cohésives ont une longueur caractéristique faible. Or, pour garantir la cohérence des paramètres de zone cohésive, des déplacements à rupture de l'ordre d'un dixième du rayon doivent être considérés, permettant alors d'envisager une décohésion complète de nombreux éléments pour une déformation globale atteignant 10–15% (en adéquation avec le comportement des composites modèles évoqués dans le premier chapitre, Figure 1.13 de la section 1.2.2).

Ainsi, si les motivations à l'origine du choix de l'outil de simulation de l'endommagement et du celui de la loi de zone cohésive de [Tvergaard et Hutchinson \(1993\)](#) ont été présentées en section 1.3.4, il reste à détailler les stratégies mises en œuvre afin d'optimiser la convergence numérique et l'implémentation de ce comportement dans [Abaqus/Standard.2018](#).

3.1.2 Régularisation visqueuse

Dès lors que des éléments cohésifs sont introduits dans des simulations numériques menées par un solveur implicite, la plupart des configurations aboutissent à une divergence prématurée, empêchant une véritable estimation du comportement endommagé.

Pour surmonter cette difficulté, la stratégie de [Gao et Bower \(2004\)](#) développée pour une loi de zone cohésive de [Xu et Needleman \(1994\)](#) a été adaptée au modèle de zone cohésive sélectionné. Ils proposent d'ajouter un facteur de viscosité, uniquement artificiel, à l'expression des contraintes interfaciales. L'équation 1.2 prend alors la forme :

$$\begin{cases} T_n = \frac{\partial \Phi}{\partial \delta_n} & \text{if } \delta_n < 0 \text{ (compression)} \\ T_n = \frac{\partial \Phi}{\partial \delta_n} + \zeta_n \frac{d}{dt} \left(\frac{\delta_n}{\delta_f} \right) & \text{if } \delta_n > 0 \\ T_t = \frac{\partial \Phi}{\partial \delta_t} + \zeta_t \frac{d}{dt} \left(\frac{\delta_t}{\delta_f} \right) \end{cases} \quad (3.1)$$

δ_n et δ_t définissant toujours les composantes normales et tangentielles de la séparation de l'interface, Φ le potentiel d'interaction et T_n et T_t les efforts normaux et tangentiels (section 1.3.4 et Figure 1.24). Cette technique, souvent appelée *régularisation visqueuse*, est couramment utilisée pour améliorer la convergence numérique ([Chaboche et al., 2001](#); [Hamitouche et al., 2008](#)). L'objectif est de retarder la divergence du calcul sans entraîner de modification visible du comportement mécanique obtenu.

Afin de poursuivre la démarche de restriction des paramètres de simulation (section 1.3.4), les facteurs de viscosité normale ζ_n et tangentielle ζ_t ont été considérés identiques (ζ). Par ailleurs, conformément aux analyses de [Gao et Bower \(2004\)](#) pour une configuration simplifiée, la valeur de ce facteur a été estimée autour d'un millième de l'énergie d'adhésion (Γ) divisée par la vitesse caractéristique du déplacement imposé à la cellule. Les premières utilisations de cette technique ont permis de retarder la divergence jusqu'à des déplacements sept fois supérieurs par rapport aux calculs bruts. Néanmoins, en plus du recul notable de la divergence, la validation de cette stratégie nécessite la confirmation de son influence négligeable sur le comportement mécanique. Les détails de cette validation seront présentés dès lors que le cadre précis de l'implémentation des zones cohésives aura été détaillé.

La mise en œuvre de cette technique complexifiant encore le cadre des simulations en grande déformation, elle justifie une fois de plus le recours à un modèle de zone cohésive simple afin de tester son efficacité sur une configuration restreinte.

3.1.3 Implémentation des éléments cohésifs et affichage d'un paramètre d'état

La loi de zone cohésive de [Tvergaard et Hutchinson \(1993\)](#) est directement disponible dans [Abaqus/Standard.2018](#) mais uniquement pour des éléments linéaires. Or, les analyses menées dans le cadre de l'élasticité linéaire (chapitre 2) ont montré l'intérêt d'un maillage quadratique pour la convergence des calculs. De plus, la régularisation visqueuse n'est pas proposée dans les éléments standard. Une routine UEL a donc été développée sur la base de [Park et Paulino \(2012\)](#) pour implémenter la zone cohésive sélectionnée ainsi que la régularisation visqueuse présentée plus tôt. La loi de zone cohésive s'appuie alors en majorité sur le facteur de décohésion λ , introduit en section 1.3.4, qui est fonction de δ_n et δ_t , les composantes normale et tangentielle

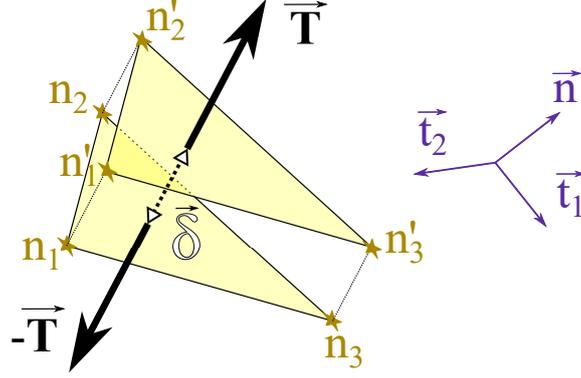


FIGURE 3.1 : Illustration de l'élément cohésif prismatique à 12 nœuds implémenté dans les simulations (les nœuds dupliqués sont identifiés par " ' ") avec son repère local $(\vec{n}, \vec{t}_1, \vec{t}_2)$, son déplacement $\vec{\delta}$ et les efforts transmis \vec{T} .

de la séparation de l'interface $\left(\lambda = \sqrt{(\delta_n/\delta^c)^2 + (\delta_t/\delta^c)^2}\right)$. Dès lors que la zone cohésive est rompue, ce paramètre adimensionnel vaut $\lambda = 1$. Afin d'enregistrer l'évolution de l'endommagement et d'éviter des effets incohérents d'auto-réparation, la valeur maximale de ce paramètre est sauvegardée au travers d'un paramètre $\lambda^m(t) = \max_t [\lambda(t)]$.

Une variable d'endommagement D peut alors être définie, valant zéro dès lors que le déplacement critique δ^c n'est pas atteint et augmentant jusqu'à un pour le déplacement à rupture δ^f :

$$D = \frac{1}{\lambda^m} \left(\frac{\langle \lambda^m - \frac{\delta^c}{\delta^f} \rangle}{1 - \frac{\delta^c}{\delta^f}} \right). \quad (3.2)$$

Les contraintes interfaciales sont alors exprimées dans la UEL selon :

$$\left\{ \begin{array}{ll} T_n = K \delta_n & \text{if } \delta_n < 0 \text{ (compression)} \\ T_n = K \langle 1 - D \rangle \delta_n + \zeta \frac{d}{dt} \left(\frac{\delta_n}{\delta^f} \right) & \text{if } \delta_n > 0 \\ T_{t1} = \left[K \langle 1 - D \rangle \delta_t + \zeta \frac{d}{dt} \left(\frac{\delta_t}{\delta^f} \right) \right] \cdot \frac{\delta_{t1}}{\delta_t} \\ T_{t2} = \left[K \langle 1 - D \rangle \delta_t + \zeta \frac{d}{dt} \left(\frac{\delta_t}{\delta^f} \right) \right] \cdot \frac{\delta_{t2}}{\delta_t} \end{array} \right. \quad (3.3)$$

dans le repère local de chaque élément cohésif (Figure 3.1) et en prenant en compte la régularisation visqueuse pilotée par ζ ; K , δ^c , δ^f paramétrant la loi (Figure 1.25). Les indices $-t1$ et $-t2$ se référant aux deux composantes du plan tangent à l'interface et les crochets $\langle \bullet \rangle$ correspondent aux parenthèses de Macaulay, c'est à dire à la partie positive de la variable. Les dérivées temporelles sont évaluées sur l'intervalle de chaque incrément temporel du schéma de Newton-Raphson grâce à un enregistrement des déplacements précédents sous forme de variables internes.

En plus de cette expression des contraintes interfaciales, la matrice tangente est nécessaire

afin de contrôler l'évolution du schéma itératif. Cette matrice doit prendre la forme

$$J = \begin{pmatrix} \frac{\partial T_{t1}}{\partial \delta_{t1}} & \frac{\partial T_{t1}}{\partial \delta_{t2}} & \frac{\partial T_{t1}}{\partial \delta_n} \\ \frac{\partial T_{t2}}{\partial \delta_{t1}} & \frac{\partial T_{t2}}{\partial \delta_{t2}} & \frac{\partial T_{t2}}{\partial \delta_n} \\ \frac{\partial T_n}{\partial \delta_{t1}} & \frac{\partial T_n}{\partial \delta_{t2}} & \frac{\partial T_n}{\partial \delta_n} \end{pmatrix} \quad (3.4)$$

Les dérivées peuvent, d'une part, se décomposer comme :

$$\frac{\partial T_n}{\partial \delta_{tj}} = \frac{\partial T_n}{\partial \delta_t} \cdot \frac{\partial \delta_t}{\partial \delta_{tj}} = \frac{\partial T_n}{\partial \delta_t} \cdot \frac{\delta_{tj}}{\delta_t} \quad (3.5)$$

$$\frac{\partial T_{ti}}{\partial \delta_n} = \frac{\partial T_{ti}}{\partial T_t} \cdot \frac{\partial T_t}{\partial \delta_n} = \frac{\delta_{ti}}{\delta_t} \cdot \frac{\partial T_t}{\partial \delta_n} \quad (3.6)$$

En considérant :

$$\delta_t = \sqrt{\delta_{t1}^2 + \delta_{t2}^2} \text{ et } T_{tj} = \frac{T_t \delta_{tj}}{\delta_t} \quad (3.7)$$

Les autres dérivées des contraintes tangentes sont obtenues sur la base des décompositions suivantes,

$$\frac{\partial T_{ti}}{\partial \delta_{ti}} = \frac{\partial T_t}{\partial \delta_t} \frac{\partial \delta_t}{\partial \delta_{ti}} \frac{\delta_{ti}}{\delta_t} + \frac{T_t}{\delta_t} + \frac{\partial (1/\delta_t)}{\partial \delta_t} \frac{\partial \delta_t}{\partial \delta_{ti}} T_t \delta_{ti} = \frac{T_t}{\delta_t} + \left(\frac{\partial T_t}{\partial \delta_t} - \frac{T_t}{\delta_t} \right) \left(\frac{\delta_{ti}}{\delta_t} \right)^2 \quad (3.8)$$

Enfin,

$$\frac{\partial T_{ti}}{\partial \delta_{tj}} = \frac{\partial T_t}{\partial \delta_{tj}} \frac{\delta_{ti}}{\delta_t} + \frac{\partial \delta_{ti}}{\partial \delta_{tj}} \frac{T_t}{\delta_t} + \frac{\partial (1/\delta_t)}{\partial \delta_{tj}} T_t \delta_{ti} = \left(\frac{\partial T_t}{\partial \delta_t} - \frac{T_t}{\delta_t} \right) \left(\frac{\delta_{ti} \delta_{tj}}{\delta_t^2} \right) \quad (3.9)$$

On en conclut donc :

$$J = \begin{pmatrix} \frac{T_t}{\delta_t} + \left(\frac{\partial T_t}{\partial \delta_t} - \frac{T_t}{\delta_t} \right) \left(\frac{\delta_{t1}}{\delta_t} \right)^2 & \left(\frac{\partial T_t}{\partial \delta_t} - \frac{T_t}{\delta_t} \right) \left(\frac{\delta_{t1} \delta_{t2}}{\delta_t^2} \right) & \frac{\partial T_t}{\partial \delta_n} \frac{\delta_{t1}}{\delta_t} \\ \left(\frac{\partial T_t}{\partial \delta_t} - \frac{T_t}{\delta_t} \right) \left(\frac{\delta_{t2} \delta_{t1}}{\delta_t^2} \right) & \frac{T_t}{\delta_t} + \left(\frac{\partial T_t}{\partial \delta_t} - \frac{T_t}{\delta_t} \right) \left(\frac{\delta_{t2}}{\delta_t} \right)^2 & \frac{\partial T_t}{\partial \delta_n} \frac{\delta_{t2}}{\delta_t} \\ \frac{\partial T_n}{\partial \delta_t} \frac{\delta_{t1}}{\delta_t} & \frac{\partial T_n}{\partial \delta_t} \frac{\delta_{t2}}{\delta_t} & \frac{\partial T_n}{\partial \delta_n} \end{pmatrix} \quad (3.10)$$

La matrice peut alors être évaluée en fonction des 4 états possibles de la zone cohésive à l'instant considéré : interface saine ($D = 0$), évolution d'un endommagement partiel ($0 < D < 1$, $\dot{D} > 0$), interface partiellement endommagée sans évolution ($0 < D < 1$, $\dot{D} = 0$), interface rompue ($D \geq 1$).

L'introduction des éléments, dont le comportement est piloté par la UEL, est rendue possible par duplication de tous les nœuds situés à la surface des particules à l'aide d'une routine Fortran (Figure 3.1). Pour ceux qui sont également inclus sur une face de la cellule, les nouvelles équations de périodicité sont ajoutées à la liste générée par Netgen. Ainsi, à partir des nœuds interfaciaux, originaux et dupliqués, des éléments cohésifs prismatiques à 12 nœuds avec une épaisseur nulle sont définis.

Les analyses tomographiques de l'endommagement des matériaux composites simplifiés proposées en section 1.2.3 invitent à envisager une comparaison des champs d'endommagement

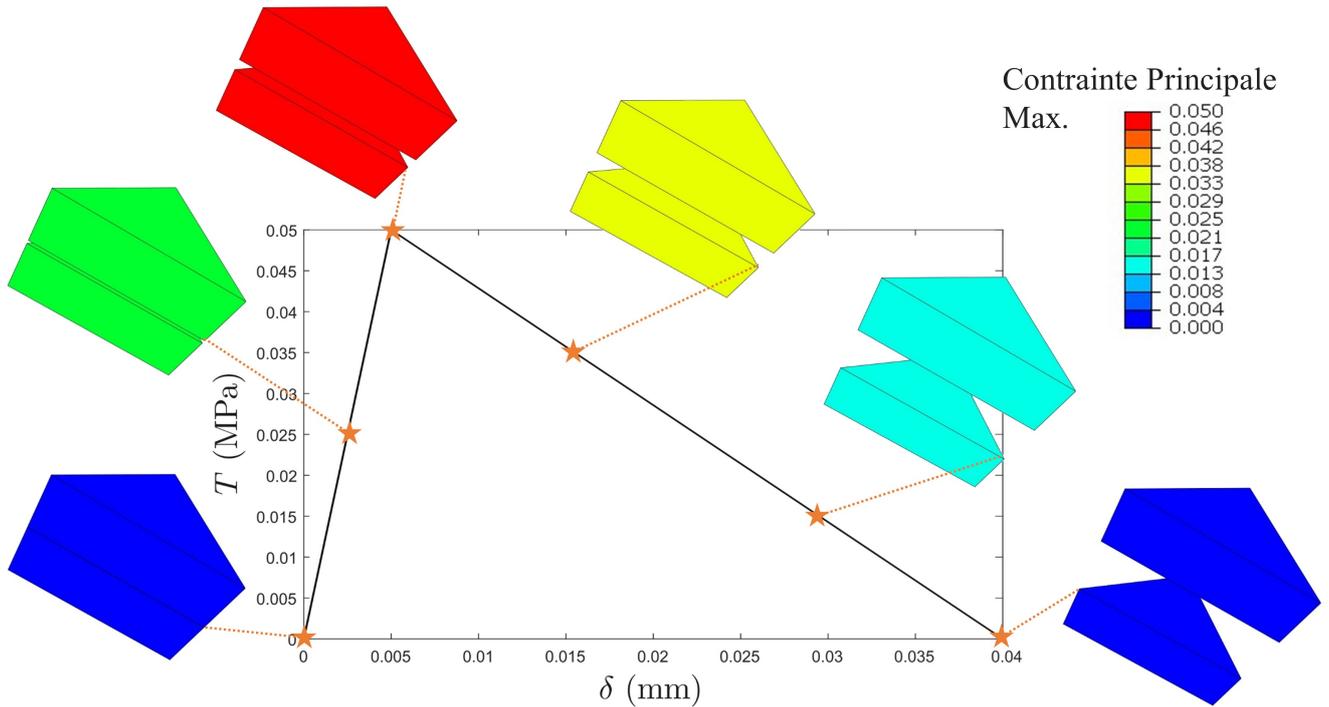


FIGURE 3.2 : Validation, pour une unique zone cohésive, du comportement implémenté via la UEL. Le comportement des 2x2 éléments qui entourent la zone cohésive est définie comme infiniment rigide comparé à l'interface.

locaux. Or, l'utilisation d'une UEL dans [Abaqus/Standard.2018](#) ne permet pas d'afficher directement des champs relatifs aux éléments pilotés. Cet obstacle a été contourné en introduisant des éléments factices afin de permettre un affichage d'une variable d'état des éléments cohésifs. Ainsi, la routine Fortran, permettant la création des éléments cohésifs, a été étendue pour définir des éléments membranes quadratiques (6 nœuds) à la surface des particules. Une routine UVARM permet alors de transférer à ces nouveaux éléments n'importe quelle variable interne provenant de la UEL ([Roth et al., 2012](#)). Aussi, pour chacun des trois points d'intégration des éléments cohésifs une variable interne correspondant au facteur de décohesion d'interface λ a été enregistrée et retranscrite dans les éléments membranes. Pour s'assurer que ces derniers ne soient qu'un outil de représentation, sans impact sur la réponse des microstructures, leur comportement mécanique est piloté par un module de Young de 10^{-20} MPa et un coefficient de Poisson de 0.25.

Cette stratégie permet aussi bien d'analyser la morphologie de l'endommagement dans la microstructure que de suivre des marqueurs statistiques. Parmi eux, la séparation maximum au sein de la microstructure ($\max_{\text{vol}}[\lambda]$) a fait l'objet d'une attention toute particulière. En effet, une représentation systématique de ce paramètre sur la loi de zone cohésive permet de vérifier dans quelle mesure le comportement cohésif a été exprimé, au moins dans les zones les plus endommagées de la microstructure. Cette analyse permet de détecter si les paramètres de zone cohésive choisis ont conduit, en fin de sollicitation, à des décohésions complètes, en adéquation avec les observations expérimentales (Figure 1.18(c), par exemple).

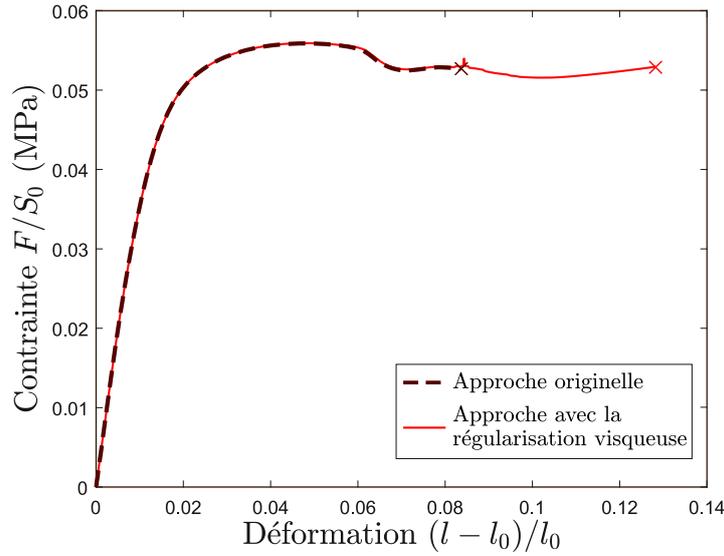


FIGURE 3.3 : Comparaison de la réponse en contrainte-déformation d'une microstructure numérique soumise à une traction uniaxiale en implémentant, ou non, un facteur de viscosité dans la loi de zone cohésive de [Tvergaard et Hutchinson \(1993\)](#). La divergence numérique est identifiée par une croix.

3.1.4 Validation de la stratégie de mise en œuvre des zones cohésives

Une fois la UEL implémentée, l'effet négligeable du paramètre de viscosité peut être contrôlé en se focalisant sur une rare configuration pour laquelle la divergence intervient tardivement, sans régularisation.

Comme le montre la Figure 3.3, aucun impact n'est visible sur le comportement, alors même que la réponse est fortement non-linéaire. Cette confirmation est d'autant plus robuste que l'examen des champs d'endommagement a confirmé, pour les deux configurations, l'endommagement total de nombreux éléments cohésifs bien avant la fin des calculs. La régularisation visqueuse permet donc bien de retarder la divergence, ici pour un déplacement environ 1.5 fois supérieur, sans aucune modification du comportement. Les nombreuses configurations testées semblent, par ailleurs, démontrer que seul l'ordre de grandeur du paramètre de viscosité impacte les simulations. Aussi, pour tous les jeux de paramètres de zone cohésive testés par la suite, la même valeur, $\zeta = 2.3 \cdot 10^{-6}$ MPa/s a été considérée.

La réponse reportée sur la Figure 3.3 révèle également la présence d'un léger pic au niveau du déplacement au moment où le calcul brut a divergé. Il semble que la viscosité artificielle a permis de canaliser cette divergence pour permettre la poursuite du calcul. Néanmoins, dans certains cas, ce type de phénomène entraîne l'apparition de multiples oscillations d'amplitude importante et croissante, dans le même esprit que les perturbations observables avec un solveur explicite. Lorsqu'ils interviennent, ces artefacts seront exclus des comportements présentés. Sur toutes les Figures présentant un comportement macroscopique numérique, la croix finale \times correspond soit à la divergence numérique soit au début d'une phase d'oscillations divergentes (à ne pas confondre avec \star , la rupture expérimentale d'un matériau). Globalement, sur l'ensemble des résultats proposés ces deux scénarii interviennent dans les mêmes proportions.

Enfin, la Figure 3.4 offre une première observation d'un champ de décohésions pour une configuration réduite (8 sphères à 55%). Elle confirme l'intérêt de cette approche vis-à-vis de la simple observation du champ de déformation. En effet, dans ce second cas seul les décohésions en surface sont visibles, sans aucune information sur leurs états (partiellement ou totalement

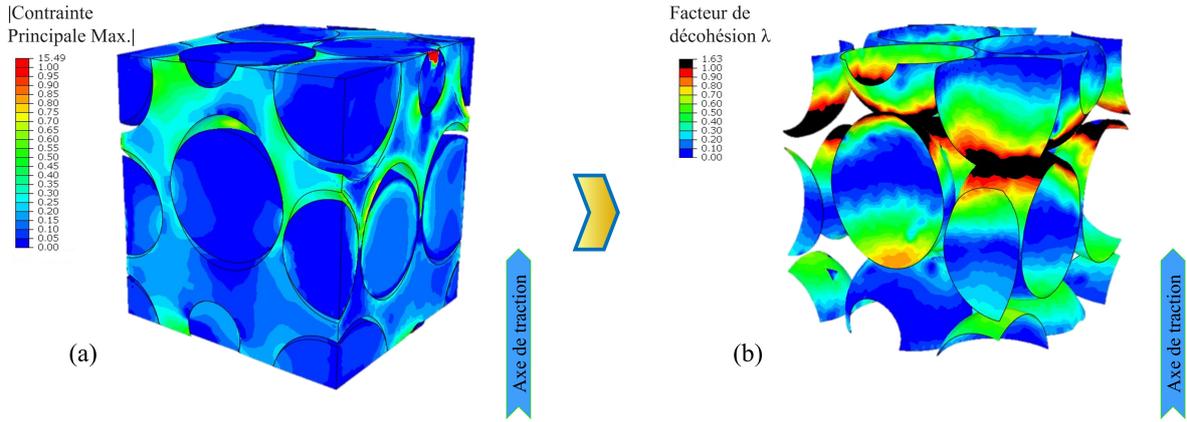


FIGURE 3.4 : Observation classique (a) du champ de contraintes et de déformations par rapport à une analyse directe (b) du champ de facteur de décohesion λ pour une microstructure réduite à 8 sphères ($f_{\text{vol}}=55\%$).

endommagées). A contrario, le champ de décohésions permet une visualisation au cœur de la microstructure et la reconnaissance des éléments partiellement (échelle de couleurs) ou totalement (noir) endommagés.

On peut observer également, sur l'interface en bas à gauche du champ d'endommagement (Figure 3.4(b)), une interface qui semble incohérente (triangle bleu au milieu d'une interface verte). Ce défaut, aussi observé par d'autres utilisateurs, est inhérent à l'implémentation d'une UVARM dans un calcul mené sur plusieurs nœuds de cluster. Si, dans le cas présent, il n'induit qu'une erreur visuelle, il pourrait entraîner de plus grandes complications si les valeurs extraites de la UVARM devaient être directement exploitées.

Dans ce contexte, les simulations comptent près d'un million et demi de degrés de liberté et les calculs durent entre 12 et 36 heures lorsqu'ils sont menés sur 10 nœuds de cluster (2.5 GHz Intel Xeon E5-2640 CPU avec 64 GB de RAM), d'où l'intérêt de l'étape d'analyse, a priori, de la représentativité des microstructures pour les simulations en grandes déformations.

3.2 Tendances des comportements simulés aux échelles globale et locale

Sur la base de ce nouveau cadre de simulation, capable de reproduire les décohésions matrice/particule, la réponse des VER et leurs champs d'endommagement vont être analysés. Les analyses micromécaniques des propegols reposant traditionnellement sur une représentation sphérique des charges, cette première analyse sera entièrement consacrée à des VER chargés avec des sphères. La microstructure numéro 8 de la section 2.2 a été choisie comme référence pour son isotropie remarquable et son nombre raisonnable de degrés de libertés.

Le comportement des phases est choisi en conformité avec les analyses du chapitre 2. Pour rappel, un modèle de Ogden (1982) a permis de reproduire le comportement de la matrice (Figure 2.13) avec une seule paire de paramètres $\mu=0.3$ MPa et $\alpha=3.2$. Le facteur de compressibilité de la loi hyperélastique est fixée à $D=6.6667 \cdot 10^{-4}$ MPa $^{-1}$, correspondant à un module de compressibilité $\kappa=3$ GPa. Dans le même esprit que la validation des VER en petites déformations, cette section propose d'analyser en détails la capacité des simulations avec endommagement cohésif à reproduire le comportement des matériaux composites simplifiés. Cette étude est, pour le moment, restreinte à une analyse comparative des tendances spécifiques observées en grandes

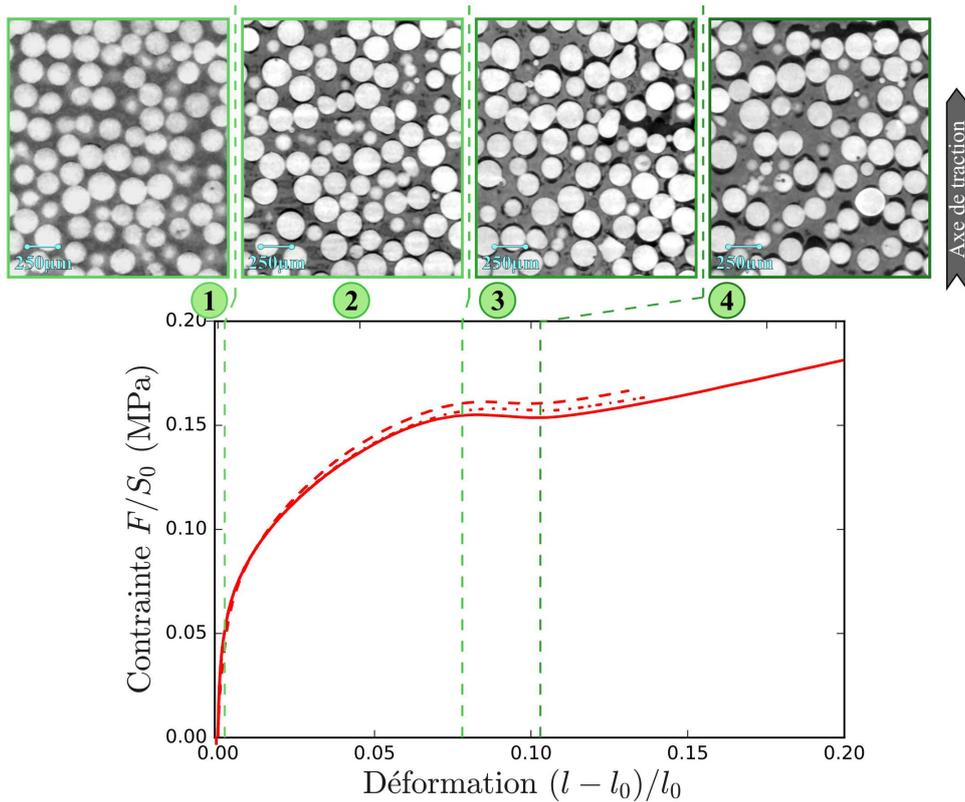


FIGURE 3.5 : Les quatre étapes du comportement en traction uniaxiale du composite chargé avec 55% de billes de verre, combinées à des coupes tomographiques illustrant l'état d'endommagement local à chaque étape.

déformations.

3.2.1 Endommagement du composite modèle contenant des billes de verre

La caractérisation du comportement en grandes déformations du matériau composite avec des billes de verre a été détaillé dans le chapitre 2 (Figure 2.16). Il a été obtenu par vidéoextensométrie pour des sollicitations quasi statiques (0.1mm/min) à 20°C sur trois éprouvettes. La Figure 3.5 rappelle l'excellente répétabilité obtenue, malgré de très fortes non-linéarités. Sur cette réponse, quatre phases de comportement peuvent être identifiées et l'état d'endommagement local correspondant a pu être observé par tomographie sur une éprouvette chargée.

En premier lieu, le comportement est linéaire alors qu'aucune décohésion n'est visible localement dans le composite. Par la suite, un adoucissement apparaît avec des décohésions réparties de manière homogène dans la microstructure. Elles sont localisées au niveau des pôles des particules dans les sens de la traction. Pour un niveau de déformation plus important, le comportement est affecté par une inflexion tout à fait singulière alors que, sur les tomographies, quelques fissures (coalescence par localisation des décohésions) sont visibles. Enfin, le début d'une reprise de rigidité est perceptible sur le comportement, accompagnée, à l'échelle des particules, de l'apparition d'un nombre croissant de fissures avec une ouverture (mode I) qui semble constante.

Sur la base de cette analyse, trois jeux de paramètres de zone cohésive, listés dans le Tableau 3.1, ont été sélectionnés pour reproduire ce type de comportement. Intuitivement, le paramètre K ne pilote que la réponse linéaire du matériau composite. Les autres configurations considérées se focaliseront donc exclusivement sur les paramètres modifiant la *pente* d'endommagement de

	K (MPa)	T^c (MPa)	δ^f (mm)
Jeu 1 : référence	70	0.050	0.04
Jeu 2 : grand δ^f	70	0.050	0.10
Jeu 3 : petit T^c	70	0.025	0.04

TABLE 3.1 : Paramètres de zone cohésive de référence pour l'étude.

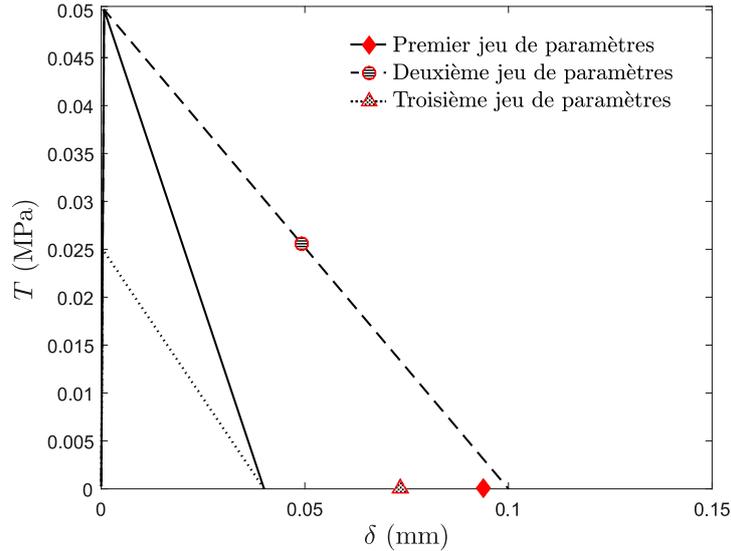


FIGURE 3.6 : Illustration de l'évolution des trois lois de zone cohésive étudiée en détails. Leurs paramètres correspondants sont listés dans la Table 3.1. Les symboles permettent d'identifier la séparation maximum atteinte par l'élément le plus endommagé au moment de la divergence, pour la microstructure de référence chargée avec des sphères.

la loi de zone cohésive, T^c et δ^f .

Les évolutions de loi de zone cohésive correspondantes sont illustrées sur la Figure 3.6. On constate que pour ces paramètres, le déplacement critique d'initiation de l'endommagement δ^c est très faible par rapport au déplacement à rupture δ^f ($\approx 1\%$). Dans cette configuration, l'écart entre le facteur de décohéson λ et la variable d'endommagement D est négligeable. Les échelles de couleurs des champs de décohésions, qui seront présentés dans la suite du chapitre, peuvent alors être directement reliées à un endommagement partiel dès lors que le premier échelon (bleu foncé) est dépassé.

3.2.2 Paramètres de référence

Le premier jeu de paramètres servira de référence. Il prend en compte un déplacement à rupture δ^f de 40 microns correspondant à environ 10% du rayon des sphères. Dans cette configuration, le déplacement de l'élément le plus endommagé est largement supérieur à δ^f pour une déformation globale de près de 15% (marqueur losange de la Figure 3.6).

La Figure 3.7 présente la réponse en contrainte-déformation de deux microstructures soumises à une traction uniaxiale. Afin de valider l'isotropie de la réponse en grandes déformations, l'une des deux microstructures a subi la même traction selon les axes principaux de la cellule. Les trois réponses présentent une similitude tout à fait remarquable, en particulier jusqu'à 6% de déformation et malgré une forte non-linéarité. Par ailleurs, pour analyser la représentativité des

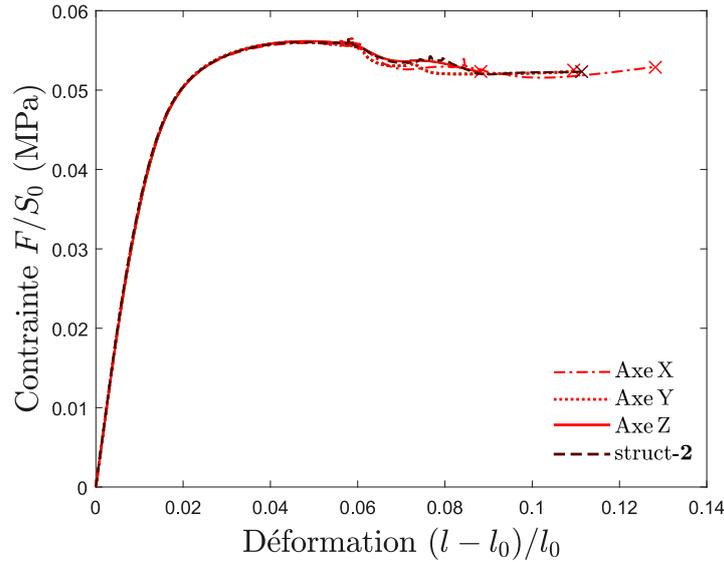


FIGURE 3.7 : Réponses en contrainte-déformation de deux microstructures pour le premier jeu de paramètres de zone cohésive (Tableau 3.1) et soumises respectivement à trois et une seule traction uniaxiale selon les axes principaux de la cellule.

cellules dans cette configuration, des éléments cohésifs ont été implémentés dans une nouvelle microstructure (spécifiquement la numéro 3 de la section 2.2). On constate (Figure 3.7) que l'évolution de son comportement est superposée avec celles obtenues avec la microstructure numéro 8. Les simulations en grandes déformations avec zones cohésives semblent ainsi lisser les effets morphologiques alors qu'ils prenaient une importance particulière dans la cadre de l'élasticité linéaire. Il convient tout de même de souligner que ces deux cellules ont été sélectionnées sur la base de leur désordre géométrique. Cette concomitance remarquable des comportements permet de considérer ces microstructures comme des VER et limiter l'analyse à une unique direction de traction et une seule microstructure.

L'allure du comportement obtenu est, de plus, remarquablement cohérente avec les tendances de la réponse du matériau composite chargé avec des billes de verre rappelé sur la Figure 3.5. De même que sur cette Figure, quatre étapes peuvent être identifiées : une évolution linéaire suivie d'un premier adoucissement puis une inflexion brusque et finalement une légère reprise de raideur. Fort de cette cohérence à l'échelle macroscopique, une attention toute particulière peut être apportée à l'endommagement obtenu à l'échelle locale.

Le champ de décohésions est affiché sur la Figure 3.8 pour des niveaux de déplacement macroscopique de 4, 8 et 10% correspondant aux étapes 2, 3 et 4 précédemment identifiées. Au début de l'adoucissement (étape 2), des décohésions s'initient aux pôles de toutes les particules (Figure 3.8(a)). L'endommagement partiel ($\delta^c < \text{déplacement} < \delta^f$) est dispersé uniformément dans le VER et pour chaque particule il est majoritairement symétrique. Il convient de noter que pour ce niveau de déplacement aucun élément n'est encore totalement rompu ($\text{déplacement} < \delta^f$). Ce n'est plus le cas pour le niveau de déformation suivant (étape 3, 8% de déformation) pour lequel des éléments noirs sont visibles (Figure 3.8(b)). Au même moment, la réponse macroscopique est affectée par la brusque inflexion visible sur la Figure 3.7. À ce niveau de chargement mécanique, une forte localisation des décohésions complètes est aussi clairement identifiable : l'ensemble des éléments totalement rompus sont concentrés sur un plan traversant la microstructure et perpendiculaire à la direction de sollicitation. L'endommagement est alors situé sur un seul pôle, pour chacune des sphères traversées, entraînant une perte de la symétrie locale précédemment

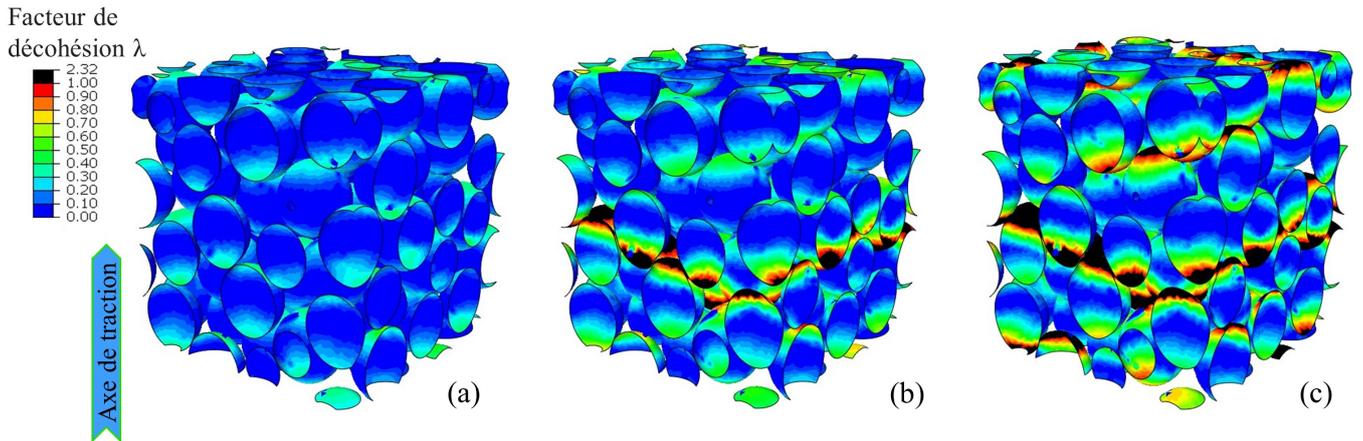


FIGURE 3.8 : Champs de décohésions pour des déformations de 4, 8 et 10% (a–c respectivement) pour le comportement global suivant l’axe Y reporté sur la Figure 3.7.

observée. Par la suite (étape 4), lorsque toutes les interfaces proches du plan de localisation sont totalement rompues, pour une déformation globale de 10%, un nouveau plan de localisation apparaît (Figure 3.8(c)). Malgré ces localisations des décohésions complètes, la microstructure conserve tout de même une raideur par le biais de la matrice pour laquelle aucun endommagement n’a été implémenté. Ce scénario d’endommagement locale, obtenu avec un VER numérique et des zones cohésives, présente une cohérence remarquable avec les observations volumiques du composite simplifié reportées sur la Figure 3.5. Quelle que soit la microstructure ou la direction de traction, les comportements reportés sur la Figure 3.8 suivent une séquence parfaitement identique, seule la position du plan et son éventuelle inclinaison peuvent différer.

En plus de la cohérence notable des tendances numériques et expérimentales aux échelles locale et globale, on constate que la répétabilité, observée dans les deux cas, se disperse légèrement, uniquement lorsque l’inflexion commence. Ce constat tend à indiquer que dans le cas d’une distribution aléatoire, l’influence de la morphologie sur le comportement global est restreinte au seul moment où la localisation et l’inflexion interviennent.

Il est maintenant intéressant d’étudier l’influence des paramètres choisis sur le comportement obtenu.

3.2.3 Augmentation du déplacement à rupture

Fort de la cohérence des caractéristiques du comportement macroscopique et de l’endommagement microscopique pour les paramètres de zone cohésive de référence, l’étude a été étendue en analysant l’impact de leur modification que ce soit pour le comportement global ou pour l’endommagement local. Un deuxième jeu de paramètres permet donc d’analyser l’effet d’un déplacement à rupture δ^f supérieur alors que la rigidité initiale K et la contrainte critique T^c sont conservées à l’identique (Table 3.1).

Cette modification du comportement de la zone cohésive retarde la rupture complète des éléments cohésifs les plus sollicités. La réponse macroscopique ainsi que le champ de décohésions final sont visibles sur la Figure 3.9. L’évolution de la courbe de contrainte–déformation se divise cette fois en deux étapes, un comportement linéaire suivi d’un adoucissement remarquablement stable. À l’échelle microscopique la variation du facteur de décohésion λ est répartie uniformément dans la microstructure et l’endommagement est distribué de manière symétrique au pôles des

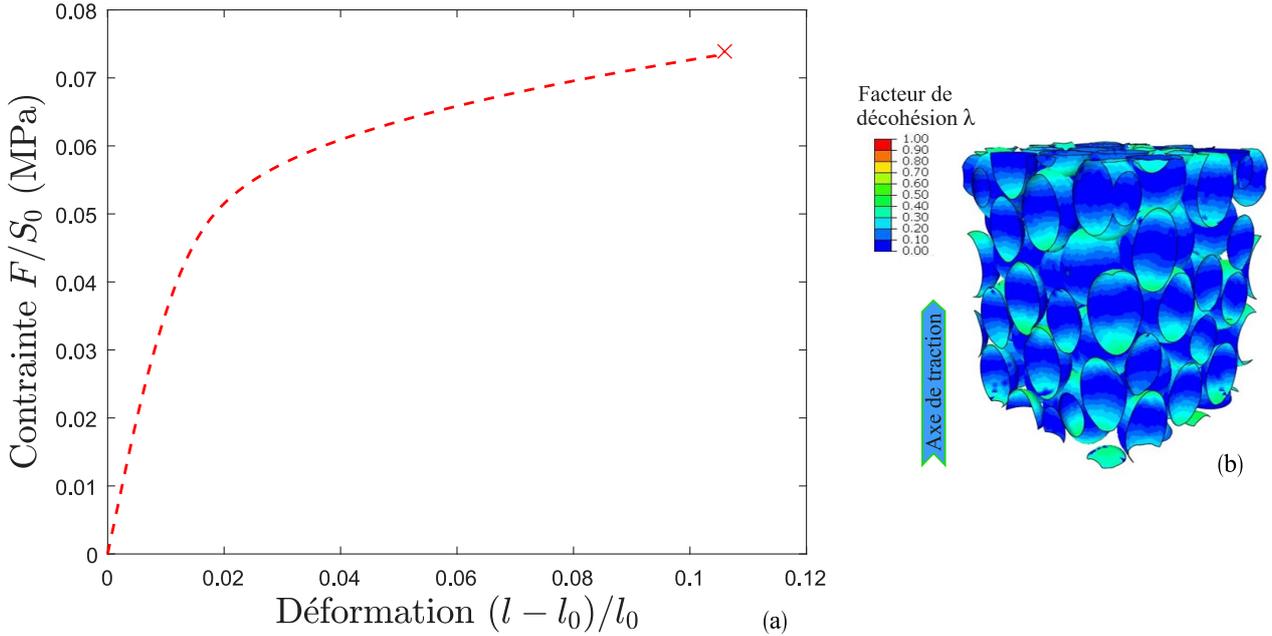


FIGURE 3.9 : (a) Réponse en contrainte–déformation de la microstructure de référence avec des sphères pour le deuxième jeu de paramètres de zone cohésive (Tableau 3.1), (b) Champs de décohésions au moment de la divergence.

particules. Comme le montre la Figure 3.6, l'élément le plus endommagé (marqueur sphérique), est loin d'être totalement rompu (déplacement $< \delta^f$). Le phénomène de localisation observé pour le premier jeu de paramètres peut donc être supprimé en modifiant les paramètres de zone cohésive. Les paramètres de zone cohésive ont donc un impact d'ordre un sur la réponse macroscopique et l'endommagement local qui paraissent, par ailleurs, associés. En effet, il semble exister un lien entre l'inflexion du comportement global, la localisation de l'endommagement local et la rupture complète de certaines zones cohésives.

3.2.4 Réduction de la contrainte critique

Un troisième jeu de paramètres permet de s'intéresser à l'effet d'une contrainte critique T^c réduite, en conservant à l'identique les deux autres paramètres (K et δ^f). En adéquation avec l'équation 1.3, cette réduction entraîne une diminution de l'énergie d'adhésion Γ d'un facteur équivalent. Cette configuration favorise alors le développement d'un nombre plus important de site d'endommagement, comme le montre la Figure 3.10, qui reporte la réponse macroscopique ainsi que le champ de décohésions au moment de la divergence. Une fois encore, les tendances obtenues sont radicalement différentes de celles fournies par le premier et le deuxième jeu de paramètres. L'endommagement semble intervenir plus tôt, mais il est surtout dispersé uniformément dans l'ensemble de la microstructure. Contrairement au deuxième cas, cette uniformité intervient malgré la rupture complète d'un nombre très important d'éléments cohésifs (déplacement $> \delta^f$, zones noires sur la Figure 3.10(b)). Aucune localisation n'est identifiable et la symétrie de l'endommagement au niveau des pôles des sphères est plutôt préservée, bien que l'un deux soit parfois favorisé. La réponse macroscopique est, elle aussi, différente avec trois étapes distinctes : un adoucissement qui intervient nettement plus tôt après la réponse linéaire, suivi d'une reprise de raideur. L'inflexion visible sur les Figures 3.5 et 3.7 est absente, renforçant l'idée qu'elle est la conséquence de la localisation détectée sur la Figure 3.8(c). En revanche, cette analyse contredit l'existence d'un lien entre la rupture complète des éléments cohésifs et le phénomène de localisa-

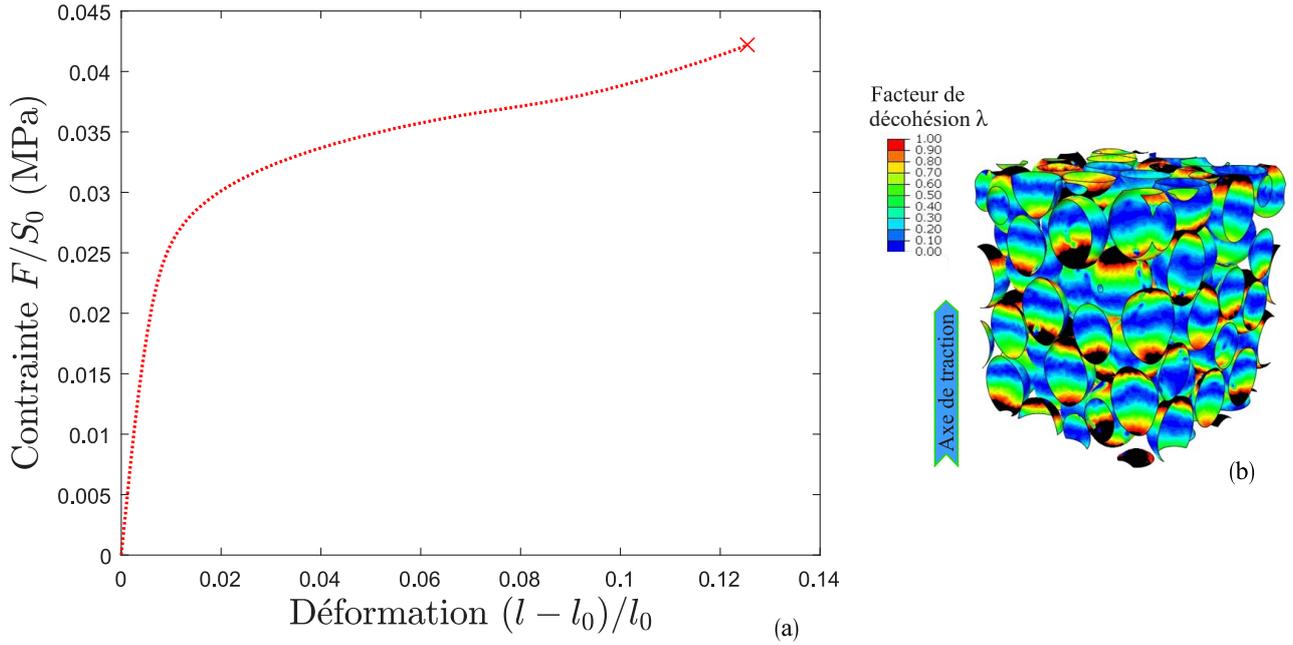


FIGURE 3.10 : (a) Réponse en contrainte–déformation de la microstructure de référence avec des sphères pour le troisième jeu de paramètres de zone cohésive (Table 3.1). (b) Champs de décohésions au moment de la divergence.

tion. À l'échelle macroscopique, la réduction de la contrainte critique T^c entraîne une chute des efforts transmis au travers du matériau (contrainte de la Figure 3.7 par rapport à celles de la Figure 3.10).

3.3 Vers une simulation quantitative

Face à la ressemblance de la réalité expérimentale obtenue avec le premier jeu de paramètres et fort de notre connaissance de l'impact d'une modification de la loi de zone cohésive, on peut tenter maintenant de proposer une analyse quantitative. Néanmoins, malgré des tendances similaires, la Figure 3.11 montre que les comportements sont très loin d'être identiques. Plusieurs différences notables sont visibles : d'une part une pente initiale est radicalement différente (facteur 10), comme si les zones cohésives induisaient ainsi un adoucissement du comportement global. D'autre part, la contrainte macroscopique pour laquelle l'endommagement intervient est près de 3 fois supérieure expérimentalement. Enfin, pour le matériau réel, l'adoucissement est d'abord stable avant de montrer une inflexion.

Une analyse paramétrique, autour du jeu de référence, est proposée pour permettre d'approfondir l'influence des paramètres. L'objectif est donc de découvrir en quoi l'analyse quantitative est loin d'être acquise, et de donner accès à une meilleure compréhension de l'impact de faibles perturbations des paramètres de zone cohésive. Dans toutes les analyses à suivre, le déplacement de l'interface la plus endommagée a été contrôlé afin de s'assurer que l'ensemble de la loi de zone cohésive est exprimé, au moins localement.

3.3.1 Influence de la rigidité initiale

La Figure 3.12 confirme que le paramètre K pilote bien la réponse élastique linéaire du matériau composite, comme pressenti en début de la section 3.2.1. Par ailleurs, pour les valeurs

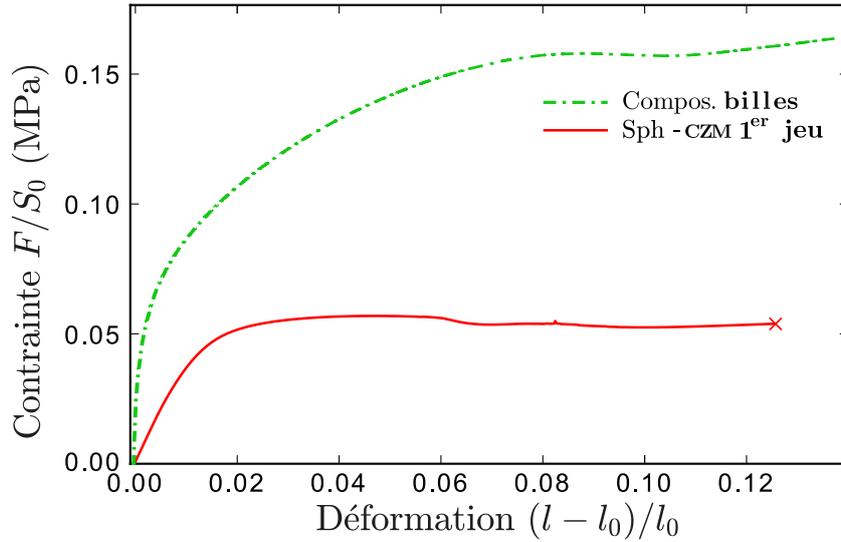


FIGURE 3.11 : Comparaison de la réponse en traction uniaxiale du composite simplifié avec des billes de verre (expérimental) et d'un VER avec sphères pour les paramètres de zone cohésive de référence (numérique).

testées, son impact est négligeable tant sur la contrainte à partir de laquelle l'adoucissement intervient que sur la réponse macroscopique au-delà du comportement linéaire.

Théoriquement, l'objectif est de donner à ce paramètre une valeur maximale afin que son effet sur la phase linéaire devienne négligeable. Néanmoins, malgré le recours à une régularisation visqueuse, K impacte de manière importante la convergence numérique (Figure 3.12), empêchant la définition d'une rigidité initiale trop importante. Un équilibre doit donc être trouvé. Il est obtenu pour une valeur de $K = 70$ MPa, permettant une simulation de l'endommagement, raisonnablement étendue, malgré un assouplissement initial non négligeable.

Cette analyse démontre que, pour la configuration actuelle, il est impossible à la fois de reproduire le comportement linéaire et de simuler l'endommagement, du fait des divergences numériques. Des méthodes ont été proposées pour estimer l'intervalle des rigidités ayant un effet négligeable sur la phase linéaire (Blal *et al.*, 2012, 2013), néanmoins la connaissance de cet intervalle ne permet pas d'améliorer la convergence.

Malgré l'incapacité à obtenir une représentativité quantitative sur le comportement linéaire, l'impact des autres paramètres peut tout de même être analysé afin de comprendre comment ceux-ci pourraient être modifiés pour permettre d'améliorer la représentation du comportement non-linéaire.

3.3.2 Influence de la contrainte critique

La Figure 3.13 présente l'influence de la contrainte critique T^c . Ce paramètre contrôle de manière claire le niveau de contrainte à partir duquel l'endommagement s'initie. Dans le cas de faibles perturbations, son influence sur le comportement adouci semble restreinte à la profondeur de l'inflexion. Celle-ci est d'autant plus marquée que le paramètre est important et inversement (au point de disparaître pour le troisième jeu de paramètres, section 3.2.4). De manière notable, son influence sur la convergence numérique est très réduite, offrant une certaine flexibilité pour améliorer la représentation des comportements non linéaires, dès lors que la phase élastique peut être reproduite.

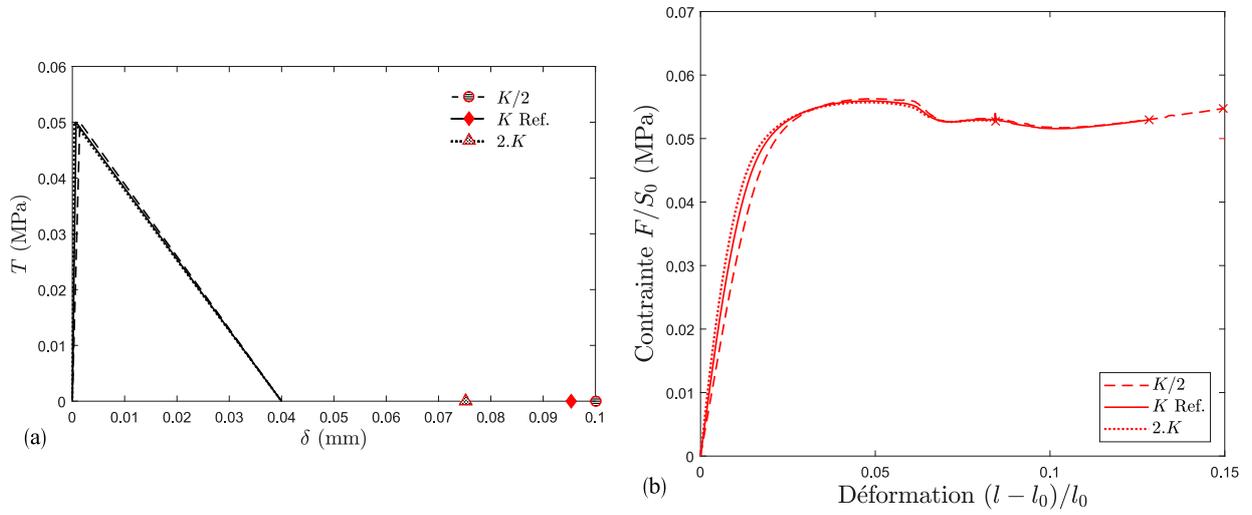


FIGURE 3.12 : Influence de la rigidité initiale K sur (a) la loi de zone cohésive et impact sur (b) le comportement macroscopique pour la microstructure de référence avec des sphères. Sur la loi de zone cohésive, les symboles permettent de localiser la séparation maximum atteinte par l'élément le plus endommagé au moment de la divergence dans chacun des trois cas.

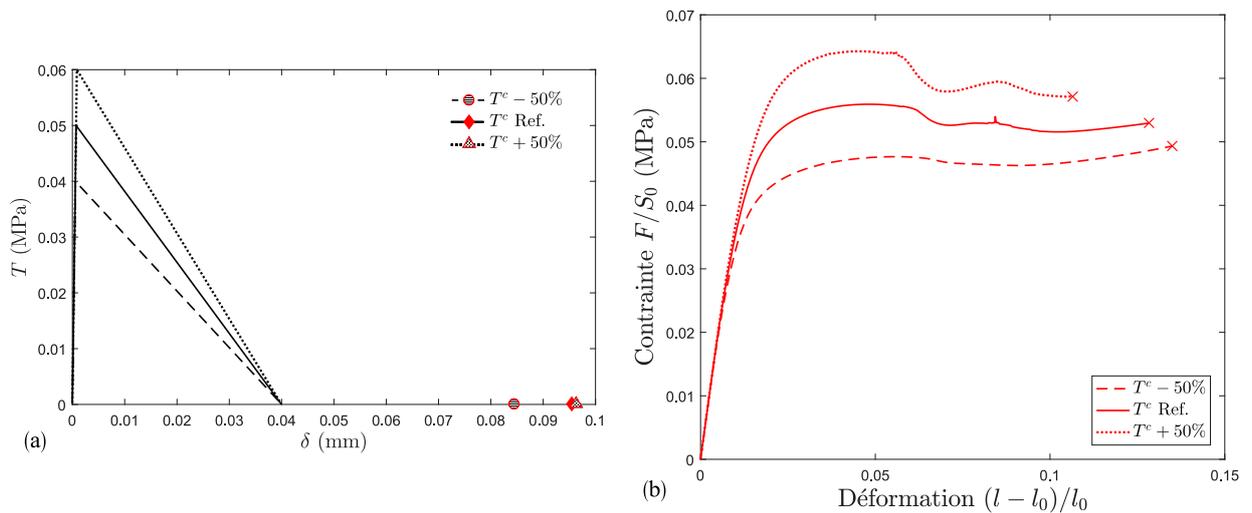


FIGURE 3.13 : Influence du paramètre de contrainte critique T^c sur (a) la loi de zone cohésive et impact sur (b) le comportement macroscopique pour la microstructure de référence avec des sphères. Sur la loi de zone cohésive, les symboles permettent de localiser la séparation maximum atteinte par l'élément le plus endommagé au moment de la divergence dans chacun des trois cas.

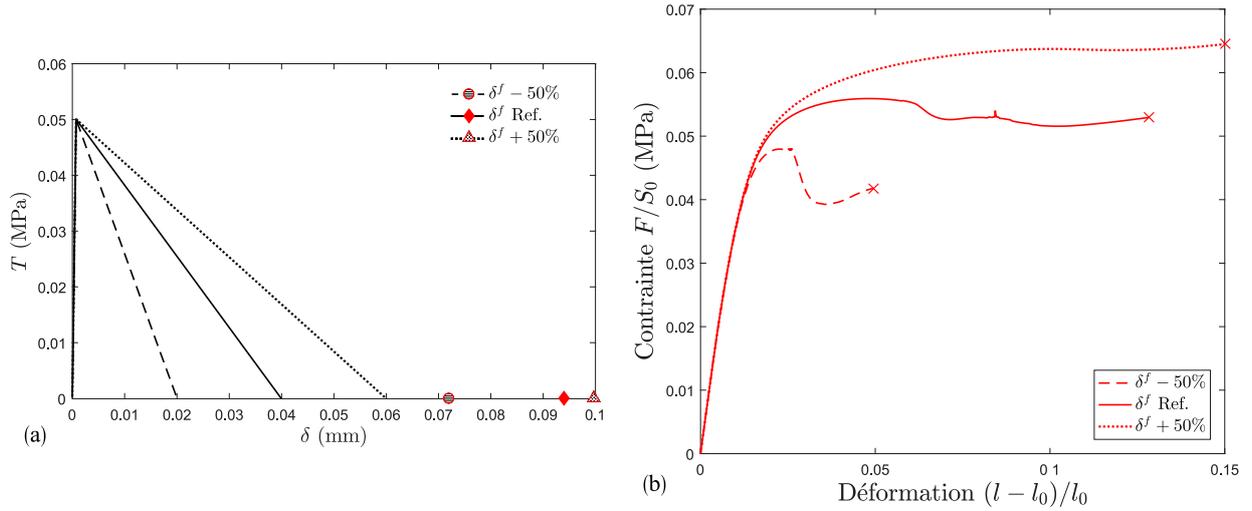


FIGURE 3.14 : Influence du déplacement à rupture δ^f sur (a) la loi de zone cohésive et impact sur (b) le comportement macroscopique pour la microstructure de référence avec des sphères. Sur la loi de zone cohésive, les symboles permettent de localiser la séparation maximum atteinte par l'élément le plus endommagé au moment de la divergence dans chacun des trois cas.

3.3.3 Influence du déplacement à rupture

De la même façon, l'influence du déplacement à rupture δ^f a été étudiée en conservant la rigidité K et la contrainte critique T^c du jeu de paramètres de référence (Tableau 3.1). L'évolution obtenue est reproduite sur la Figure 3.14. On constate que ce paramètre contrôle exclusivement le comportement endommagé, permettant des évolutions radicalement différentes pour de faibles perturbations. Ce paramètre ne semble, par contre, pas modifier le niveau de contrainte globale à partir duquel l'adoucissement s'initie. Celui-ci serait donc uniquement piloté par la contrainte critique T^c . Il convient de noter que les deux derniers paramètres (T^c et δ^f) ont un impact opposé sur la profondeur de l'inflexion.

Enfin, la convergence numérique est très affectée par la réduction du déplacement à rupture δ^f (Figure 3.14(b)). Si la sensibilité à ce paramètre semble aussi critique que pour la raideur initiale K , il donne tout de même accès à des comportements non-linéaires très variés, contrairement à la raideur initiale qui ne modifie pas l'endommagement.

3.3.4 Prise en compte d'un modèle de zone cohésive plus complexe

Un modèle de zone cohésive plus complexe, proposé par [Park et al. \(2009\)](#), nommé PPR dans la littérature, a été testé afin d'analyser son intérêt en vue d'obtenir une réponse quantitativement comparable aux résultats expérimentaux. Une version thermodynamiquement admissible a été adaptée par [Gilormini et Diani \(2017\)](#) et implémentée via une nouvelle UEL ([Park et Paulino, 2012](#)). Cette formulation permet une évolution plus lissée de la loi de traction séparation (Figure 3.15(a)) mais au prix de l'introduction de paramètres supplémentaires (jusqu'à huit paramètres lorsque les comportements normal et tangentiel sont dissociés). Dans l'esprit de [Toulemonde \(2016\)](#) ou [Gilormini et al. \(2017\)](#), cette loi doit offrir une plus grande flexibilité pour obtenir des simulations quantitatives.

Les paramètres du modèle PPR ont été choisis de façon à s'approcher de l'évolution obtenue avec le jeu de paramètres de référence du Tableau 3.1, sans distinction du comportements normal et tangent. La réponse en contrainte-déformation obtenue est reportée sur la Figure 3.15(b)

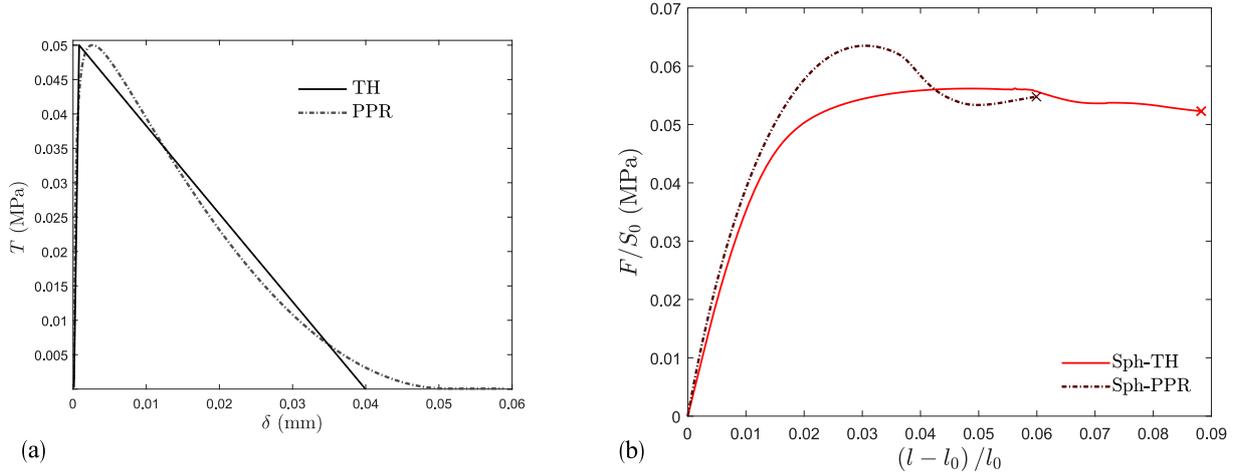


FIGURE 3.15 : (a) Évolution des deux lois de zone cohésive pour les paramètres de référence avec [Tvergaard et Hutchinson \(1993\)](#) (TH) et une configuration approchant avec [Park et al. \(2009\)](#) (PPR). (b) Comportements uniaxiaux macroscopiques obtenus pour les deux lois implémentées avec la microstructure de référence avec des sphères.

avec le comportement de référence pour le modèle de [Tvergaard et Hutchinson \(1993\)](#). Si les deux modèles induisent des réponses notablement différentes, on constate qu'ils reproduisent des tendances similaires. Le modèle PPR conduit donc à une évolution proche de celle obtenue dans la section précédente pour un déplacement à rupture inférieur de 50%. Seule une observation fine permet de déceler une légère amélioration de la rigidité initiale avec ce nouveau modèle. Cette analyse comparative a été complétée en modifiant les paramètres de la loi PPR. De même que sur la Figure 3.15(b), les réponses obtenues ont démontré une grande sensibilité du comportement au modèle de zone cohésive implémenté. Néanmoins il ne semble pas qu'un comportement obtenu avec le nouveau modèle puisse être reproduit avec [Tvergaard et Hutchinson \(1993\)](#). Ainsi, l'implémentation du modèle PPR ne semble offrir que des modifications marginales des comportements simulés, ne permettant pas de corriger les défauts majeurs qui empêchent une représentation quantitativement satisfaisante. Cette conclusion doit tout de même être modérée dans la mesure où aucune simulation proposée ne différencie les comportements cohésifs normaux et tangentiels. C'est, d'ailleurs, sur la prise en compte de ces comportements différenciés et sur le traitement des chargements mécaniques mixtes que les formulations des deux modèles utilisés diffèrent le plus ([Park et Paulino, 2011](#)).

Si l'étude paramétrique et les simulations avec la loi PPR n'ont pas permis d'aboutir à une simulation quantitative, elles ont offert la possibilité de détecter, pour une même microstructure, l'occurrence de la localisation dans des plans différents, uniquement en modifiant les paramètres de zone cohésive (Figure 3.16). Ainsi, si la localisation de l'endommagement semble affectée par la morphologie, comme évoqué en section 3.2.2, ce lien n'est pas exclusif empêchant toute prédiction de sa position sur la seule base d'une analyse géométrique. [Toulemonde \(2016\)](#) avait déjà envisagé cette possibilité à partir de ses simulations en deux dimensions, bien qu'elle s'oppose à l'analyse de [Ghosh et al. \(2000\)](#) pour des configurations avec des fractions volumiques de particules de 20%. Enfin, si la configuration avec un déplacement à rupture inférieur de 50% ou celle de la loi PPR ont des comportements macroscopiques proches et des zones de localisation similaires, leur nombre d'éléments endommagés, pour un même niveau de déformation global, est radicalement différent (Figure 3.16).

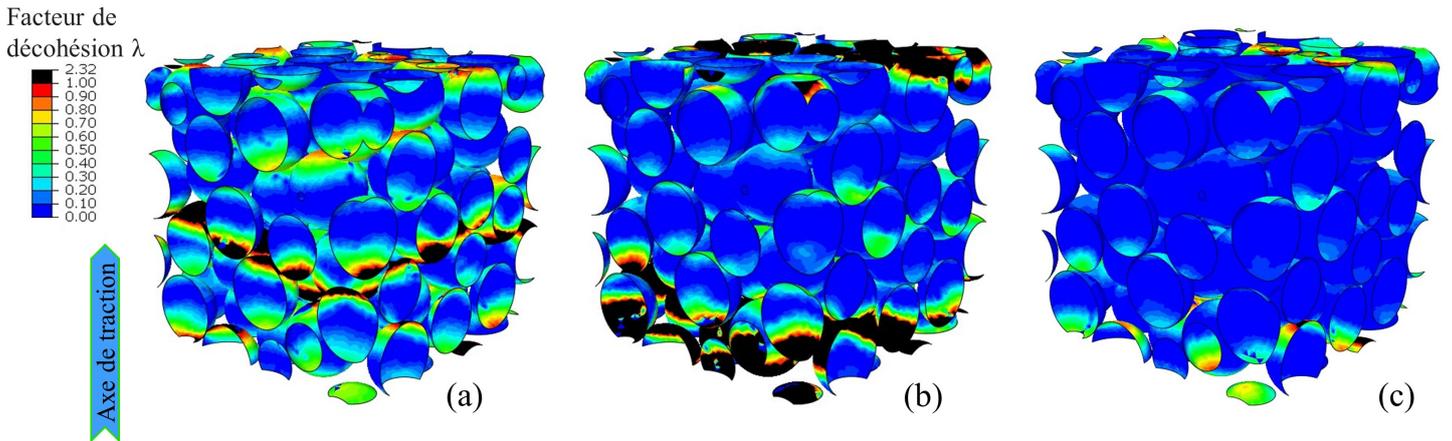


FIGURE 3.16 : Champs décohesion de la microstructure de référence avec des sphères pour (a) le premier jeu de paramètres de zone cohésive (7% de déformation) (b) la configuration avec un déplacement à rupture δ^f réduit (comportement de la Figure 3.14) (5% de déformation) et (c) la configuration avec la loi de zone cohésive PPR (Figure 3.15(a)) pour une déformation de 5%. On note que la localisation de l'endommagement se concentre sur des plans différents avec des variations notables du nombre d'éléments endommagés.

3.3.5 Optimisation du comportement mécanique

Ces simulations donnent tout de même accès à une meilleure compréhension de la façon dont l'adhésion locale impacte la réponse globale. Une identification des paramètres d'adhésion matrice/particule à modifier pour optimiser le comportement de ces composites est alors rendu possible.

Ainsi, une réduction de la contrainte à rupture réduit d'un facteur presque identique les efforts transmis par le matériau (Figure 3.13). Cependant, cette configuration présente l'avantage de dissiper les phénomènes de localisation (Figure 3.10). En effet, si une augmentation conséquente de la contrainte critique T^c permet d'améliorer les niveaux de contrainte transmise, la concentration de l'endommagement qui intervient à l'échelle microscopique pourrait entraîner une rupture du matériau pour des niveaux de déformation bien plus réduits. Dans ce contexte, la définition d'un critère de rupture pour les simulations numériques trouverait tout son sens et permettrait de les exploiter bien plus efficacement. Néanmoins, les configurations présentées démontrent clairement qu'un critère reposant sur une simple détection de la localisation ne saurait suffire. Une exploration beaucoup plus fine de la simulation de la rupture serait donc nécessaire bien qu'elle dépasse le cadre du présent projet de recherche.

Il semble, en revanche, qu'une augmentation du déplacement à rupture permet de conserver une dispersion homogène de l'endommagement (pas de localisation) tout en conservant un effort transmis important (Figure 3.9). Expérimentalement, cette propriété est plus difficile à cerner que l'effort maximum transmis au travers de l'interface. Cependant, elle peut être perçue dans le cas particulier des propergols à matrice inerte pour lesquels on peut observer des fibrilles en début de décohesion (Figure 3.17). Ces dernières permettent pour des ouvertures très importantes une transmission réduite mais persistante de l'effort. Ce phénomène correspond tout à fait à l'impact du déplacement à rupture δ^f sur la loi de zone cohésive (Figure 1.25). Les simulations permettent alors de mettre en évidence quelles propriétés spécifiques de l'interfaces expliquent le comportement mécanique remarquable des propergols à liant inerte.

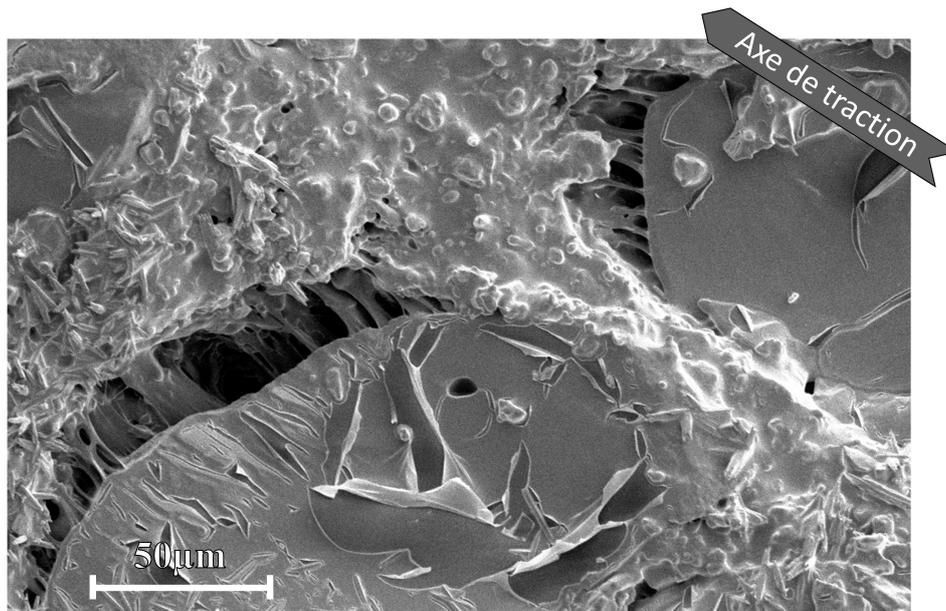


FIGURE 3.17 : Observation MEB d'un propegol à liant inerte sollicité en traction uniaxiale (16% de déformation) : les fibrilles interfaciales sont nettement visibles. Image obtenue sur le MEB *Zeiss JSM-6510* du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 3 kV.

3.4 Analyse de l'impact de la morphologie des charges en grandes déformations

La forme irrégulière des charges n'a démontré qu'un impact de second ordre sur le comportement élastique. L'analyse est maintenant étendue en grandes déformations lorsque l'endommagement est pris en compte.

3.4.1 Comportement des microstructures chargées avec des polyèdres

La réponse en contrainte-déformation d'une microstructure chargée avec des polyèdres (spécifiquement la numéro 19 de la section 2.3.1) a d'abord été analysée à part (Figure 3.18) pour des tractions uniaxiales suivant ses trois axes principaux. Ce comportement reproduit la séquence en quatre étapes originellement identifiées pour les composites et les VER chargés avec des sphères : réponse initialement linéaire puis premier adoucissement suivi d'une inflexion brutale et finalement reprise de raideur. Il semblerait que les tendances de cette séquence soient plus en adéquation avec le comportement expérimental du composite de laboratoire chargé avec des billes avec le comportement du composite chargé qu'avec des éclats de verre (Figure 1.13).

Par ailleurs, la très faible dispersion des comportements obtenus suivant les trois directions de sollicitation semble confirmer l'isotropie satisfaisante des cellules avec polyèdres. En complément, le comportement d'une autre microstructure (la numéro 16 de la section 2.3.1) est superposé à celui de la première microstructure (Figure 3.18), ce qui justifie à nouveau que ces microstructures soient considérées comme des VER dans le cadre des grandes déformations avec endommagement.

L'analyse de l'endommagement à l'échelle locale, à différents états de déformation, est présentée sur la Figure 3.19. Au début de la sollicitation, lorsque la réponse du matériau est linéaire, aucun élément n'a encore atteint la contrainte critique T^c . Lorsque l'adoucissement intervient à l'échelle macroscopique, les premiers éléments commencent à s'endommager de manière homo-

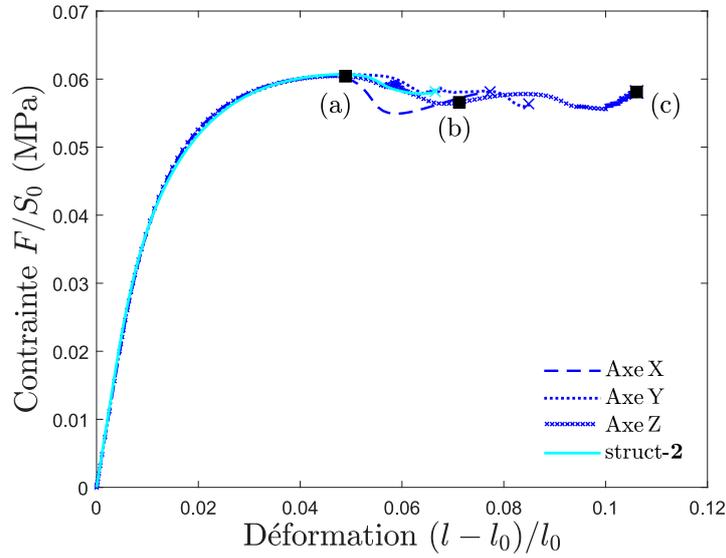


FIGURE 3.18 : Réponses en contrainte-déformation de deux microstructures avec des polyèdres pour le premier jeu de paramètres de zone cohésive. Elles sont soumises respectivement à trois et une seule traction uniaxiale selon les axes principaux de la cellule. Les carrés noirs correspondent à l'état de contrainte-déformation des champs de décohésions visibles sur la Figure 3.19.

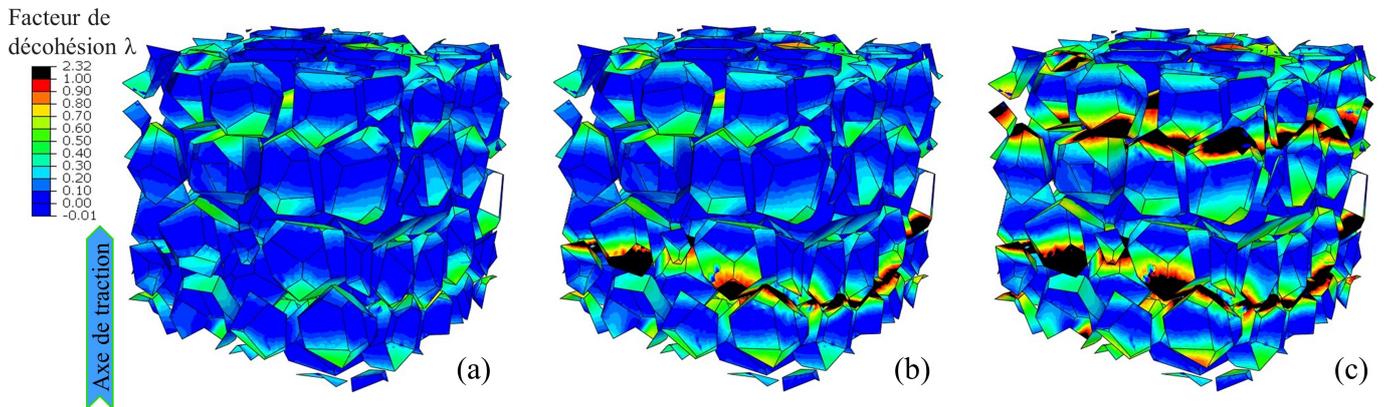


FIGURE 3.19 : Champs de décohésions pour des déformations de 5, 8 and 10% (a-c respectivement) correspondant au comportement suivant l'axe Z sur la Figure 3.18.

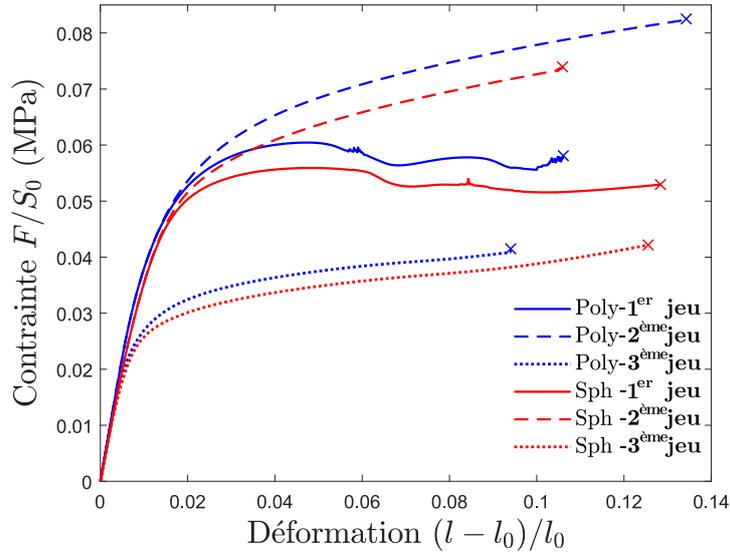


FIGURE 3.20 : Réponses en contrainte-déformation pour une traction uniaxiale des microstructures chargées avec des sphères ou des polyèdres pour les trois jeux de paramètres de zone cohésive listés dans le Tableau 3.1.

gène mais sans rupture complète (Figure 3.19(a)). Une fois encore, l'inflexion brusque apparaît alors même que les premiers éléments franchissent le déplacement à rupture δ^f (endommagement complet). De façon tout à fait similaire à l'analyse du cas des VER avec sphères, ces éléments rompus sont localisés d'abord sur un seul plan (Figure 3.19(b)) puis un autre apparaît pour une sollicitation supérieure (Figure 3.19(c)). Ceux-ci sont, cette fois, toujours perpendiculaires à la direction de traction. Le comportement obtenu numériquement avec des VER chargés avec des polyèdres reprend donc les mêmes tendances que celles observées dans le cas des inclusions sphériques, au moins pour le premier jeu de paramètres de zone cohésive. Une analyse comparative directe peut donc aisément être envisagée.

3.4.2 Impact de la géométrie des particules sur le comportement en grandes déformations

La Figure 3.20 reporte les comportements des deux types de VER, avec sphères et avec polyèdres, pour les trois jeux de paramètres de zone cohésive du Tableau 3.1. De plus, la Figure 3.21 permet de visualiser, pour chaque jeu, les champs des décohésions correspondant à la première déformation à partir de laquelle la divergence est enregistrée dans l'un des VER (respectivement 10.6%, 10.6% et 9.4%). Dans la continuité des comportements spécifiques obtenus avec les VER avec sphères, les trois jeux de paramètres conduisent à trois comportements radicalement différents.

Comme détaillé dans la section précédente, le premier jeu induit toujours l'apparition d'un plan de localisation à l'échelle microscopique concomitant avec l'occurrence d'une brusque inflexion de la réponse globale (Figure 3.21(a) et (d)). Pour le deuxième jeu de paramètres, alors que de nombreux éléments sont endommagés (déplacement $> \delta^c$) aucun n'est totalement rompu du fait d'un déplacement à rupture δ^f trop important vis à vis de la taille des charges ou du niveau de déformation global à partir duquel la divergence intervient. Dans ces conditions, quelle que soit la forme des charges, on retrouve, la répartition symétrique de l'endommagement aux pôles des particules avec une dispersion homogène (Figure 3.21(b) et (e)). Enfin, le dernier jeu de paramètres conduit à une réponse significativement inférieure à celle obtenue avec les premiers

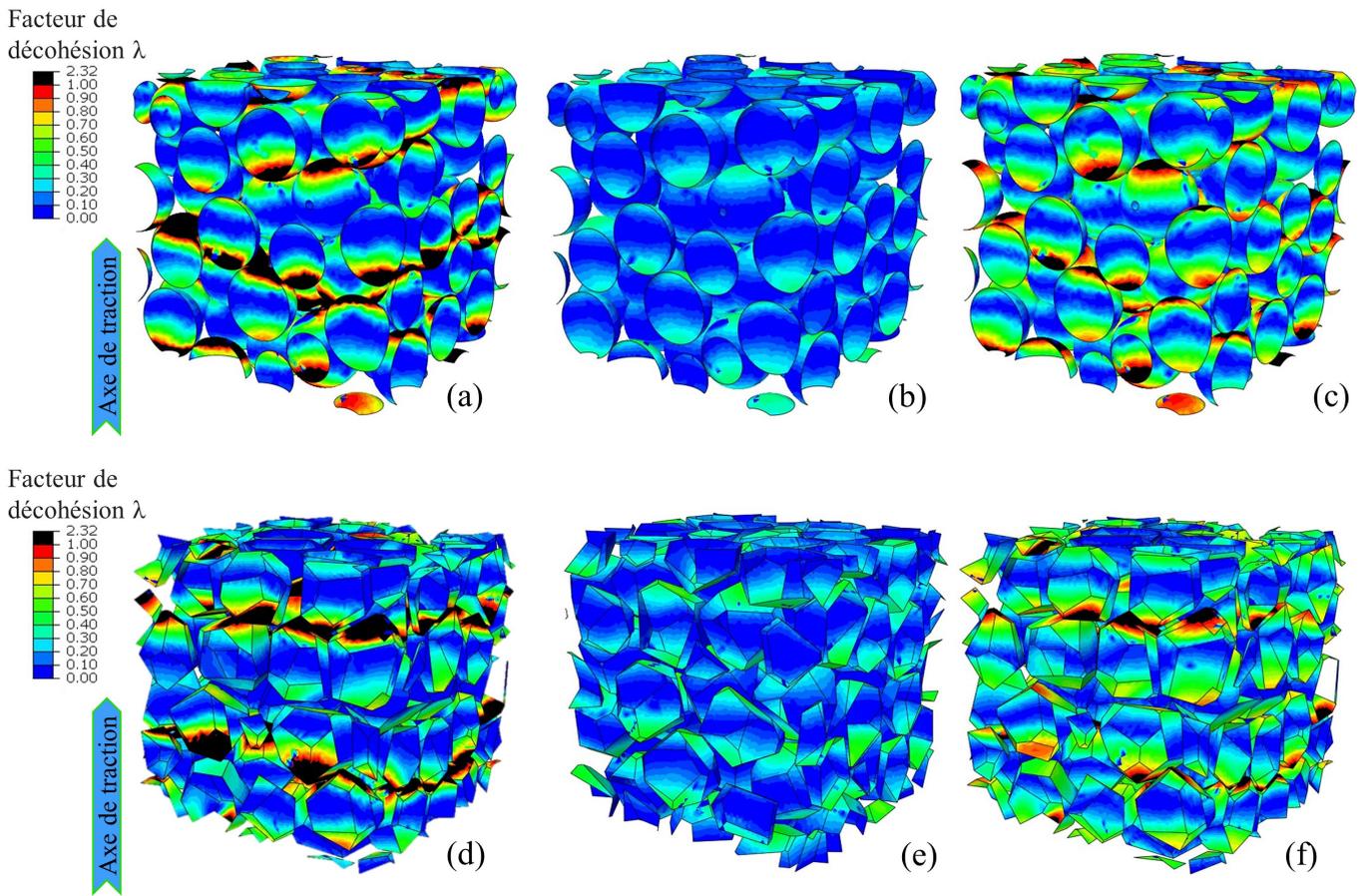


FIGURE 3.21 : Champs de décohesion pour des VER chargés avec de sphères (a–c) ou des polyèdres (d–f) pour les trois jeux de paramètres de zone cohésive listés dans le Tableau 3.1 (colonne) pour des déformations uniaxiales macroscopiques de 10.6%, 10.6% et 9.4% respectivement.

jeux, comme cela avait déjà été noté pour les sphères. La réduction de la contrainte critique T^c restreignant l'effort maximum transmissible au niveau des interfaces et du fait de leur nombre très conséquent, les efforts que peuvent transmettre le composite sont largement réduits (Figure 3.20). Si l'endommagement à l'échelle locale est uniformément réparti dans le cas des sphères (Figure 3.21(c)), les prémices d'une localisation semblent visibles avec des polyèdres, particulièrement dans la partie supérieure de la microstructure (Figure 3.21(f)). Cette différence est l'une des plus notables de cette comparaison, remettant en question, pour le cas de polyèdres, le lien exclusif entre la localisation à l'échelle microscopique et l'intervention d'une inflexion brusque sur le comportement macroscopique.

Ainsi, de même que dans le cadre de l'élasticité linéaire, si la forme des particules a un impact sur le comportement, il reste restreint, malgré une complexification de la simulation. Les mêmes tendances sont clairement identifiables quel que soit le jeu de paramètres de zone cohésive considéré. À l'inverse des analyses proposées dans le cadre des petites déformations, ces similitudes sont marquées par un comportement toujours légèrement plus souple dans le cas des particules sphériques (contrainte max $\approx 7\%$ inférieure) signifiant un endommagement se déclenchant plus tôt pour ces dernières.

Les travaux de [Arora et al. \(2015\)](#) avaient démontré, dans le cas d'un PBX, l'apparition préférentielle de l'endommagement aux sommets des particules. A contrario, et de manière contre intuitive, la présente étude montre que l'introduction de particules irrégulières avec des angles saillants, est peu critique dans l'évolution de l'endommagement. Il semble que les fractions volumiques des propegols (largement plus faibles que les PBX) réduisent la criticité de ces zones. Ce constat est clairement confirmé par les champs de décohésions de la Figure 3.21 où l'endommagement intervient en priorité aux pôles des particules, suivant la direction de la traction. Une étude très attentive de l'initiation de l'endommagement sur les particules polyédriques, montre qu'il s'initie effectivement d'abord au niveau des arêtes ou des sommets situés au pôle des particules. Cependant, avant qu'il ne se propage sur ces sites, il s'initie à d'autres pôles sans distinction géométrique. Il convient tout de même de rappeler qu'aucun critère de rupture de la matrice n'a été envisagé. Aussi, il est complexe de déterminer précisément dans quelle mesure les localisations observées vont aboutir à la rupture complète du matériau. Vraisemblablement, la taille des cellules doit être largement plus importante que celle proposée ici pour assurer leur représentativité vis-à-vis de la rupture. De tels VER, avec un critère de rupture fiable, autoriseraient une estimation claire de la criticité des localisations vis-à-vis de la ruine du composite.

3.4.3 Retour sur les comportements expérimentaux

Il semble, que la forme des particules ne puisse pas, à elle seule, expliquer la différence de comportements des matériaux composites modèles. Or, l'analyse de la section 3.2 a confirmé l'impact de tout premier ordre des paramètres de zone cohésive tant sur la réponse macroscopique que sur l'allure du champ de décohésions. En combinant l'analyse comparative des évolutions numériquement obtenues et les données expérimentales en grandes déformations, la Figure 3.22 montre que si on retrouve effectivement les mêmes tendances pour le cas des particules sphériques avec les paramètres de référence, il semble que le comportement du composite chargé avec des éclats de verre soit plus proche de la réponse obtenue avec le second jeu de paramètres de zone cohésive. Ainsi la différence notable de comportements en grande déformation entre les deux matériaux composites modèles ne semble pas provenir uniquement de la forme des particules. Ce phénomène proviendrait aussi d'une adhésion sensiblement différente dans les deux cas, du fait soit d'une rugosité très différente entre les deux types de charges (Figure 1.6) ou d'une

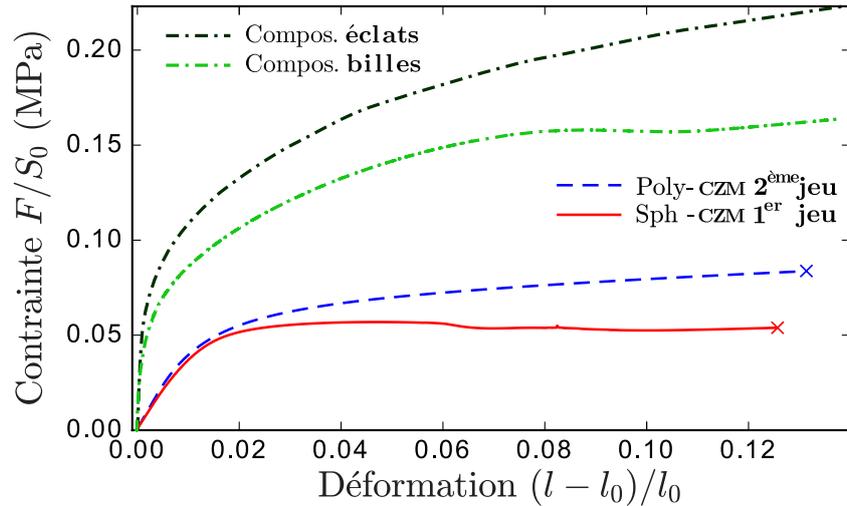


FIGURE 3.22 : Comparaison quantitative des comportements en grandes déformations des deux composites simplifiés (avec billes et éclats de verre), d'un VER avec sphères pour le premier jeu de paramètres de zone cohésive de référence et d'un VER avec polyèdres pour le second jeu de paramètres de zone cohésive.

nature différente du verre qui les compose (nature chimique, polarité, ...) alors qu'ils avaient été pré-supposés identiques.

Si on ne parvient pas, dans le contexte actuel, à mettre en place une simulation quantitative, les approches développées donnent tout de même accès à des analyses comparatives qui permettent d'identifier les propriétés influençant la réponse en grandes déformations de ce type de matériau. Elles offrent alors la possibilité de détecter l'occurrence, dans les composites réels, de phénomènes spécifiques (arrangements ordonnés, différentes adhésions, non-linéarité singulière, ...).

3.4.4 Synthèse

Ce chapitre détaille les solutions mises en œuvre pour simuler l'endommagement, ainsi que les comportements obtenus. Il débute par un rappel de la loi de zone cohésive sélectionnée et la justification d'une approche focalisée sur un déplacement à rupture δ^f plus que sur une énergie d'adhésion Γ . Par la suite, afin d'améliorer la convergence des simulations, une régularisation visqueuse a été proposée et le cadre précis de l'implémentation, au travers d'une routine UEL, du comportement cohésif pour des éléments quadratiques a été détaillé. Une stratégie d'affichage de l'état d'endommagement des éléments cohésifs a de plus été proposée à partir d'une routine UVARM. Enfin, l'ensemble de ce cadre de simulation a été validé sur un cas test. Il démontrent l'intérêt d'observer l'état d'endommagement des interfaces de même que l'amélioration notable de la convergence obtenue grâce à la régularisation visqueuse, sans impact visible sur le comportement mécanique.

L'étude s'est d'abord focalisée sur les microstructures contenant des sphères. Le comportement expérimental du composite chargé avec des billes de verre a été rappelé et combiné à des observations de l'allure de son endommagement à l'échelle microscopique. Ces tendances ont été confrontées au comportement simulé pour trois jeux de paramètres de zone cohésive. Le premier, qui a servi de référence dans l'étude, a permis de retrouver les principales tendances du comportement expérimental du composite tant à l'échelle globale qu'au niveau des champs d'endommagement. Parmi les spécificités relevées, on note l'intervention d'une inflexion du com-

portement macroscopique qui s'accompagne d'une localisation de l'endommagement à l'échelle des particules. Les deux autres jeux de paramètres de zone cohésive conduisent à des comportements et des champs d'endommagement radicalement différents, démontrant un impact du premier ordre des propriétés d'interface sur le comportement et l'endommagement de ce type de composite.

La cohérence remarquable des tendances obtenues avec les paramètres de zone cohésive de références invite à proposer une confrontation quantitative des comportements simulés et expérimentaux. Cependant, cette comparaison met en évidence des différences notables entre les deux approches. Pour analyser et expliquer ces écarts, une étude paramétrique a été proposée. La rigidité initiale K des zones cohésives ne semble ainsi impacter que le comportement linéaire, sans modification sensible du comportement endommagé. Cependant, malgré la régularisation visqueuse, ce paramètre a un effet d'autant plus néfaste sur la convergence numérique qu'il est grand. Ce phénomène empêche donc la définition d'une rigidité importante qui pourrait atténuer l'impact des zones cohésives sur les comportements linéaires, permettant alors d'envisager une confrontation quantitative sur la première gamme de déformation. L'analyse paramétrique a cependant été étendue aux autres paramètres démontrant un effet clair de la contrainte critique T^c sur la contrainte macroscopique à partir de laquelle l'adoucissement s'initie avec un effet modéré sur le comportement endommagé ou la convergence numérique. Le déplacement à rupture δ^f influence de son côté exclusivement le comportement endommagé. Si ce dernier paramètre présente un effet notable sur la convergence, il permet tout de même de simuler des adoucissements très divers. Enfin, une zone cohésive plus complexe a été brièvement considérée ne démontrant pas de correction significative des écarts avec des données expérimentales ou bien l'obtention de tendances radicalement différentes. Ces analyses ont cependant mis en évidence que lorsqu'un phénomène de localisation intervient, sa position peut varier en fonction des paramètres de zone cohésive.

L'étude paramétrique a permis de mettre en avant quelles propriétés phénoménologiques de l'interface peuvent être modifiées afin d'améliorer le comportement du composite. Ainsi, il convient de privilégier une augmentation du déplacement à rupture δ^f qui permet d'obtenir un adoucissement stable avec un endommagement diffus. En effet, si une augmentation de la contrainte critique T^c permet de retarder l'initiation de l'endommagement, les localisations qu'elle induit pourraient être responsables d'une ruine précoce du matériau conduisant alors à un déplacement macroscopique à rupture très faible.

Enfin, dans le cas de microstructures contenant des particules irrégulières, les tendances des comportements simulés sont tout à fait similaires aux cas des inclusions sphériques. Une étude comparative des comportements met alors en évidence un effet du second ordre de la géométrie des particules sur le comportement endommagé, dans la même idée que l'impact identifié aux petites déformations. Cependant, à l'inverse de cette dernière configuration, c'est les particules irrégulières qui présentent une rigidité sensiblement supérieure.

Chapitre 4

Vers le comportement réel des propergols solides

Ce quatrième chapitre propose de confronter le comportement des propergols aux simulations numériques, afin de mettre en valeur la compréhension de l'endommagement auquel les analyses et les développements précédents donnent accès. Des matériaux proches des compositions industrielles seront donc élaborés et leur comportement sera analysé à la lumière des simulations numériques. Cette étude sera particulièrement focalisée sur l'endommagement de ces propergols et diverses méthodes de caractérisation seront mises en œuvre. Elles permettront alors une identification qualitative des propriétés des interfaces les plus classiques des propergols, en suivant la phénoménologie implémentée dans les simulations numériques. Ce chapitre se conclura par la mise en application de ces démarches de caractérisation dans le cadre d'un projet d'optimisation d'interface ainsi que par une confrontation des simulations numériques à des comportements extraits de la littérature.

« La connaissance s'acquiert par l'expérience, tout le reste n'est que de l'information. »

Albert Einstein (1879–1955)

Sommaire

4.1	Présentation des proergols d'étude	109
4.1.1	Contexte et objectif de la campagne	109
4.1.2	Comportements mécaniques des phases	110
4.1.3	Morphologie des compositions	111
4.2	Comportements mécaniques macroscopiques	111
4.2.1	Comportements linéaires	114
4.2.2	Comportements en grandes déformations et mesure de dilatations	116
4.2.3	Énergie d'endommagement, essais cycliques	119
4.3	Analyse de l'endommagement local	123
4.3.1	Mode opératoire	123
4.3.2	Observations MEB et propriétés d'interface	123
4.3.3	Bilan des caractérisations	131
4.4	Études complémentaires	133
4.4.1	Mise en œuvre de la démarche au service de l'amélioration des propriétés d'interface	133
4.4.2	Confrontation à la littérature	134
4.5	Synthèse	136

4.1 Présentation des propergols d'étude

Les liens entre le comportement macroscopique endommagé et les décohésions à l'échelle locale, mis en évidence grâce aux simulations numériques, donnent accès à une meilleure compréhension de l'endommagement des composites fortement chargés. Aussi, ces corrélations vont à présent être confrontées à la complexité des propergols. Alors que les matériaux composites simplifiés (méthacrylate et particules de verre) avaient été préparés afin de se conformer au plus près des configurations simulées, les matériaux qui vont être étudiés dans ce chapitre ont suivi un procédé standard d'élaboration des propergols.

Afin de s'approcher des compositions industrielles, sans pour autant cumuler toutes les difficultés des propergols, des formulations légèrement simplifiées ont été élaborées au CRB (ArianeGroup) à partir de liants industriels et de charges énergétiques de référence. La spécificité de ces formulations provient de la granulométrie des inclusions qui a été réduite par tamisage. Ces matériaux atypiques seront dénommés quasi-propergols car aucun n'est utilisé dans des chargements opérationnels. Ils vont pouvoir servir de base pour proposer une étude comparative de façon à mettre en évidence et d'expliquer certaines spécificités du comportement mécanique et de l'endommagement des principales familles de propergols.

4.1.1 Contexte et objectif de la campagne

Quatre compositions ont été élaborées pour représenter les variétés de propergols les plus communes. Elles sont constituées de liants inertes et nitrés contenant soit des charges traditionnelles (perchlorate d'ammonium, PA) soit de nouvelle génération (hexogène, RDX) de dimensions similaires entre 275 et 300 μm . Afin d'élargir la portée de l'étude, une des configurations testées a intégré de fines particules d'aluminium (diamètre $\approx 10 \mu\text{m}$, $f_{\text{vol}} = 13\%$), car ces dernières sont très communément ajoutées dans les propergols. Les différentes combinaisons proposées sont listées dans le Tableau 4.1. Il convient de noter que le couple liant nitré/perchlorate d'ammonium n'a pu être considéré suite à des problèmes de compatibilité et donc de sécurité. En plus des composants principaux répertoriés dans le Tableau 4.1, les additifs intégrés de manière standard dans chaque famille de propergols ont également été ajoutés. Cependant, ils ne représentent qu'une faible fraction volumique du mélange ($< 1\%$).

De même que pour les composites modèles, bien que les procédés de fabrication soient radicalement différents, le contrôle précis de la fraction volumique dans les propergols reste complexe. La quantité de charges introduite doit être ajustée pour contrôler la viscosité du mélange et ainsi obtenir un équilibre entre une fluidité suffisante et un maintien en suspension des charges. Cette proportion doit permettre d'empêcher aussi bien la présence de bulles d'air lors de la coulée du bloc, qu'une décantation des particules qui entraînerait alors une hétérogénéité de fraction volumique. Cette contrainte a conduit à des variabilités significatives de fractions volumiques de charges énergétiques entre 53% et 59%. Elles ont été reportées dans le Tableau 4.1.

La démarche développée dans ce chapitre propose d'abord de suivre la caractérisation de l'endommagement de ces quasi-propergols de la même manière qu'elle est classiquement réalisée dans le cadre industriel, tout en relevant les points sur lesquels les simulations numériques permettent d'expliquer les comportements ou de détecter des phénomènes particuliers. Par ailleurs, cette procédure sera complétée en proposant des caractérisations moins conventionnelles, bien qu'accessibles dans le cadre industriel. Elles donneront accès à des informations plus exhaustives sur les décohésions, toujours au regard des simulations numériques développées plus tôt.

Enfin, il convient de préciser que ces quasi-propergols ont été conditionnés plus de quinze

Quasi-propergol	Liant	Charges	f_{vol} (%)	Aluminium (f_{vol})
Compo. 1 —	Inerte	Perchlorate ammonium	58	13%
Compo. 2 —	Inerte	RDX (nitramine)	54	\emptyset
Compo. 3 - - -	Nitré	RDX (nitramine)	59	\emptyset
Compo. 4 —	Inerte	Perchlorate ammonium	53	\emptyset

TABLE 4.1 : Détail des compositions de quasi-propergols avec les couleurs et types de lignes associés à la représentation de leurs propriétés.

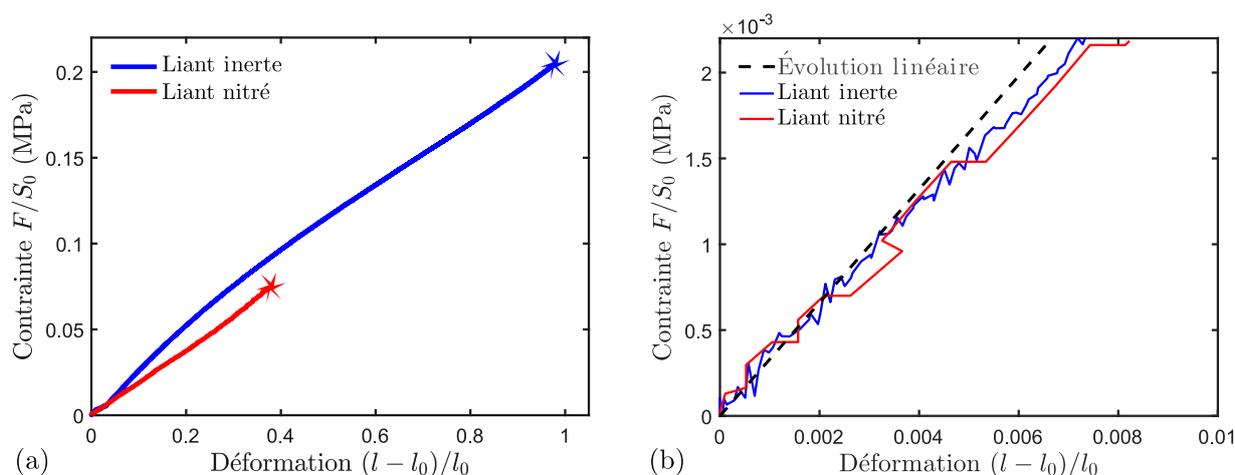


FIGURE 4.1 : (a) Comportements en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min des liants de base des quasi-propergols avec (b) un agrandissement sur la réponse aux petites déformations.

jours dans une atmosphère avec une hygrométrie inférieure à 10% HR (à 20°C) afin de négliger tout impact de ce paramètre sur leur comportement.

4.1.2 Comportements mécaniques des phases

Le comportement mécanique en traction uniaxiale jusqu'à rupture des deux liants a été caractérisé à 20°C pour une vitesse de traverse constante de 5mm/min. Il est reporté sur la Figure 4.1 avec un zoom sur la réponse aux petites déformations. Cette caractérisation n'est pas optimisée pour cette gamme de sollicitations parce que la déformation a été extraite du déplacement de traverse et non d'une mesure locale par vidéoextensométrie. Cependant, un comportement linéaire peut être identifié avec un module de Young commun de 0.33 MPa. On constate également, que pour des déformations plus importantes, le comportement des liants est relativement similaire, à la déformation à rupture près. Cette dernière intervient pour des niveaux de traction plus de deux fois supérieurs dans le cas d'un liant inerte (100% contre 40% de déformation). Ces liants élastomères peuvent être considérés comme incompressibles : les simulations ont démontré un impact modéré ($< 15\%$) du module de compressibilité de la matrice sur les propriétés élastiques du composite, pour peu que celles-ci restent quasi-incompressibles.

En considérant les propriétés mécaniques standard des charges pyrotechniques, présentées dans le chapitre d'introduction, avec un module de Young de 19.5 GPa pour le PA et de 16 GPa pour le RDX, les compositions présentent un rapport du comportement des phases supérieures à 10^4 en adéquation avec les configurations simulées précédemment.

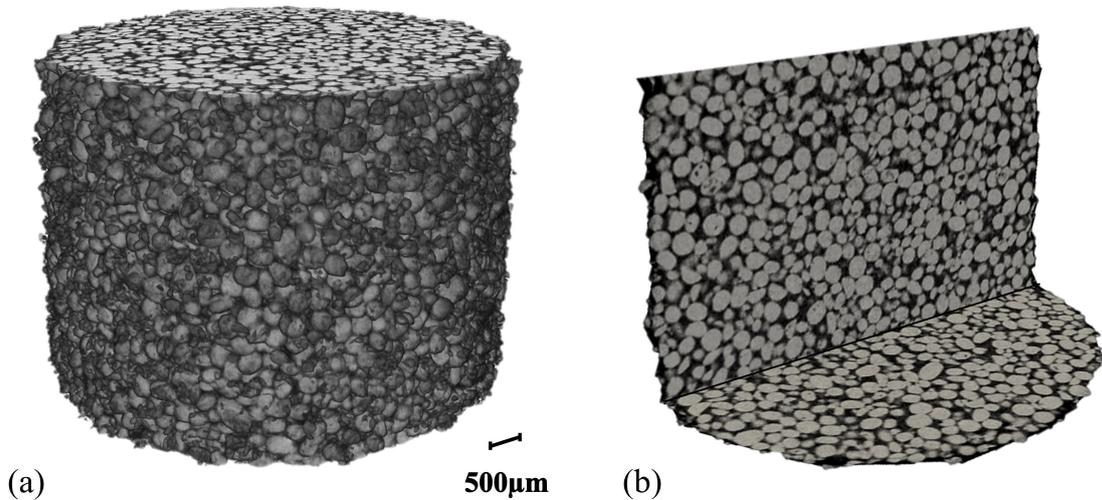


FIGURE 4.2 : Tomographie de la dernière composition à base de liant inerte et contenant du perchlorate d'ammonium (a) en surface et (b) à cœur (coupes). Observations obtenues sur le microtomographe *Skyscan 1072* du CRB (ArianeGroup), avec une résolution de $6.7 \mu\text{m}/\text{vx}$ et des paramètres de source de 65 kV et $152 \mu\text{A}$.

4.1.3 Morphologie des compositions

La morphologie des compositions de quasi-propergols peut être analysée par tomographie. Cette approche est particulièrement intéressante dans le cas des formulations à liant inerte pour lequel un contraste satisfaisant est obtenu. La Figure 4.2 montre une observation en surface et à cœur (coupes) de la dernière composition. Les deux phases sont parfaitement identifiables et le caractère sphérique du perchlorate d'ammonium est clairement mis en évidence. À l'inverse, les observations de la deuxième composition (Figure 4.3) soulignent l'irrégularité des charges de RDX, bien que la résolution limitée de la tomographie ($6.7 \mu\text{m}/\text{vx}$) lisse leur caractère facetté (images MEB visibles sur la Figure 1.6).

Ces observations confirment que les matériaux considérés se situent entre les propergols industriels et les composites modèles (Figure 1.7) qui ont servi de référence pour les simulations numériques. Contrairement à ces derniers la forme et la nature des particules est différente, induisant vraisemblablement une modification des propriétés d'interface.

L'étude de charges énergétiques identiques, avec une forme différente, aurait pu être envisagée puisqu'il existe des procédés permettant de modifier leur géométrie (Nouguez et Eck, 2016). Cependant, ces solutions restent très onéreuses et sont donc rarement intégrées dans les compositions classiques. Cette approche n'a donc pas été explorée plus en détails. L'objectif est d'abord de se confronter aux propergols les plus communs.

4.2 Comportements mécaniques macroscopiques

À l'issue du processus de fabrication, les blocs de quasi-propergols ont été tranchés et des éprouvettes haltères ayant une longueur utile de 80 mm ont été découpées à l'emporte-pièce. De même que pour la caractérisation des composites modèles, les éprouvettes ont été collées (Loctite PU15) sur des mors en aluminium (Figure 2.12).

Suivant le processus standard de caractérisation de l'endommagement des propergols (NFT 70-331), les quatre compositions ont été sollicitées en traction uniaxiale à 20°C , pour une vitesse

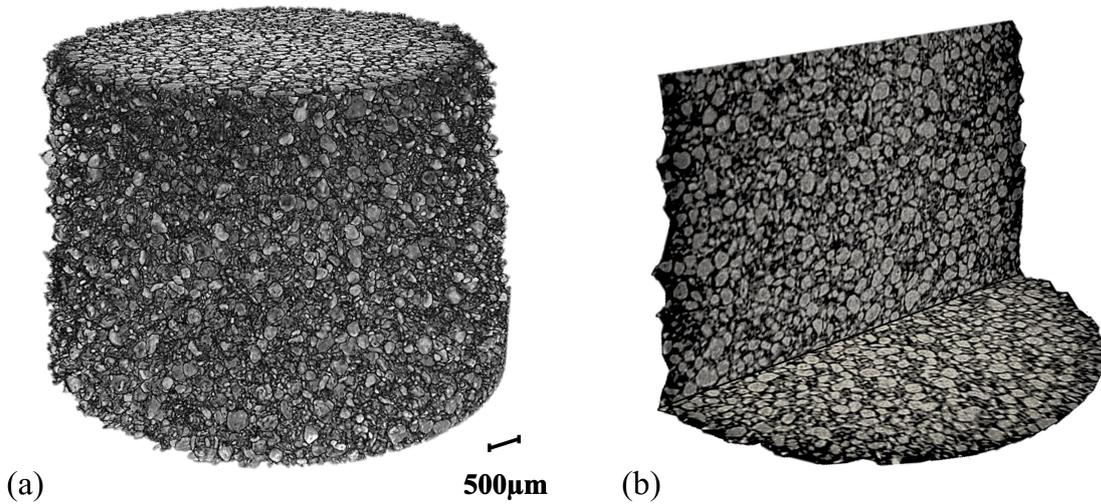


FIGURE 4.3 : Tomographie de la deuxième composition à base de liant inerte et contenant du RDX (a) en surface et (b) à cœur (coupes). Observations obtenues sur le microtomographe *Skyscan 1072* du CRB (ArianeGroup), avec une résolution de $6.7 \mu\text{m}/\text{vx}$ et des paramètres de source de 46 kV et $219 \mu\text{A}$.

de traverse constante de $5\text{mm}/\text{min}$ en mesurant leur variation de volume avec un dilatomètre Farris (Farris, 1964). Cette technique, schématisée sur la Figure 4.4, consiste à placer un échantillon de propergol dans une chambre étanche puis à le solliciter en traction tout en mesurant avec précision l'évolution de la pression interne. Une étape préalable de calibration offre la possibilité de relier l'évolution de cette pression avec la variation de volume de la chambre. Elle permet ainsi de mesurer continûment la dilatation de l'éprouvette pendant la traction. Par essence, ce système ne peut donc mesurer que l'apparition de cavités internes. Toute les fissures débouchantes n'impliquent pas de variation de pression, puisque l'air de la chambre s'engouffre dedans. Un exemple de caractérisation, pour la première composition, est présenté sur la Figure 4.4(b). Le comportement incompressible est clairement identifiable jusqu'à 5% de déformation. Une augmentation progressive du volume de l'échantillon est visible au fur et à mesure que l'endommagement se développe (adoucissement de la réponse en contrainte-déformation).

La réponse en contrainte-déformation est reportée sur la Figure 4.5 pour deux éprouvettes de chaque formulation et une répétabilité correcte est observée. Il convient de souligner que, pour certaines compositions, des échantillons ont présentés des comportements radicalement différents (non représentés). Ces réponses ont pu être éliminées suite à la détection, *post-mortem*, de cavités de plusieurs millimètres de diamètre au sein du matériau. Ces défauts proviennent du fait que la fabrication de ces propergols non conventionnels n'a pas été optimisée, comme c'est le cas pour les compositions industrielles, induisant parfois soit des hétérogénéités, soit des défauts dans le matériau. Ce constat souligne la complexité de l'élaboration d'un propergol parfaitement homogène.

Alors que les propriétés mécaniques des phases constitutives sont proches, au déplacement à rupture des liants près, on constate que les comportements des quatre types de propergols sont remarquablement différents aussi bien dans leur partie initiale linéaire que lorsqu'ils s'adoucissent du fait de leurs endommagements respectifs (Figure 4.5). Ainsi, dans l'esprit de la démarche de simulation numérique développée précédemment, on se propose d'étudier séparément les réponses linéaires et le comportement en grandes déformations de chacun de ces matériaux.

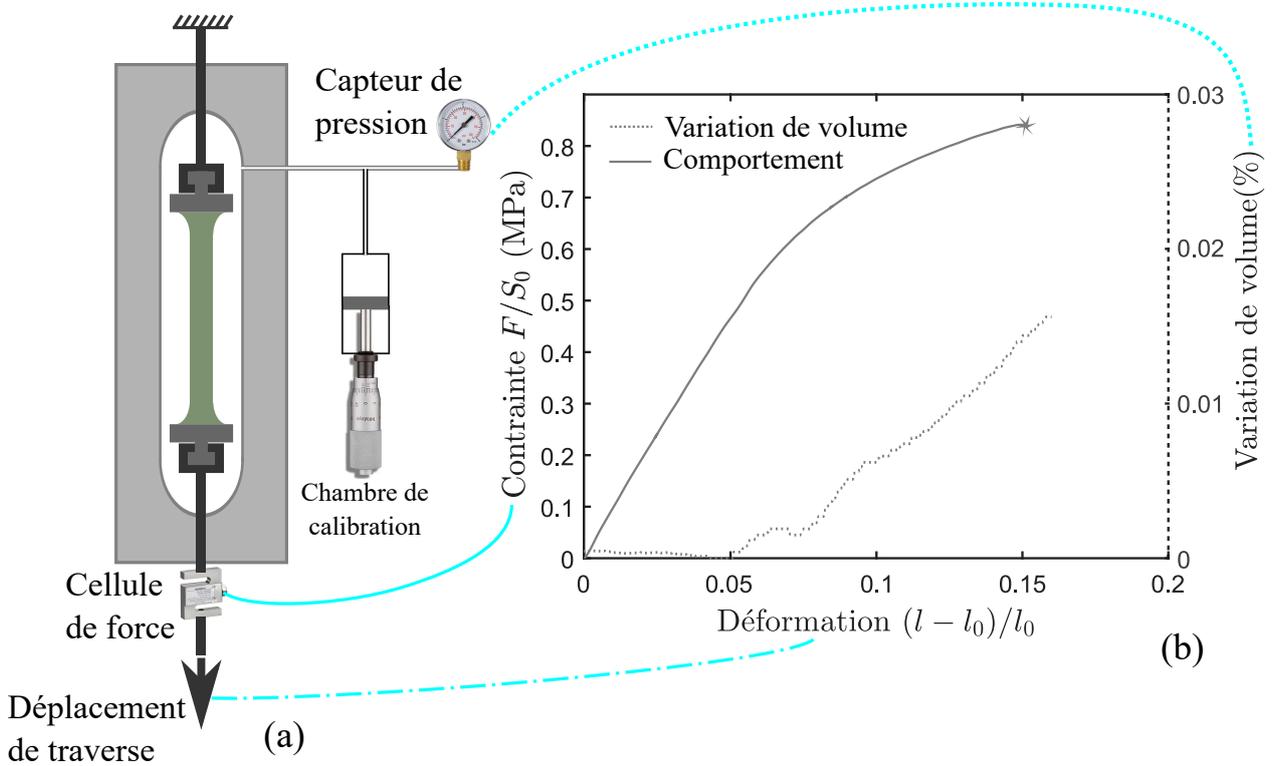


FIGURE 4.4 : (a) Principe de mesure de la variation de volume par dilatométrie à gaz et (b) exemple de caractérisation obtenue pour la première composition.

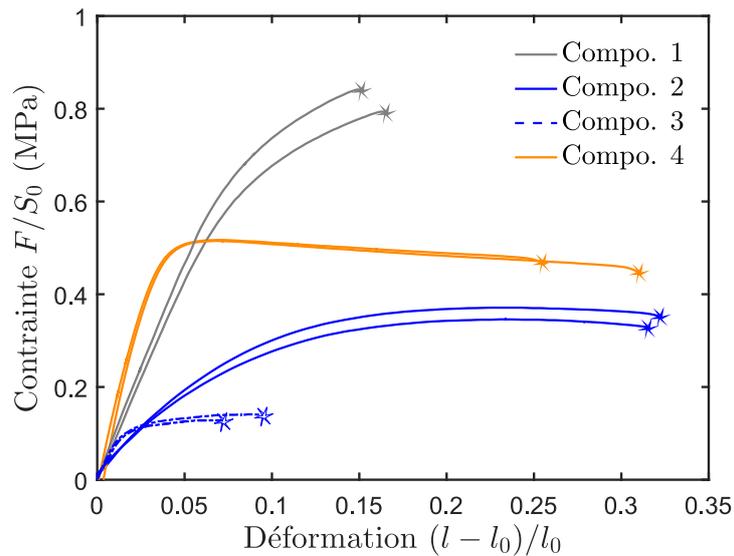


FIGURE 4.5 : Comportements en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min de deux échantillons de chacun des types de quasi-propergol dont les caractéristiques sont listées dans le Tableau 4.1.

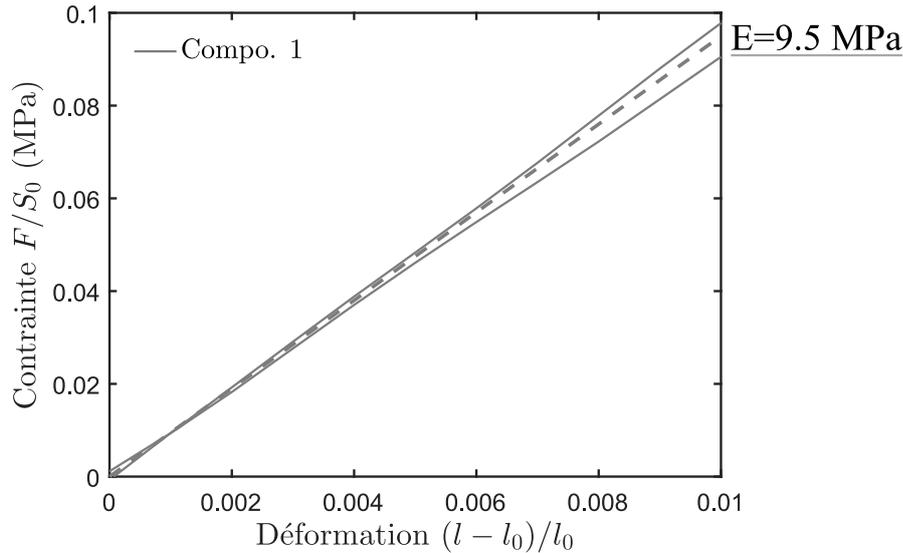


FIGURE 4.6 : Comportements en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min en petites déformations de la première composition, avec le module de Young correspondant.

4.2.1 Comportements linéaires

Dans le cadre des petites déformations, l'analyse du comportement des quasi-propergols peut s'appuyer sur le modèle autocohérent généralisé, dont les estimations ont présenté une cohérence remarquable avec les simulations numériques. La méthode de caractérisation du comportement mécanique avec mesure de la dilatation est particulièrement dédiée à l'étude du comportement endommagé en grande déformation, plutôt qu'à l'étude du comportement élastique. En effet, le dispositif ne permet pas de suivre la déformation par vidéoextensométrie, ainsi seul le déplacement de traverse est utilisé pour estimer les déformations (Figure 4.4(a)). Bien que la caractérisation soit moins rigoureuse que dans le cas des composites modèles, où une mesure locale de la déformation avait été enregistrée, une étude comparative de la réponse linéaire des quasi-propergols reste tout à fait envisageable, d'autant plus que des comportements radicalement différents sont obtenus. On cherche alors à analyser la cohérence des comportements expérimentaux, sans se focaliser exclusivement sur une confrontation quantitative.

Le comportement linéaire de la première composition est reporté sur la Figure 4.6 avec le module de Young correspondant. Pour ce quasi-propergol, l'introduction de 13% de particules d'aluminium entraîne une rigidification du liant qui entoure les charges. Néanmoins, la caractérisation expérimentale, en traction uniaxiale, de cette matrice renforcée n'a pas pu être mise en œuvre. L'élaboration de ce matériau peut se révéler très complexe du fait de la densité de l'aluminium qui peut entraîner une décantation des particules, empêchant dès lors l'obtention d'une matrice avec la faible fraction volumique recherchée ($f_{\text{vol}}=13\%$). Cependant, un nouveau module de Young de 0.57 MPa peut être estimé analytiquement avec le modèle autocohérent généralisé sur la base des propriétés élastiques standard de l'aluminium (module de Young de 69 GPa et coefficient de Poisson de 0.346 (Ashby et Jones, 1981)). Le modèle analytique évalue alors un module de Young du quatrième composite de 9.77 MPa, tout à fait cohérent avec le module de 9.5 MPa obtenu expérimentalement (Figure 4.6).

Par la suite, la Figure 4.7 reprend la réponse linéaire des compositions deux et trois mettant en évidence une rigidité sensiblement différente (module de Young de 4.5 MPa et 9.0 MPa respectivement). Si cet écart n'est pas justifié par le comportement des liants (Figure 4.1(b)), il

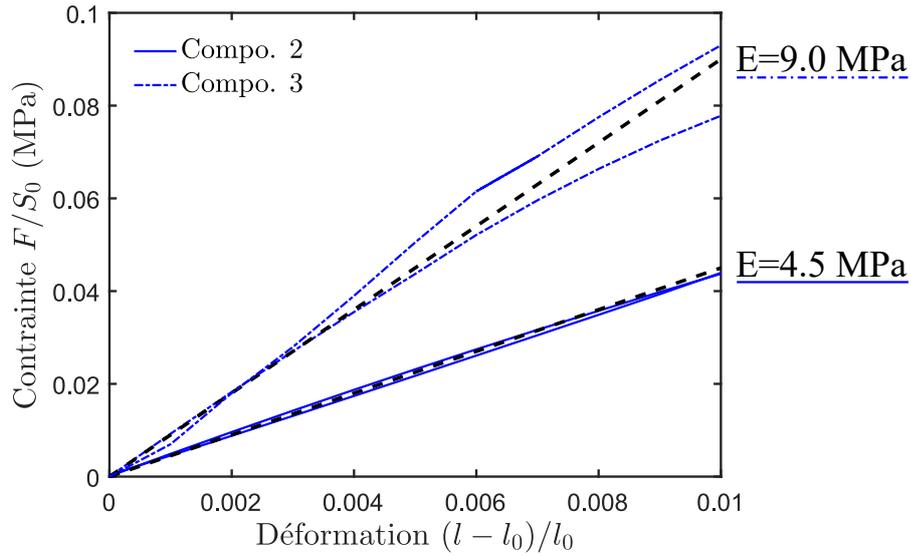


FIGURE 4.7 : Comportements en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min en petites déformations des compositions deux et trois contenant des charges de RDX, avec les modules de Young correspondants.

pourrait, au moins en partie, provenir de la fabrication des matériaux qui a conduit des fractions volumiques de charges différentes (53% et 59%, Tableau 4.1). Le modèle autocohérent généralisé permet d'étudier cette hypothèse en estimant la rigidification induite par la quantité plus importante de charges dans la troisième composition. Avec les propriétés élastiques proposées pour les phases dans la section précédente, des modules de Young de 3.7 MPa et 6.3 MPa sont respectivement attendues pour les compositions deux et trois, représentant un facteur de rigidification de 1.7. Si le rapport des modules évalués expérimentalement est encore supérieur (2.0), il semble que la différence de fraction volumique en charges soit bien la principale source de l'écart des raideurs. L'erreur non négligeable des estimations du modèle autocohérent généralisé ($\approx 30\%$) pourrait être due soit à une imprécision trop importante de la mesure du comportement de la matrice soit à la présence d'interphases d'épaisseur différentes et pour lesquelles [Spring et Paulino \(2015\)](#) ou [Toulemonde \(2016\)](#) ont démontré un effet sensible, en particulier en cas de percolation.

Enfin, le comportement linéaire de toutes les compositions à base de liant inerte est reporté sur la Figure 4.8. La dernière composition présente une rigidité largement plus importante que la deuxième (facteur 4.1) alors que seul la forme des inclusions a changé. En effet, suivant le cadre défini pour les simulations numériques aux petites déformations, l'endommagement n'ayant pas débuté, la différence de nature des interfaces ne devrait pas impacter le comportement du composite. Les mesures de dilatation présentées sur la Figure 4.10, qui seront détaillées par la suite, confirment qu'aucune variation de volume (due aux décohésions) n'intervient avant 4% de déformation. L'écart de comportement est donc tout à fait en désaccord avec l'impact du second ordre de la forme des charges qui a été identifié dans les simulations numériques, en particulier aux petites déformations. Le modèle autocohérent généralisé donne, pour cette dernière composition, une estimation de 3.45 MPa pour le module de Young, valeur plus de cinq fois inférieure à sa caractérisation expérimentale. Contrairement à l'analyse précédente, la fraction volumique légèrement plus faible de la première composition ne peut donc expliquer les différences, d'autant plus que c'est la composition avec la plus forte fraction volumique qui est la plus souple. Enfin, si le module de Young de la première composition (9.5 MPa), avec un liant

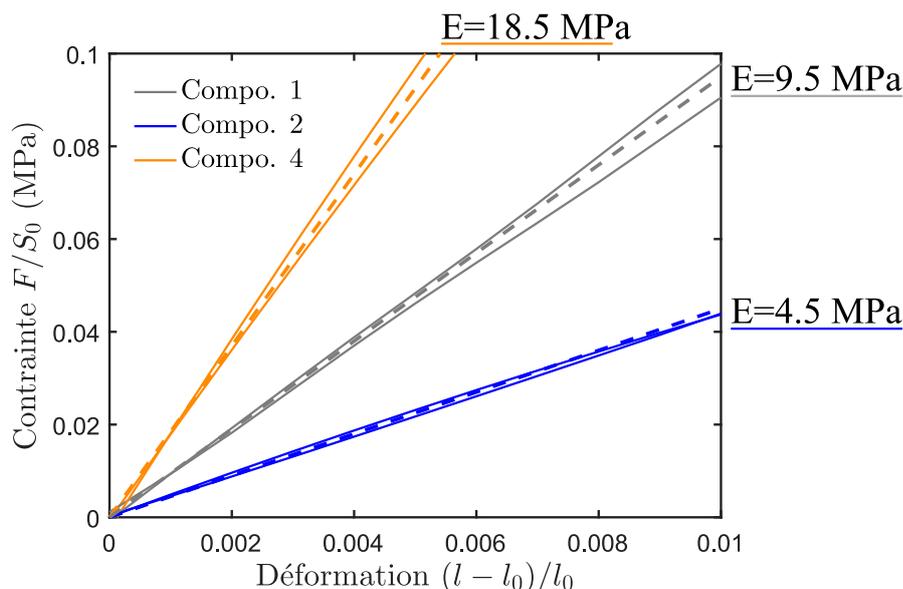


FIGURE 4.8 : Comportements en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min pour les premiers niveaux de sollicitation des compositions une, deux et quatre toutes les trois à base de liant inerte avec les modules de Young correspondants.

plus rigide, est cohérent en comparaison avec le deuxième quasi-propergol (4.5 MPa), il reste très inférieur à celui de cette dernière composition (facteur 1.95).

Face à ces incohérences du comportement élastique de la dernière composition, des éléments d'explication peuvent être apportés par les simulations numériques. En effet, des rigidifications de cette ampleur semblent se rapprocher des comportements obtenus avec les microstructures ayant une pression divergente (Figure 2.25). Ainsi, au-delà du comportement de la matrice, un phénomène de blocage morphologique pourrait affecter la réponse de ce matériau, justifiant le module de Young très important obtenu expérimentalement. Cette composition est donc vraisemblablement marquée par un phénomène de *clustering*.

Par ailleurs, cette augmentation de raideur est telle qu'elle pourrait, en plus de cet effet morphologique, être due à des mécanismes qui n'ont pas été simulés et plus spécifiquement à la présence d'interphases. Ce phénomène, qui a été évoqué plus tôt, pourrait effectivement induire un effet de la nature des interfaces sur le comportement, alors même que l'endommagement n'a pas débuté, en particulier en cas de percolation des interphases. Numériquement, ce phénomène pourrait être simulé soit grâce à la raideur initiale K des zones cohésives, alors qu'une valeur permettant d'annihiler son influence était initialement recherchée, soit en simulant explicitement les zones raidies autour des particules. Cependant, si l'existence d'interphases percolantes a bien été démontrée par analyses AFM dans le cas d'une interface liant inerte/PA (Figure 1.16(a)), aucune caractérisation de cette nature n'a été proposée pour analyser l'influence de l'ajout de l'aluminium ou étudier des interfaces liant inerte/RDX.

4.2.2 Comportements en grandes déformations et mesure de dilatations

Les différences des comportements sur la phase linéaire ne permettent pas de comparer l'endommagement des compositions aussi facilement que pour les simulations numériques. Cependant, ces analyses ont démontré un impact du premier ordre des paramètres de zone cohésive. Il reste donc envisageable, à partir de la réponse des quasi-propergols, d'identifier des caractéris-

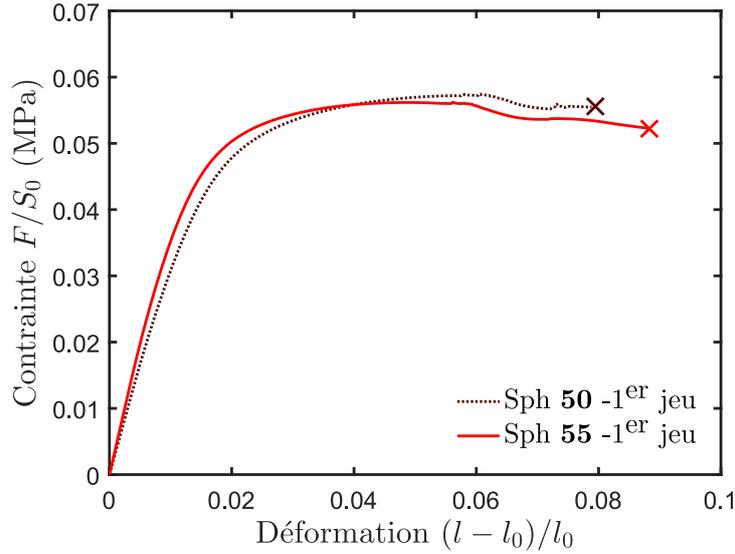


FIGURE 4.9 : Simulations numériques de la réponse en contrainte-déformation de la microstructure de référence contenant une fraction volumique de 55% de sphères et une autre microstructure contenant une fraction volumique de 50% de sphères, toutes deux avec le jeu de paramètres de zone cohésive de référence.

tiques suggérées par les tendances de études paramétriques numériques qui mettent en évidence l'influence de chaque propriété d'adhésion.

L'analyse précédente, dans le cadre de l'élasticité linéaire, a tout de même démontré une influence importante de la fraction volumique de particules pour justifier les écarts de comportements de certaines compositions. L'examen de l'impact de cette propriété n'a pas été proposé précédemment. Une simulation avec zone cohésive sur une microstructure contenant 50% de fraction volumique de sphères est donc proposée sur la Figure 4.9 en comparaison avec des évolutions de référence obtenues dans le chapitre précédent ($f_{\text{vol}} = 55\%$). Comme évoqué dans la section précédente, la fraction volumique modifie sensiblement le comportement linéaire. En revanche, cette influence semble s'amenuiser avec le développement de l'endommagement (Figure 4.9). Ainsi, seul un effet modéré de la fraction volumique est attendu sur la gamme couverte par les quasi-propergols, avec une influence plus réduite encore que celle de la géométrie des charges (mise en évidence sur la Figure 3.20). Aussi, les différences de fraction volumique ne peuvent à elles seules expliquer les écarts de comportements observés, permettant de poser l'hypothèse selon laquelle la diversité des comportements provient essentiellement des propriétés d'interface.

On se propose alors d'approfondir la compréhension de l'endommagement en se reposant sur la phénoménologie des interfaces choisie pour les simulations (loi bilinéaire de la Figure 1.25). Cela permet ainsi d'obtenir des informations, au moins qualitatives, sur les différentes propriétés d'adhésion. Les réponses reportées par la suite ne prendront en compte que l'évolution d'une seule éprouvette par composition, du fait de la bonne répétabilité observée sur la Figure 4.5.

Comme évoqué plus tôt, l'approche standard d'analyse de l'endommagement repose sur une mesure de dilatation des éprouvettes pendant une traction uniaxiale. Cette méthode permet de détecter les prémices de l'endommagement et de suivre son évolution. La Figure 4.10 reporte ainsi les variations de volume enregistrées pour trois quasi-propergols. En effet, dans le cas de la troisième composition, la méthode ne mesure aucune dilatation, alors qu'un adoucissement est clairement identifiable sur la réponse de ce quasi-propergol. Ce phénomène peut d'une part être dû

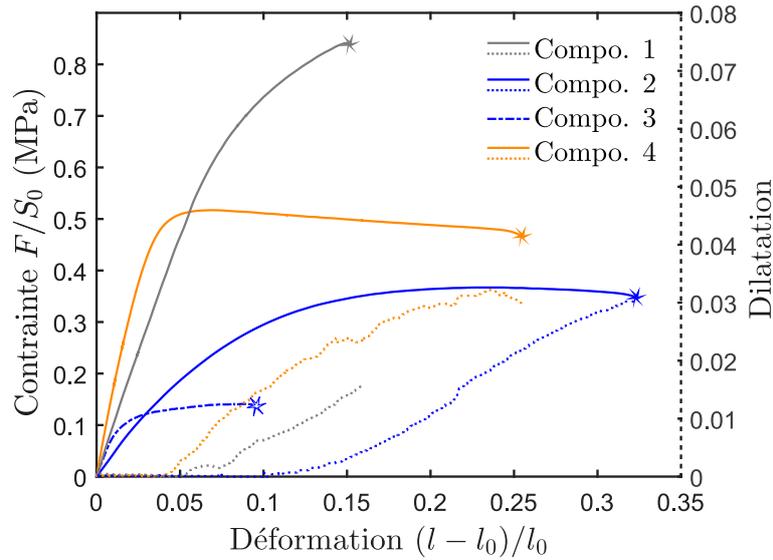


FIGURE 4.10 : Comportements en traction uniaxiale jusqu'à rupture à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min des quasi-propergols, mesurée au dilatomètre Farris. Dans le cas de la troisième composition, aucune variation de volume n'a été enregistrée.

au faible déplacement à rupture de ce matériau qui doit induire une dilatation réduite, difficile à mesurer. D'autre part, il est possible que la majeure partie de ses décohésions soient débouchantes expliquant l'incapacité du dilatomètre à suivre son endommagement. Dans le cas des autres compositions, le déplacement à partir duquel les décohésions induisent une variation de volume est accessible et correspond respectivement à la déformation à partir de laquelle l'adoucissement du comportement des compositions est observé. Par la suite, une évolution presque linéaire peut être identifiée avec des pentes similaires. On constate, néanmoins, que cette méthode ne fournit que peu d'informations sur la manière dont l'endommagement intervient à l'échelle des interfaces, alors que les simulations ont démontré que ces propriétés pilotent le comportement endommagé.

Cependant, en s'appuyant sur la réponse en contrainte-déformation des échantillons, en comparaison avec les comportements obtenus numériquement, les propriétés des interfaces peuvent être intuitées au moins qualitativement. La Figure 4.10 met alors en évidence la différence de comportements entre deux compositions pour lesquelles la nature et la forme des charges diffère (quasi-propergols deux et quatre). Contrairement aux simulations numériques pour lesquelles la forme des charges n'a induit qu'un impact modéré (<10%), la contrainte maximum dans le cas des particules irrégulières (RDX) est 33% inférieure au cas des charges sphériques (PA). Cependant, les simulations suggèrent surtout que la différence de nature des charges, donc d'interface, peut expliquer la différence de comportements. Ainsi, au-delà de la géométrie des charges, l'interface liant inerte/PA semble plus performante, en particulier au niveau de la contrainte critique T^c qui a été identifié comme pilotant la contrainte globale à partir de laquelle l'adoucissement s'initie (analyse paramétrique reporté sur la Figure 3.13). Cette observation comparative est cohérente avec la formulation dans la mesure où des agents d'adhésion liant/charge performants ont été introduits pour les matériaux contenant du perchlorate d'ammonium.

De même, dans le cas de particules identiques avec une matrice différente (compositions deux et trois, Figure 4.10), on enregistre une fois encore une réduction de 50% de la contrainte maximale bien que dans les deux cas aucun agent d'adhésion n'ait été introduit. La différence de liant semble ainsi impacter, elle aussi, de manière remarquable, la contrainte critique T^c

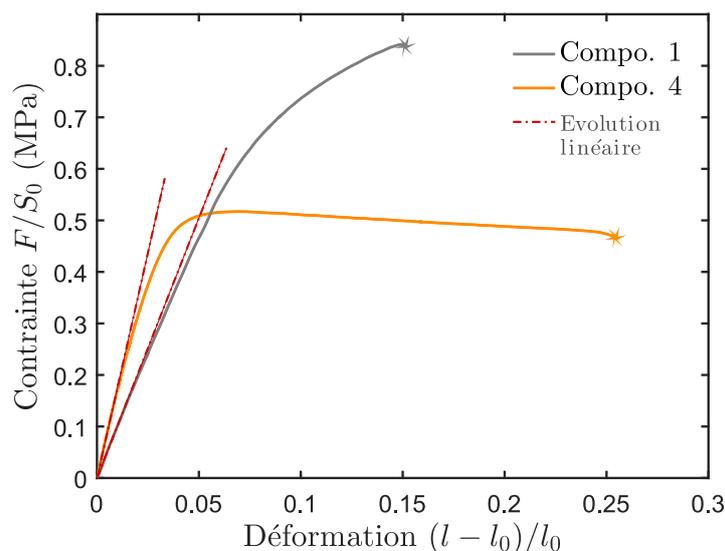


FIGURE 4.11 : Comportements jusqu'à rupture en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min de la première et la quatrième composition, toutes les deux à base de liant inerte et contenant du perchlorate d'ammonium.

des interfaces. Elle aboutit une initiation très précoce de l'endommagement dans la troisième composition (interface liant nitré/RDX).

Dans le cas de la matrice renforcée avec de l'aluminium (première composition) une augmentation de plus de 40% de la contrainte maximum est enregistrée par rapport à la première composition (Figure 4.11) alors même que les contraintes n'atteignent pas de plateau, contrairement aux trois autres quasi-propergols. La rigidité supérieure de la matrice semble expliquer en partie cette évolution, comme le montre le comportement obtenu par simulation numérique pour deux matrices de rigidité différentes et reproduit sur la Figure 4.12 (contrainte maximum 15% supérieure). L'adoucissement observé expérimentalement semble bien plus marqué que dans cette nouvelle simulation numérique. Vraisemblablement, ou les particules d'aluminium induisent une modification de l'adhésion ou bien l'endommagement de leurs interfaces entre en jeu. Par ailleurs, on note de manière remarquable, que pour les deux compositions de la Figure 4.11, la contrainte à partir de laquelle l'adoucissement s'initie semble similaire. La perte de raideur limitée de la première composition ne facilite pas l'identification précise de la fin de sa phase linéaire. Il semble donc que l'introduction de l'aluminium n'impacte que peu la contrainte critique T^c de l'interface mais affecte principalement le déplacement à rupture δ^f qui pilote l'évolution du comportement endommagé (analyse paramétrique reporté sur la Figure 3.14).

4.2.3 Énergie d'endommagement, essais cycliques

Si les simulations numériques permettent d'identifier les propriétés des interfaces à partir des essais de traction au dilatomètre Farris, ces analyses sont exclusivement qualitatives. Une démarche empirique développée au sein du CRB a été proposée par Heuillet (1992) et permet d'avoir accès à des informations plus quantitatives. Cette méthode, moins conventionnelle, elle reste accessible dans le cadre industriel et donne accès à une évaluation plus discriminante des propriétés d'adhésion sans recours aux simulations numériques. Cette approche a été reprise afin de conforter la cohérence des identifications proposées précédemment à partir des simulations numériques.

Pour évaluer cette énergie globale d'endommagement, Heuillet (1992) identifie les densités

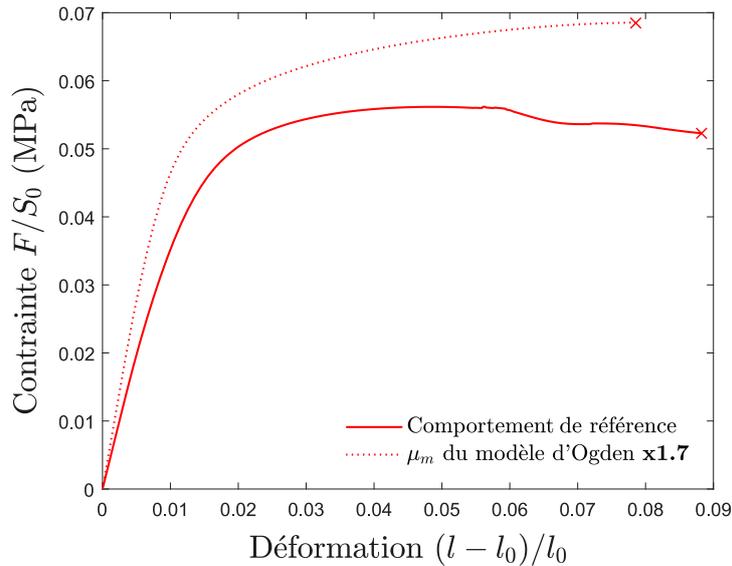


FIGURE 4.12 : Simulations numériques de la réponse en contrainte–déformation pour la microstructure de référence avec des sphères (jeu de paramètres de zone cohésive de référence) et avec une multiplication du module de cisaillement du modèle d’Ogden.

d’énergie (aire sous la courbe de contrainte–déformation) cumulées lors d’une sollicitation de tractions–déchargement. L’énergie mécanique totale fournie au système est en partie restituée sous forme d’énergie élastique lors de la décharge (courbes et aires représentées en vert). Le reste de l’énergie est dissipée d’une part du fait des phénomènes viscoélastiques et d’autre part du fait de l’endommagement du matériau (attribué alors exclusivement aux décohésions liant/charge). Pour distinguer ces deux phénomènes, Heuillet montre qu’il convient d’appliquer, après le retour à l’équilibre d’un échantillon déjà sollicité, une nouvelle traction (courbes et aires représentées en rouge). Par soustraction, le reste de la densité d’énergie dissipée est attribué à l’endommagement des interfaces (courbes et aires représentées en bleu).

Afin de mettre en œuvre plus concrètement cette estimation empirique des densités d’énergie, Heuillet a montré qu’il convenait d’appliquer plusieurs chargements mécaniques (Figure 4.13). Une première sollicitation cyclique (cycle primaire) permet de stabiliser le matériau, un comportement quasi-constant étant obtenu après environ cinq cycles. À l’issue de ces tractions–déchargement le matériau est laissé au repos plus de 24h. Cette durée a été identifiée comme largement suffisante pour assurer un retour à l’équilibre des propergols. Un unique cycle est alors appliqué, permettant *in fine* d’identifier sur la sollicitation primaire les différentes densités d’énergie (Figure 4.14(a)). Heuillet (1992) a démontré que le niveau de déformation de ce premier cyclage n’impactait pas les valeurs d’énergie obtenues à terme. Ainsi, une sollicitation correspondant à la moitié de la déformation à rupture a donc été sélectionnée. Par la suite, après un retour à l’équilibre, le même échantillon est soumis à des tractions–déchargement avec un incrément de déplacement à chaque cycle (cycles incrémentaux) et ce jusqu’à rupture. Une fois encore, l’effet négligeable du niveau de l’incrément a été validé par Heuillet (1992). Cette dernière sollicitation ne donnant accès qu’aux densités d’énergie élastique et dissipée (Figure 4.14(b)), l’impact des phénomènes viscoélastiques est évalué de manière indirecte. Des cycles incrémentaux sont appliqués à un nouvel échantillon et ce jusqu’au dernier cycle avant la rupture de l’éprouvette précédente. Enfin, une nouvelle traction jusqu’à rupture est appliquée après un retour à l’équilibre de la nouvelle éprouvette, donnant accès à une estimation de la densité d’énergie dû à la

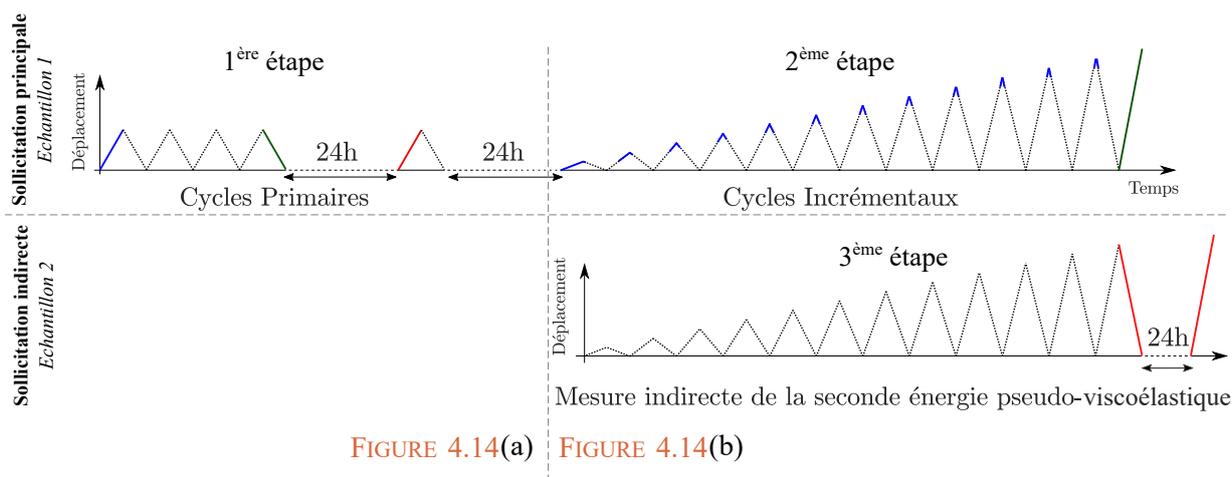


FIGURE 4.13 : Synopsis des chargements mécaniques appliqués aux compositions afin d’obtenir une évaluation de leur énergie d’endommagement suivant les trois étapes de la démarche d’Heuillet (1992). On y retrouve le **cycle primaire** pour lequel les trois densités d’énergie peuvent être identifiées puis, pour la même éprouvette, les **cycles incrémentaux** qui permettent d’identifier une densité d’énergie élastique et dissipée. Les densités d’énergies viscoélastiques et d’endommagement sont différenciées grâce à la **sollicitation supplémentaire indirecte**, c’est à dire appliquée à une nouvelle éprouvette, présentée sous le synopsis du chargement mécanique principal. Un exemple de comportements obtenus est reporté sur la Figure 4.14.

viscoélasticité (courbe en rouge sur la Figure 4.14(b)).

Le synopsis de ces chargements mécaniques est rappelé sur la Figure 4.13 avec sur la Figures 4.14 un exemple de réponses obtenues pour la première composition avec les répartitions d’énergie associées.

Une densité d’énergie d’endommagement macroscopique a ainsi été estimée en appliquant cette démarche à chacune des quatre compositions. Cette caractérisation est moins conventionnelle que la mesure de dilatation. Elle est complexe à mettre en œuvre du fait de la dispersion des propriétés au sein d’un même bloc de propergol. Néanmoins, elle permet d’obtenir des mesures quantitatives de densité d’énergie d’endommagement aboutissant à des valeurs largement différentes de 20, 5, 0.5 et 61 kJ/m³ respectivement pour les quatre compositions.

Par ailleurs, suivant une hypothèse simplificatrice proposée par Heuillet (1992), on peut considérer que la majorité de l’énergie d’endommagement provient des décohésions liant/charge. Ainsi ces valeurs peuvent être reliées au moins qualitativement à l’énergie d’adhésion. Or, du fait du tamisage, les dimensions des charges des quatre compositions sont similaires. Leurs surfaces peuvent être considérées comme presque identiques permettant d’envisager une comparaison des énergies d’adhésion. Cette hypothèse pourrait être remise en cause du fait des différences de fraction volumique, largement évoquée dans la section précédente. Cependant, dans le cas de particules sphériques, une fraction volumique de particules de 59% n’entraîne qu’une augmentation de la surface cohésive de 7.4% par rapport à une configuration avec 53% de particules. Les différences de densité d’énergie d’endommagement sont largement plus significatives (de 61 kJ/m³ à 0.5 kJ/m³). Une analyse comparative des énergies d’endommagement des quatre compositions reste donc envisageable, donnant accès à une comparaison relative des énergies d’adhésion, sans recours aux simulations numériques.

On peut alors déduire qualitativement que l’énergie est largement plus faible dans le cas des interfaces avec des charges de RDX, ce qui est cohérent avec l’absence d’agent d’adhésion

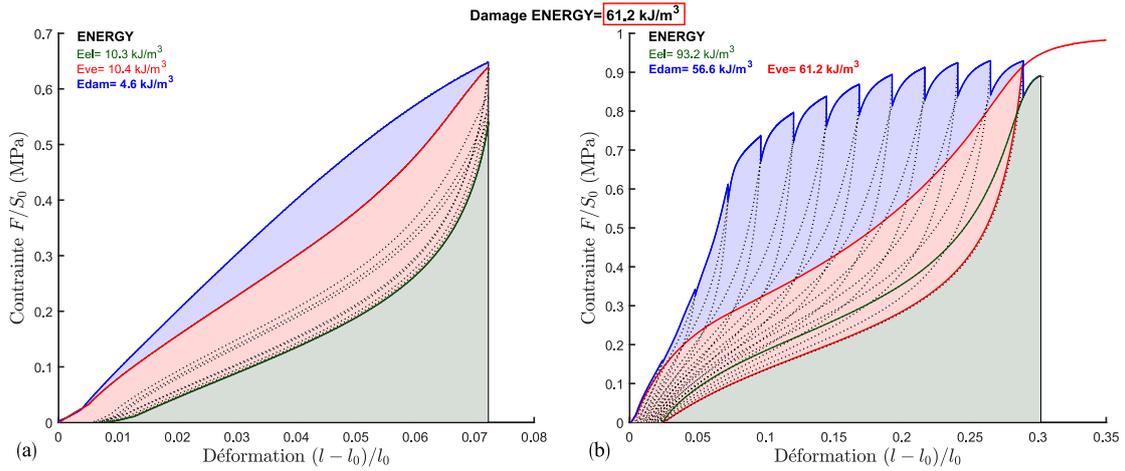


FIGURE 4.14 : Identification de la répartition des densités d'énergie lors des sollicitations mécaniques de la première composition ((a) sollicitation primaire, (b) sollicitation incrémentale avec l'énergie pseudo-viscoélastique identifiée indirectement). La densité associée à l'élasticité est repérée en vert, celle associée aux effets viscoélastiques en rouge et celle associée à l'endommagement en bleu.

performant pour ces charges et la faible contrainte critique T^c identifiée pour cette composition, par rapport à l'interface liant inerte/PA. De plus, l'interface liant nitré/RDX semble avoir une énergie d'adhésion très réduite par rapport à l'interface liant inerte/RDX. Ceci est en accord avec la différence de contrainte critique T^c caractérisée pour ces interfaces et confirme un effet notable de la matrice sur les propriétés d'interface. En outre, il semble que l'introduction de l'aluminium modifie largement l'énergie d'endommagement du matériau. Dans le cas de cette composition, il est fort probable que l'énergie d'endommagement inclut une part d'énergie consommée à la fois par décohérence liant inerte/aluminium et par des ruptures d'interface liant inerte/PA.

Cette démarche empirique et autosuffisante donne accès à des mesures quantitatives et différenciantes. De leur côté, les mesures de variation de volume étaient très proches et, lorsqu'elles étaient visibles, ne fournissaient que très peu d'informations pour identifier les propriétés locales. Avec cette caractérisation standard, ces dernières ont dû être extraites exclusivement des comportements macroscopiques et par comparaison avec les simulations numériques développées précédemment. L'approche d'Heuillet (1992), malgré des hypothèses fortes, offre alors un moyen supplémentaire d'identification des propriétés d'adhésion (L'énergie Γ). Ce dernier moyen semble d'ailleurs plus robuste que la comparaison entre les comportements expérimentaux et des études paramétriques des simulations numériques proposée précédemment, même s'il nécessite une caractérisation complexe et ne permet d'identifier qu'une unique propriété d'adhésion. Il convient de noter que l'ensemble des propriétés identifiées avec les deux approches présentent une cohérence remarquable et permet d'étayer la démarche d'identification basée sur la confrontation des tendances expérimentales avec les comportements simulés.

Cette analyse énergétique pose des hypothèses sur les phénomènes intervenant à l'échelle des particules. Elle peut avantageusement être complétée par des observations de l'endommagement à l'échelle locale, permettant alors d'appréhender plus précisément certaines propriétés phénoménologiques des interfaces.

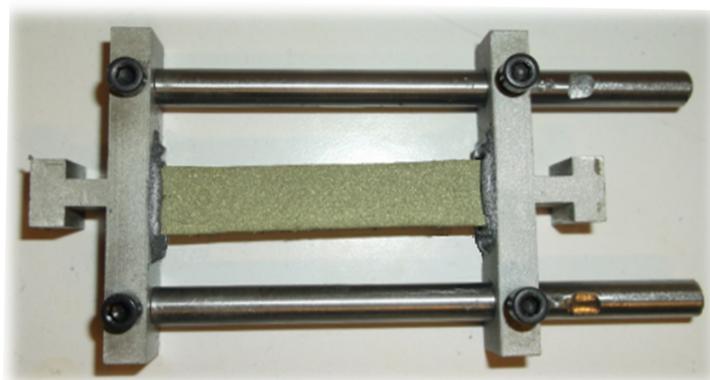


FIGURE 4.15 : Échantillon de quasi-propergol collé à des mors en aluminium élargis, compatibles avec une machine de traction et permettant un maintien en relaxation grâce aux deux tiges visibles de part et d'autre.

4.3 Analyse de l'endommagement local

4.3.1 Mode opératoire

La manipulation de matériaux pyrotechniques nécessite l'habilitation des équipements et donc la réalisation d'études poussées de sécurité. Ainsi, les observations à l'échelle de la microstructure ont été réalisées sur le MEB du CRB (ArianeGroup), habilité aux observations d'échantillons énergétiques. Pour analyser les champs d'endommagement à l'échelle des particules, des éprouvettes de quasi-propergol avec une longueur utile de 50 mm ont été découpées à l'emporte-pièce. Elles sont collées sur des mors en aluminium, similaires à ceux utilisés pour les études précédentes mais avec une largeur accrue permettant de fixer de part et d'autre deux tiges (Figure 4.15). Le montage peut être emboîté sur une machine de traction conventionnelle permettant d'appliquer proprement une traction uniaxiale puis d'assurer, par la suite, le maintien de la déformation pour réaliser les observations au MEB.

L'enjeu de ce montage est de permettre l'analyse d'un échantillon de taille raisonnable, pour assurer sa représentativité par rapport aux éprouvettes considérées pour la caractérisation mécanique, le tout étant compatible avec l'encombrement réduit de la chambre du MEB. Les observations sont obtenues à partir des électrons secondaires avec, avant sollicitation mécanique, une métallisation au platine pour améliorer la conductivité des surfaces. Les clichés, qui vont être présentés par la suite, ont été sélectionnés pour leur représentativité vis-à-vis des phénomènes qui ont pu être observés sur l'ensemble de la surface de chaque échantillon.

Les quatre quasi-propergols étudiés n'ont pas pu être sollicités au même niveau de déformation du fait de la différence importante de leur comportement (Figure 4.10). Les observations ont été réalisées aux deux tiers de la plus petite déformation à rupture enregistrée, correspondant à peu près au plateau de contrainte, sauf dans le cas de la quatrième composition pour laquelle ce type de comportement n'est jamais atteint. L'objectif est de solliciter suffisamment le matériau pour visualiser l'endommagement, tout en limitant les risques de ruine pendant l'observation.

4.3.2 Observations MEB et propriétés d'interface

La Figure 4.16 permet de visualiser la surface des quasi-propergols avant sollicitation. La forme quasiment sphérique des particules de perchlorate d'ammonium est clairement visible sur les clichés (a) et (d), sans endommagement en surface. Il semble que l'opération de tranchage ait

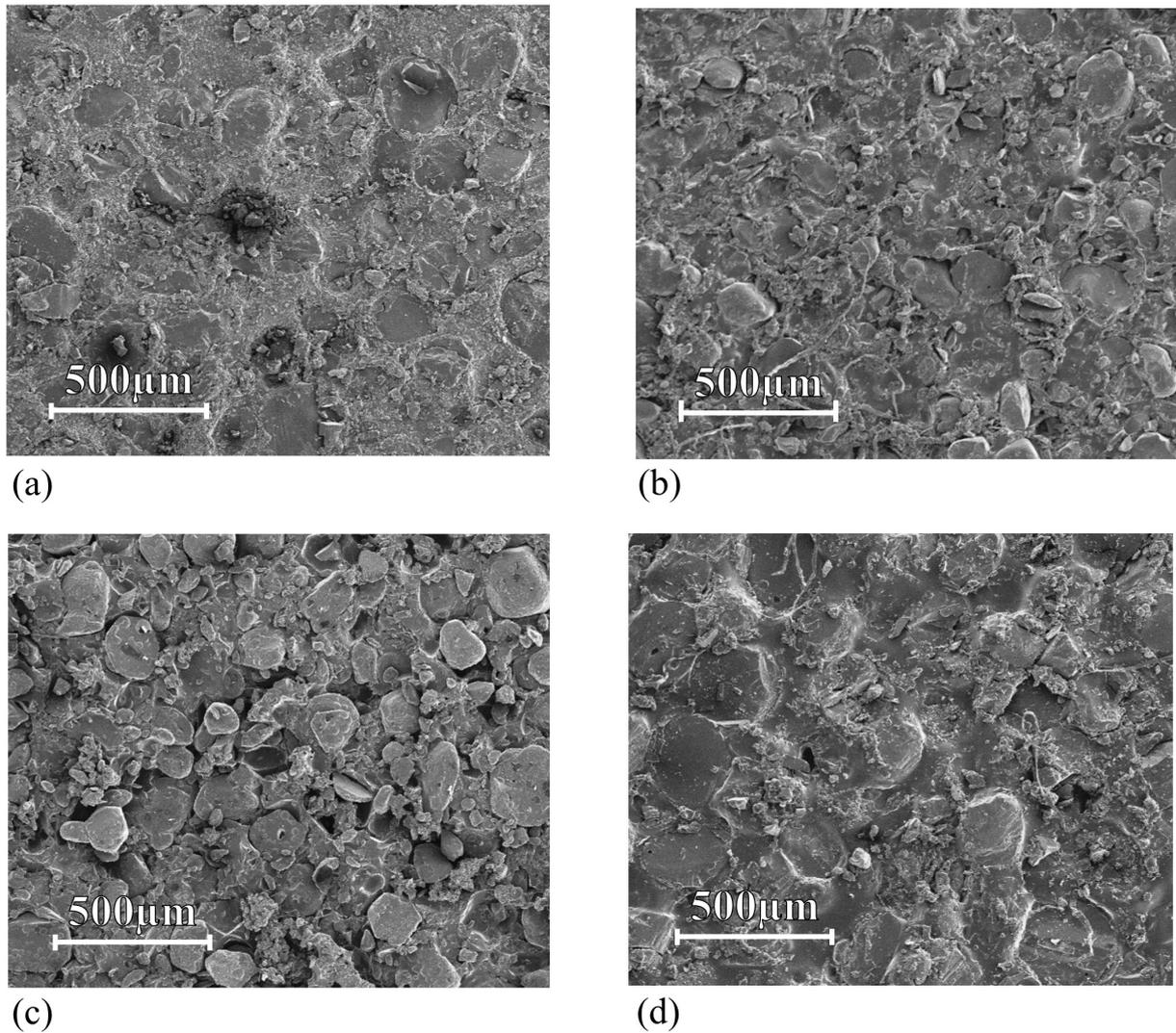


FIGURE 4.16 : Observations MEB des quatre compositions de quasi-propergols respectivement de (a) à (d) avant chargement mécanique. Images obtenues sur le MEB *Zeiss JSM-6510* du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 8 kV.

permis une découpe propre, aussi bien du liant que des charges. Dans le cas de la deuxième composition (Figure 4.16(b)), on peut noter la présence de quelques décohésions, bien que la plupart des particules aient été nettement découpées. En revanche, l'observation de la troisième composition (Figure 4.16(c)) révèle un endommagement préexistant bien plus important. Il semble que l'opération de tranchage ait plutôt conduit à un arrachement des particules qu'à leur découpe. Ce constat conforte les très faibles propriétés d'adhésion qui ont été déduites des précédentes caractérisations de ce matériau. Par ailleurs, il est probable que cet état de surface induise une connexion précoce d'un grand nombre de décohésions avec l'extérieur, expliquant au moins en partie l'absence de variation de volume mesurée au dilatomètre Farris pour cette composition. Bien que cet état de surface puisse perturber les futures analyses de l'endommagement, on note tout de même la présence de nombreuses interfaces intactes, en particulier pour les particules les plus en profondeur.

Dans le cas de la première composition, le comportement d'un échantillon avec une déformation de 11% est affiché sur la Figure 4.17. On constate d'abord que le matériau ne présente pas de localisation. Ceci qui est en accord avec les champ d'endommagement obtenus par simulations numériques lorsque le comportement mécanique n'a pas atteint un plateau (Figures 3.8(a) et 3.9(b)). Cette cohérence est renforcée par l'observation de nombreuses fibrilles dans toutes les décohésions qui peuvent être observées. Elles démontrent qu'aucun rupture d'interface n'est complète. En effet, malgré l'ouverture, un lien persiste entre les charges et la matrice. Ce type de lien est tout à fait cohérent avec un déplacement à rupture de l'interface δ^f grand.

Une observation fine permet de détecter la présence des particules d'aluminium, visibles sous forme de paillettes, dans ces ligaments. Elle leur octroie alors une raideur K_{alu} , plus importante que s'ils étaient uniquement composés de matrice (K_{simple}). Ce constat permet de poser une nouvelle hypothèse sur la phénoménologie de l'interface (Figure 4.18). En effet, cette raideur accrue pourrait être responsable d'un ralentissement de l'adoucissement de l'interface, au-delà de la contrainte critique T^c . Ce phénomène aboutirait alors à un déplacement à rupture δ_{alu}^f , bien plus grand que pour l'interface sans aluminium (δ_{simple}^f) comme le montre la Figure 4.18. À partir de la Figure 4.11 une contrainte critique T^c similaire a pu être identifiée pour les deux interfaces. Aussi, si un ligament renforcé est plus raide qu'une fibrille de matrice pure, il induit, pour une même ouverture d'interface δ , une plus grande rigidité du comportement locale ($K_{\text{alu}} > K_{\text{simple}}$). Cette raideur accrue réduit alors la déclivité de la pente de δ^c à δ_{alu}^f , induisant alors une valeur de δ_{alu}^f largement plus importante que δ_{simple}^f (Figure 4.18).

Cette hypothèse, combinée au fait que les observations ne révèlent la présence d'aucune décohésion complète, est tout à fait cohérente avec le comportement macroscopique dont l'adoucissement stable suggère bien un déplacement à rupture très important (Figure 4.5). Le comportement de cette composition est donc en premier lieu impacté par les interfaces des grosses particules dont des particules de plus petite taille modifient les propriétés en particulier le déplacement à rupture δ^f . Dans un second temps, il est probable que les interfaces de ces dernières entrent en jeux.

En effet, l'échantillon présente une ruine prématurée par rapport aux autres compositions à liant inerte (Figure 4.5). Celle-ci pourrait être expliquée par le scénario suivant : comme détaillé précédemment, le renforcement des fibrilles par l'aluminium limite la perte de raideur de l'interface. Cependant, dans ces ligaments fortement sollicités un endommagement au niveau des interfaces liant/aluminium doit intervenir, entraînant alors une brusque perte de raideur des fibrilles et donc la ruine du composite. Cette hypothèse sur la phénoménologie de l'endommagement, implique à la fois des décohésions liant/charge et liant/aluminium. Elle justifierait la très

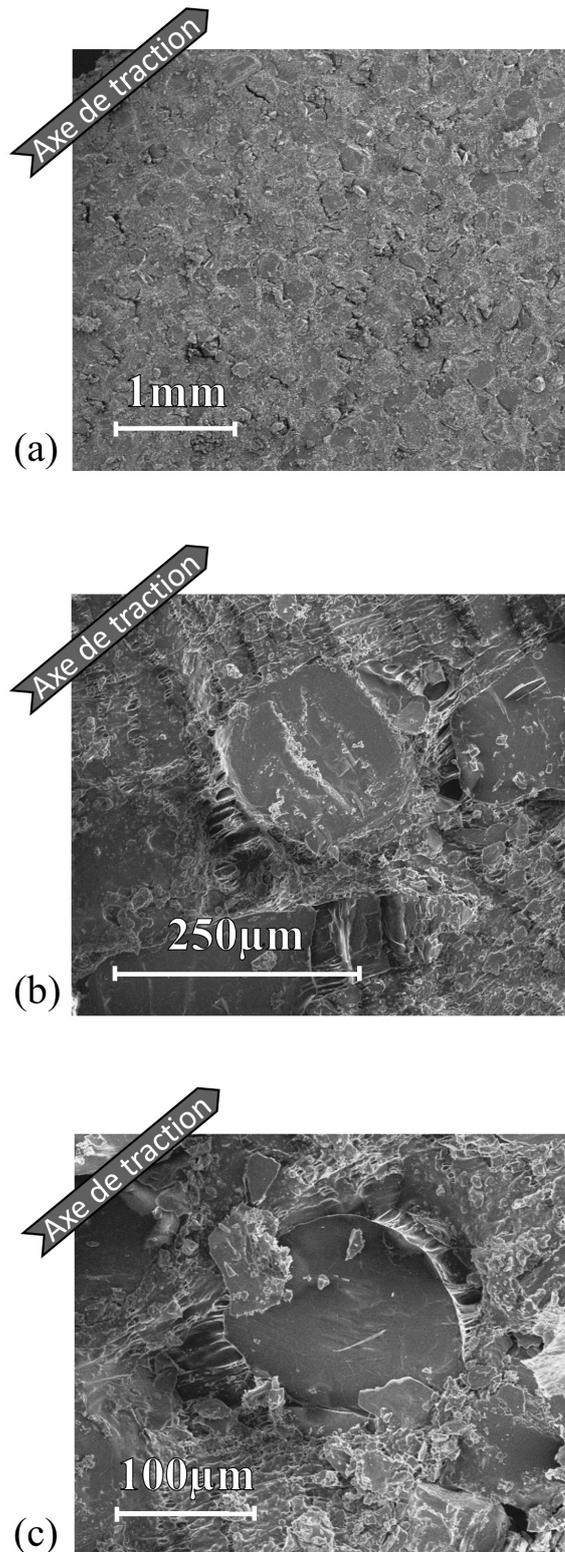


FIGURE 4.17 : Observations MEB de la première composition soumise à une déformation de 11%. Images obtenues sur le MEB *Zeiss JSM-6510* du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 8 kV.

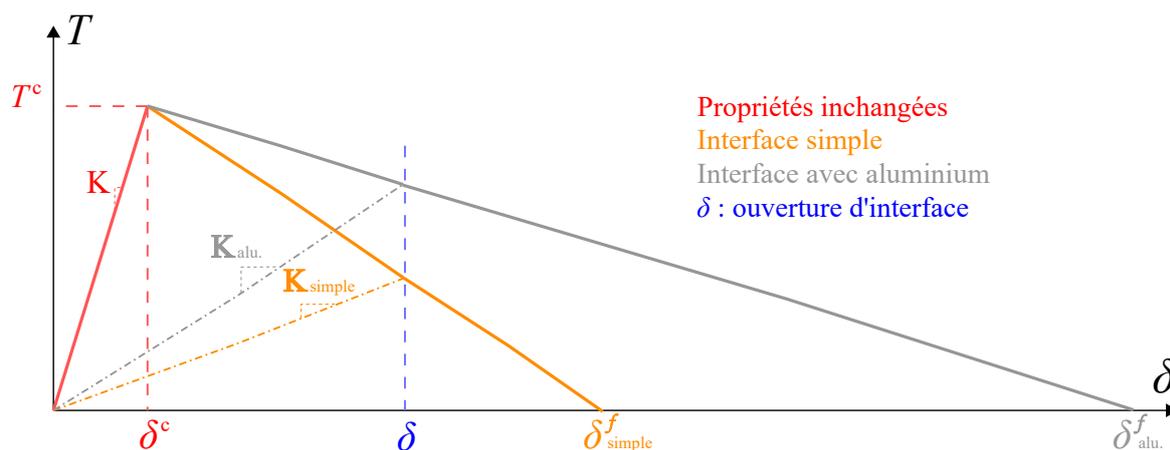


FIGURE 4.18 : Illustration de l'influence d'une rigidité accrue des fibrilles interfaciales sur les propriétés phénoménologiques d'une même interface. Les propriétés inchangées sont affichées en rouge alors que les propriétés de l'interface avec aluminium sont reportées en gris (correspondant à la première composition) par comparaison avec une interface simple, reportée en orange, (correspondant à la quatrième composition).

forte énergie d'endommagement enregistrée pour cette première composition (61 kJ/m^3).

Dans le cas du deuxième quasi-propergol, la Figure 4.19 permet d'observer l'endommagement local avec une déformation de 19%. De même que la composition précédente, aucun phénomène de localisation n'est observé (Figure 4.19(a)). Seules de rares zones de concentration de l'endommagement peuvent être détectées. Ceci est cohérent avec les simulations numériques dans la mesure où le comportement mécanique ne présente pas d'inflexion pour ce niveau de sollicitation. Une observation plus fine des décohésions révèle que si quelques-unes sont totalement endommagées, des fibrilles sont visibles dans la plupart d'entre elles (Figure 4.19(b) et (c)). Elles sont similaires à celles observées pour la première composition, mais elles paraissent moins nombreuses. Ce type de configuration est alors favorable à l'identification d'un δ^f important, bien que, comparativement dans ce cas, aucune particule d'aluminium ne vient rigidifier les ligaments. Qualitativement, une valeur de l'ordre du δ^f_{simple} sur la Figure 4.18 peut être identifiée. Ce déplacement à rupture moyen, ainsi que la contrainte critique intermédiaire mis en évidence précédemment (Figure 4.10), sont cohérents avec l'énergie d'endommagement médiane évaluée pour cette composition (5 kJ/m^3).

Pour la troisième composition, les observations proposées sur la Figure 4.20, avec une déformation de 5%, démontrent que, malgré l'endommagement préexistant, les décohésions créées par la sollicitation peuvent tout de même être facilement identifiées. La Figure 4.20(a) ne laisse voir aucune localisation, en accord avec le très faible niveau de contrainte critique qui a été extrait du comportement macroscopique de ce matériau (Figure 4.10). Les décohésions sont visibles sur la majeure partie des particules et ne présentent aucune fibrille malgré des ouvertures très restreintes, comparées aux observations des deux compositions précédentes. Ces faibles bâillements justifient l'absence de variation de volume mesurée au dilatomètre Farris et elles confirment que ces interfaces semblent disposer à la fois d'une contrainte critique T^c et d'un déplacement à rupture δ^f très réduit du fait de l'absence de fibrilles. Enfin, la tendance de ces deux propriétés est cohérente avec le comportement mécanique et la très faible énergie d'endommagement (0.5 kJ/m^3) mesurée pour cette composition.

La Figure 4.21 permet d'observer l'état d'endommagement de la dernière composition soumise à 15% de déformation. L'observation globale de la Figure 4.21(a) met en évidence la présence

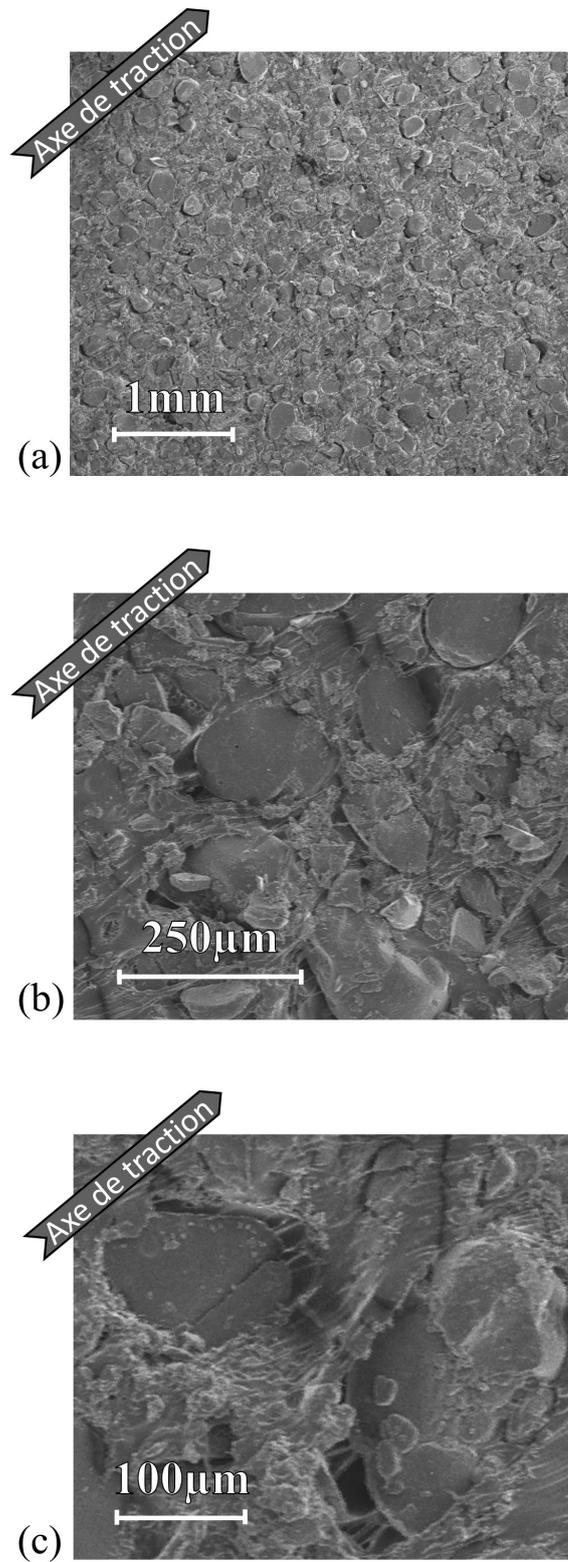


FIGURE 4.19 : Observations MEB de la deuxième composition soumise à une déformation de 19%. Images obtenues sur le MEB *Zeiss JSM-6510* du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 8 kV.

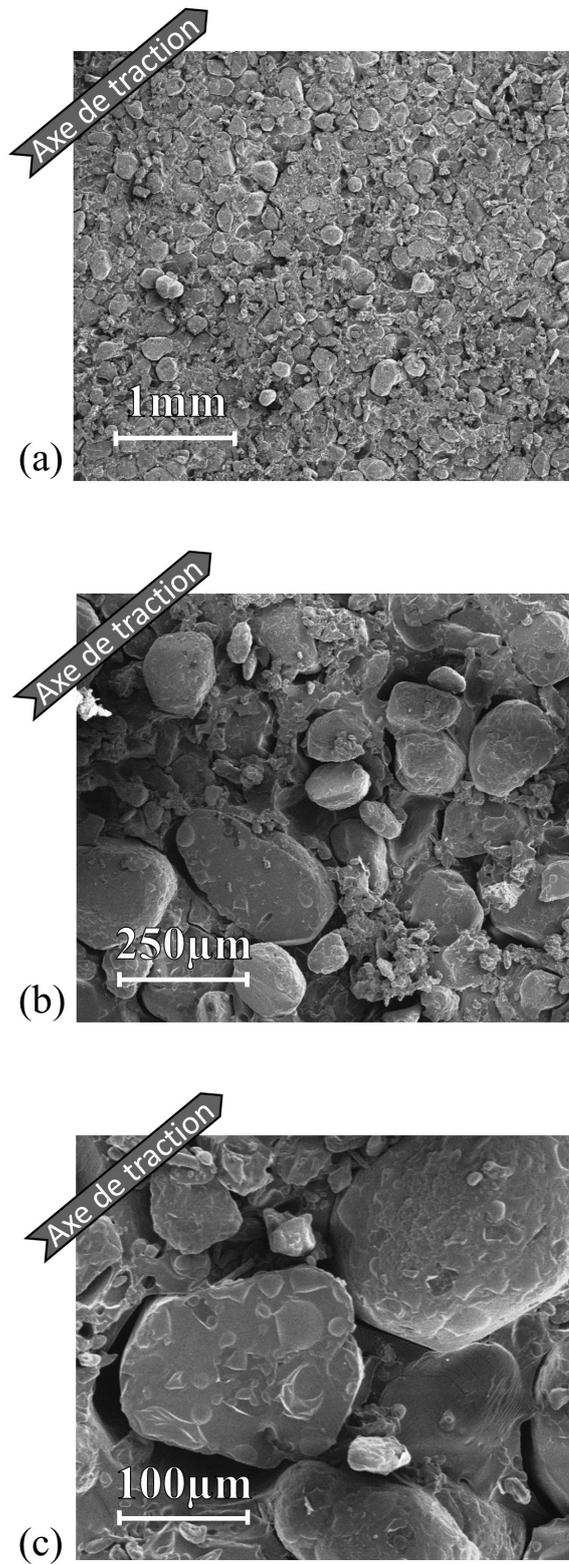


FIGURE 4.20 : Observations MEB de la troisième composition soumise à une déformation de 5%. Images obtenues sur le MEB Zeiss *JSM-6510* du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 8 kV.

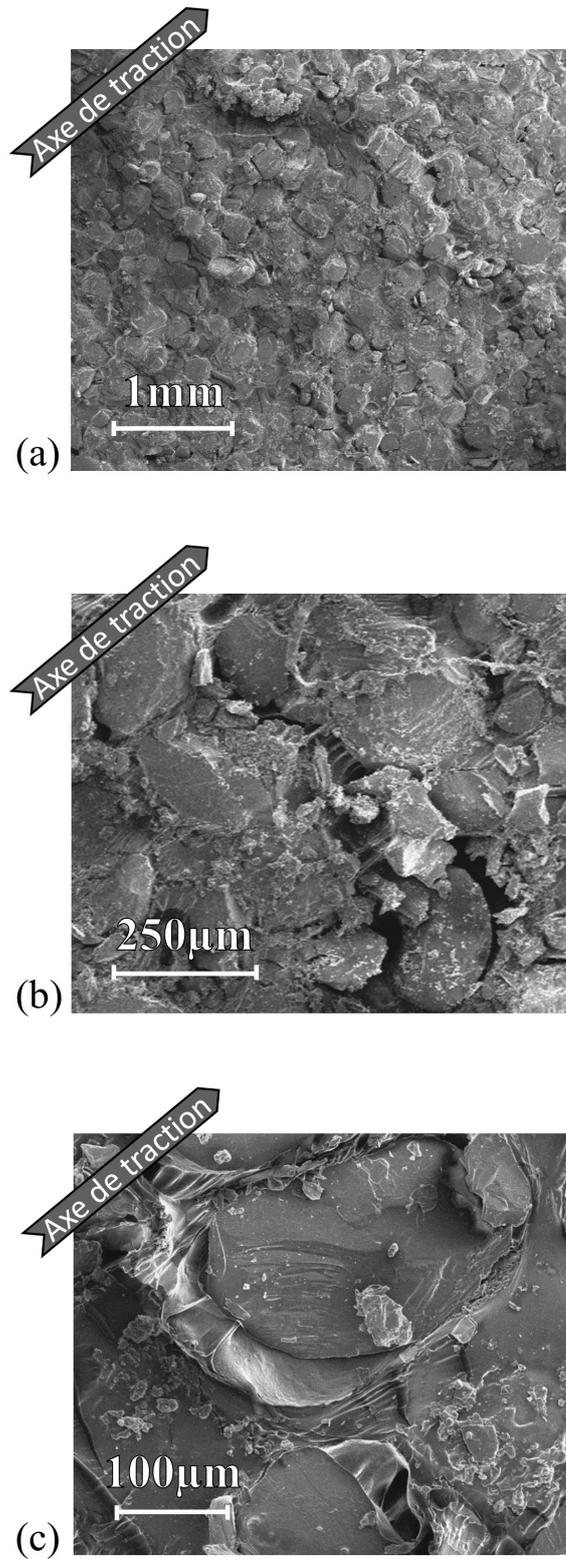


FIGURE 4.21 : Observations MEB de la quatrième composition soumise à une déformation de 15%. Images obtenues sur le MEB *Zeiss JSM-6510* du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 8 kV.

de zones de localisation des décohésions, contrairement aux autres compositions. Ce phénomène est visible alors qu'à l'échelle macroscopique, pour ce niveau de sollicitation, la contrainte décroît. En accord avec les simulations numériques, la localisation intervient donc bien dans la continuité d'une inflexion de la réponse macroscopique, bien que la reprise de raideur observée numériquement ne soit pas reproduite par ce quasi-propergol. En outre, toujours en adéquation avec les simulations, ce phénomène se produit alors qu'une contrainte critique T^c importante a été identifiée pour ce matériau. Des observations plus précises au niveau des décohésions révèlent la présence d'interfaces totalement rompues au niveau des localisations et partout ailleurs des interfaces avec des fibrilles, voir même de larges ligaments de matrice (Figure 4.21(b) et (c)), signe d'un grand déplacement à rupture δ^f . Cette propriété, ainsi que la contrainte critique T^c identifiée précédemment (Figure 4.11), sont cohérentes avec l'énergie d'endommagement importante qui a été évaluée pour cette dernière composition (20 kJ/m^3).

L'ensemble de ces observations à l'échelle locale permettent de retrouver des marqueurs spécifiques qui ont été identifiés grâce aux simulations numériques, en particulier la localisation des décohésions. Elles offrent une visualisation des décohésions partielles avec fibrilles, caractérisant un déplacement à rupture δ^f très grand. Enfin, elles donnent la possibilité de confirmer des hypothèses qui avaient été proposées pour justifier les caractérisations à l'échelle macroscopique : l'influence de l'aluminium sur la densité d'énergie d'endommagement de la première composition ou encore l'absence de dilatation du troisième quasi-propergol.

4.3.3 Bilan des caractérisations

Les démarches de caractérisation des quasi-propergols mise en œuvre ont ainsi permis d'identifier de nombreuses propriétés d'interface, sans aucune contradiction entre les propriétés extraites des différentes approches.

Sur la base de ces analyses, une représentation comparative de la phénoménologie de ces quatre grands types de propergols peut alors être proposée en s'appuyant sur le faisceau d'informations fournies par les différentes méthodes de caractérisation détaillées précédemment. Bien qu'uniquement qualitative, cette approche permet de comprendre plus clairement les différentes propriétés des interfaces et d'expliquer le comportement macroscopique des quasi-propergols étudiés.

Le Tableau 4.2 rapporte ainsi les différentes tendances des propriétés des interfaces qui ont pu être dégagées. La Figure 4.22 offre une vue schématique de l'allure des propriétés d'interface de chacun de ces matériaux. Leur analyse permet de mettre en évidence les déficiences des interfaces les plus communes des propergols (contrainte critique T^c , déplacement à rupture δ^f) en vue de développer les meilleures stratégies pour les améliorer en ayant un impact substantiel sur le comportement macroscopique.

Dans le cas de la première interface, les observations MEB ont conduit à envisager un déplacement à rupture très importante tout en suggérant que la ruine prématurée du matériau soit due aux décohésions autour des petites particules. Ces analyses conduisent alors à envisager une nouvelle phénoménologie d'interface plus à même de reproduire le comportement cohésif (Figure 4.22). Si ce comportement complexifie le modèle et induit un nombre croissant de paramètres, il se rapproche de la forme originale de la loi de zone cohésive proposée par [Tvergaard et Hutchinson \(1993\)](#) dont l'évolution est trapézoïdale plutôt que bilinéaire. Aussi, dès lors que de nouvelles particules sont introduites dans une proportion non négligeable, il est possible qu'elles entraînent une remise en question de la phénoménologie choisie dans le projet. Une étude plus approfondie serait alors nécessaire, justifiant la restriction de la présente analyse expérimentale

Interfaces		Contrainte critique T^c	Déplacement à rupture δ^f	Énergie d'endom. (kJ/m ³)	Énergie d'adhésion Γ
LI/PA (+Alu.)	—	↗	(↗)	61	?
LI/RDX	—	→	→	5	→
LN/RDX	- - -	↘	↘	0.5	↘
LI/PA	—	↗	→	20	↗

TABLE 4.2 : Propriétés phénoménologiques des interfaces classiques de propergols identifiées qualitativement. **LI** désignent un liant inerte et **LN** un liant nitré.

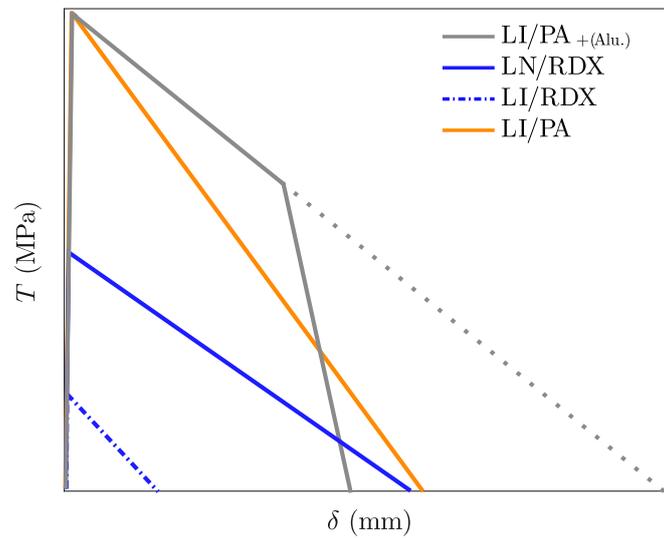


FIGURE 4.22 : Illustration qualitative des propriétés des interfaces des quasi-propergols déduites des différentes caractérisations de la section précédente et des tendances suggérées par les simulations numériques développées tout au long du projet.

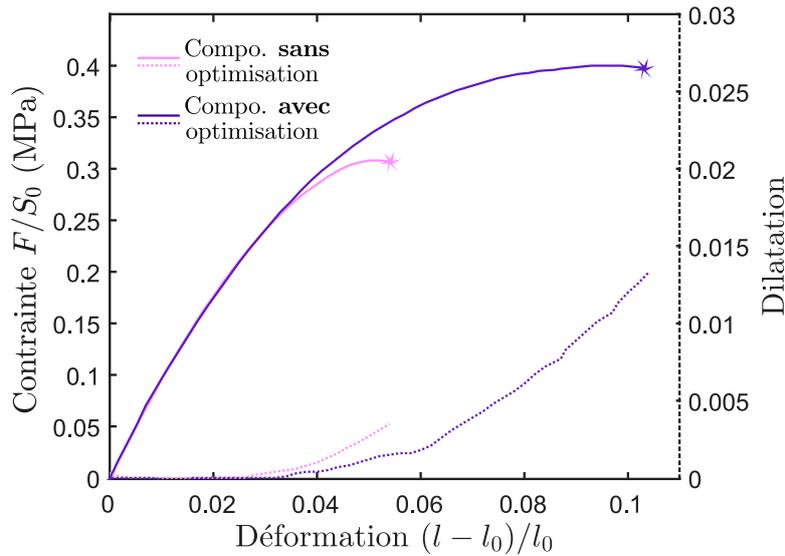


FIGURE 4.23 : Comportements jusqu'à rupture en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 50mm/min et suivi de dilatation de deux compositions à base de liant nitré et contenant des charges de RDX. Dans un des cas une stratégie d'optimisation de l'adhésion liant/charge a été mise en œuvre.

à des propergols simplifiés.

4.4 Études complémentaires

En plus de cette analyse des propriétés des interfaces les plus classiques dans les propergols, les simulations numériques et la démarche de caractérisation permettent d'accéder à une meilleure compréhension de l'endommagement. Cette approche a ainsi été éprouvée en identifiant des propriétés d'adhésion dans le cadre d'un projet dédié à l'optimisation des interfaces liant nitré/RDX. Par la suite, elle a pu être confrontée à des résultats extraits de la littérature permettant d'une part de confronter les tendances des réponses macroscopiques avec les simulations numériques et d'autre part de proposer une explication des différentes ruptures à partir des champs d'endommagement spécifiques suggérés tant par les observations MEB que par les simulations.

4.4.1 Mise en œuvre de la démarche au service de l'amélioration des propriétés d'interface

On s'intéresse à deux compositions similaires à base de liant de nitré contenant des charges de RDX. Cependant, l'une des compositions a intégré une stratégie d'amélioration de l'adhésion liant/charge. Contrairement aux compositions précédentes, une granulométrie variable a été introduite (0–100 μm). Une fois encore ces matériaux sont des outils d'étude amont, sans aucune applicabilité opérationnelle.

De manière standard, l'endommagement des deux compositions a été caractérisé à l'échelle macroscopique avec une traction uniaxiale au dilatomètre Farris. Des observations à l'échelle microscopique au MEB ont aussi été proposées. La Figure 4.23 reporte le comportement obtenu pour les deux compositions. On constate que les réponses sont très proches sur la phase linéaire et le début de l'adoucissement. Ensuite, la perte de raideur s'accélère dans la composition brute alors que de façon remarquable la composition avec optimisation présente une déformation à rupture

largement améliorée. Les variations de volume décrivent de leur côté une tendance similaire, avec néanmoins une initiation légèrement plus précoce et une évolution qui semble plus rapide dans le cas de la composition brute (Figure 4.23). Une fois encore, si cette mesure de dilatation valide une amélioration du comportement et démontre que l'endommagement se développe différemment, elle ne permet pas d'identifier en quoi l'adhésion locale a été modifiée.

Du fait de la similitude des compositions et peut être de la polydispersité des charges, les différences de comportements sont moins nettes que dans le cas des quatre compositions précédentes. En effet, si l'adoucissement semble s'initier en même temps, il s'accélère et atteint un effet plateau pour des contraintes globales radicalement différentes (24% inférieure dans le cas de la composition brute), complexifiant l'identification comparative des propriétés phénoménologiques d'interface qui ont été améliorées.

Ainsi, des observations au MEB sur éprouvettes sollicitées ont été mises en œuvre pour affiner l'analyse des propriétés modifiées. Les éprouvettes vierges présentent une allure similaire à celle obtenue pour la composition précédente à liant nitré contenant du RDX (composition trois, Figure 4.16(c)). Seules les observations sous sollicitation sont donc reportées. La Figure 4.24 met en évidence des décohésions complètes et diffuses sur l'ensemble de l'échantillon pour la composition originale. Cette observation est cohérente avec les faibles propriétés d'adhésion qui ont déjà été identifiées pour cette interface (Liant nitré/RDX, Tableau 4.2). En revanche, l'amélioration de l'adhésion induit un champ de décohésions radicalement différent, caractérisé par la présence de nombreuses localisations qui sont très clairement visibles sur la Figure 4.25. Ce phénomène est tout à fait similaire aux localisations visualisées dans les simulations numériques pour une zone cohésive avec une contrainte critique T^c importante. En effet, ce type de champ d'endommagement a déjà été observé avec les simulations basées sur le jeu de paramètres de zone cohésive de référence (Figure 3.8(b) et (c)). Les champs obtenus numériquement pour une contrainte critique bien plus faible (Figure 3.10(b)) sont, par ailleurs, tout à fait cohérents avec des décohésions diffuses de la composition brute.

Une analyse fine des interfaces endommagées ne permet pas de visualiser de fibrilles (Figure 4.24(c) et 4.25(c)) qui auraient permis de justifier d'une amélioration du déplacement à rupture δ^f . Bien que ces liens n'en soient pas un descripteur exclusif, ils en sont les plus marquants. Aussi, s'il semble qu'il n'y ait pas eu une remarquable amélioration de cette propriété, il est difficile de statuer plus finement sur son évolution.

Ces analyses permettent tout de même de justifier que la stratégie d'optimisation mise en œuvre a conduit à une amélioration notable au moins de la contrainte critique T^c de l'interface. Dans cette configuration, il semble que la localisation ne soit pas aussi néfaste que ce qui aurait pu être pressenti, permettant de freiner l'endommagement sans pour autant précipiter la ruine de l'échantillon.

4.4.2 Confrontation à la littérature

Cette étude peut être complétée par une analyse de comportements extraits de la littérature (Toulemonde, 2016). La réponse en contrainte-déformation de deux propergols est reportée sur la Figure 4.26. Ces compositions présentent l'avantage d'être basées sur un liant nitré différent des matériaux précédents qui est compatible tant avec des charges de perchlorate d'ammonium que des nitramines (ici de l'octogène, HMX). Elles possèdent une granulométrie variable de 20 à 100 μm avec une fraction volumique identique de 60%. Elles permettent ainsi d'étudier l'impact de différentes propriétés d'interface.

À la rupture près, les comportements caractérisés (Figure 4.26) reproduisent alors de manière

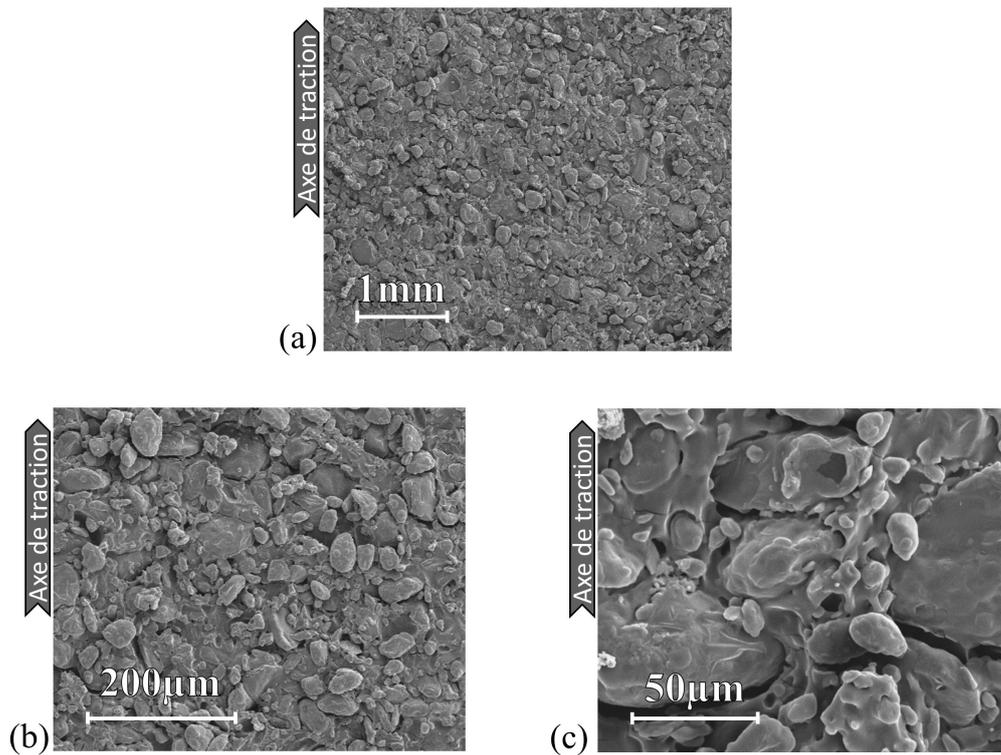


FIGURE 4.24 : Observations MEB de la composition sans optimisation de l'adhésion soumise à une déformation de 3.5%. Images obtenues sur le MEB *Zeiss JSM-6510* du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 10 kV (a-b) et 15kV (c).

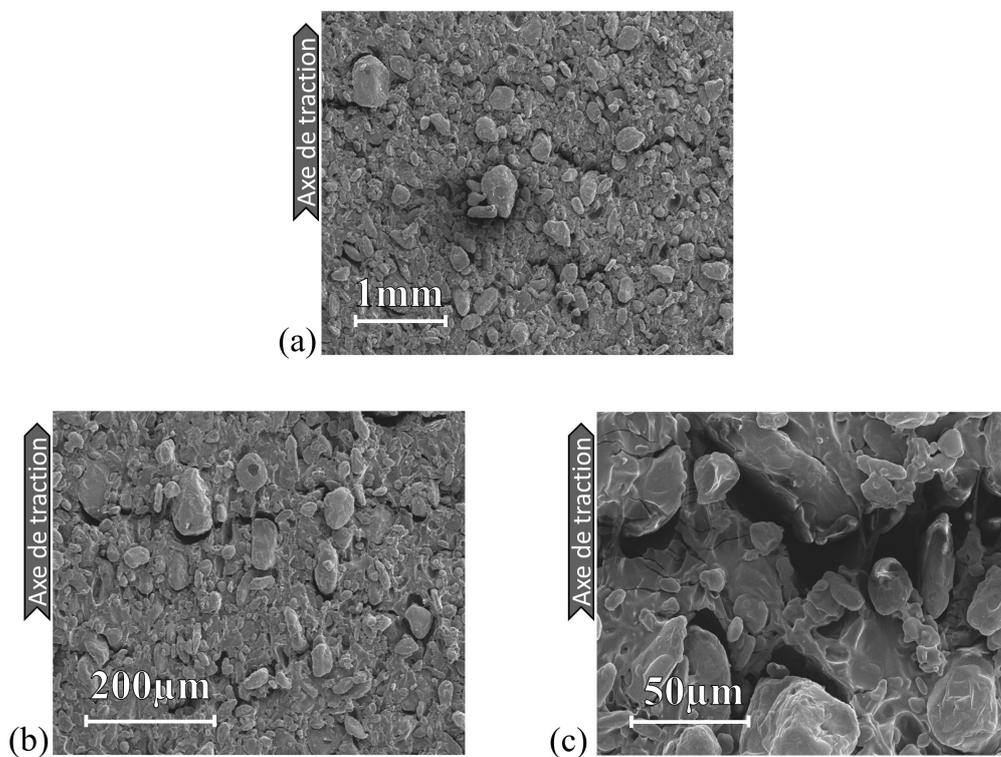


FIGURE 4.25 : Observations MEB de la composition avec optimisation de l'adhésion soumise à une déformation de 6%. Images obtenues sur le MEB *Zeiss JSM-6510* du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 10 kV.

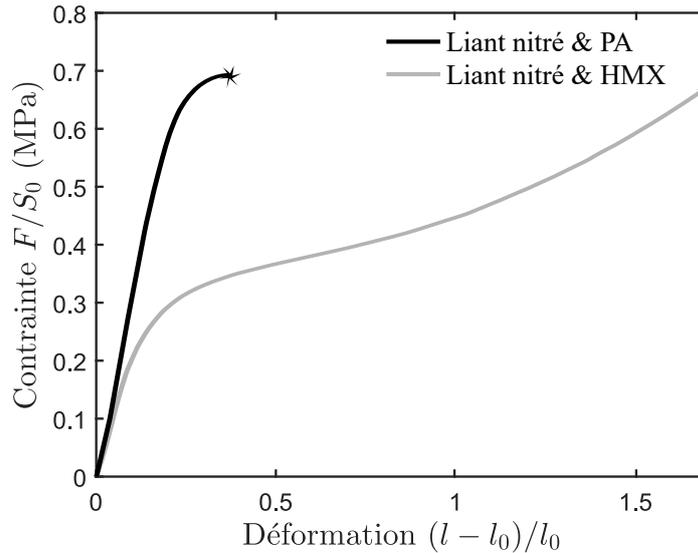


FIGURE 4.26 : Comportements jusqu'à rupture en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min de deux compositions à base d'un autre liant nitré contenant des charges de HMX ou de PA (d'après Toulemonde (2016)).

remarquable les tendances des évolutions obtenues avec les simulations numériques pour le jeu de paramètres de zone cohésive de référence et pour le troisième jeu de paramètres (contrainte critique T^c réduite) dont les évolutions sont rappelées sur la Figure 4.27. On peut en déduire que l'interface entre ce liant nitré et le perchlorate d'ammonium présente une contrainte critique T^c bien plus forte que pour l'interface avec HMX.

Ce cas met très clairement en évidence le risque que peut induire une simple augmentation de cette contrainte critique. Si l'effort transmis est plus de deux fois supérieur, pour le déplacement à rupture de la première composition, la localisation probable entraîne une ruine prématurée. En revanche, la dispersion homogène de l'endommagement, du fait de la valeur réduite de T^c , pour la seconde composition, retarde la rupture permettant *in fine* d'atteindre les mêmes niveaux de contraintes, pour une déformation près de cinq fois supérieure.

Ces configurations mettent en valeur, une fois encore, la compréhension du comportement auquel les simulations donnent accès, tout en soulignant la difficulté que représente une optimisation de l'adhésion liant/charge. Ce cas met aussi en évidence la nécessité, déjà évoquée, d'explorer en détails la définition d'un critère de rupture pour optimiser l'exploitation des simulations numériques.

4.5 Synthèse

Ce chapitre propose de confronter les éléments de compréhension de l'endommagement, apporté par les simulations numériques, au comportement réel des propergols. Afin de faciliter cette comparaison, des compositions simplifiées (quasi-propergols) mais représentatives des grandes familles de propergols ont été élaborées. Seule la dispersion de la granulométrie des charges a été réduite, alors que ces propergols ont suivi un processus standard de fabrication dans le cadre industriel, induisant alors une variabilité sensible des fractions volumiques. Par la suite, le comportement des deux matrices élastomères considérées (liant inerte, liant nitré) a été caractérisé, dévoilant une rigidité similaire pour un déplacement à rupture radicalement différent (facteur >2). De leur côté, les propriétés mécaniques des charges ont été extraites de la littérature. Une

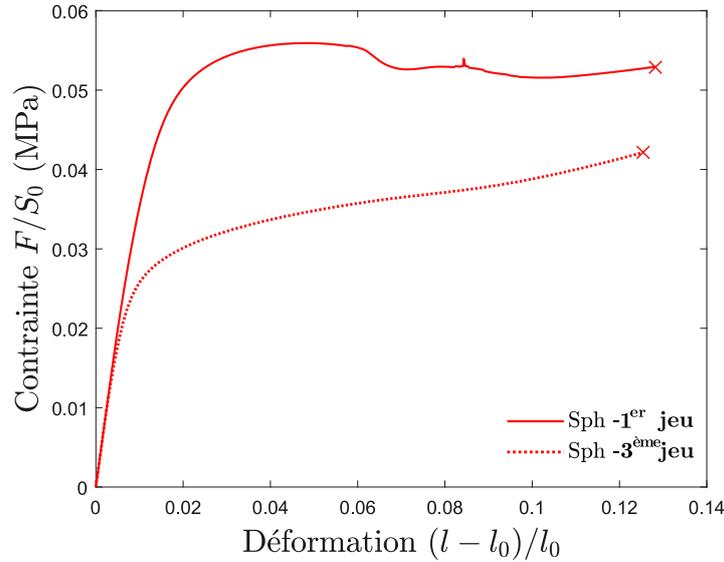


FIGURE 4.27 : Simulation numérique de la réponse en contrainte–déformation de deux microstructures numériques contenant 55% de sphères pour le premier et le troisième jeu de paramètres de zone cohésive (Tableau 3.1).

analyse tomographique des compositions à liant inerte permet d’observer leur morphologie, confirmant le fait que ces formulations constituent un intermédiaire entre les composites modèles et les propergols opérationnels. Les quasi-propergols ont d’abord été étudiés en suivant un processus standard de caractérisation de l’endommagement dans le cadre industriel, puis en mettant en œuvre des méthodes moins conventionnelles, mais qui présentent des intérêts particuliers.

La caractérisation du comportement de chacune des quatre compositions s’est focalisée en premier lieu sur leur réponse élastique avant de s’intéresser, en second lieu, aux grandes déformations et à l’endommagement. Dans le cadre de l’élasticité linéaire, le comportement de la première composition (liant inerte+PA+Alu.) a pu être confronté aux estimations du modèle autocohérent généralisé. Ils aboutissent à des valeurs tout à fait cohérentes. La différence de rigidité des deux compositions suivantes (2 : liant inerte+RDX et 3 : liant nitré+RDX) a aussi pu être expliquée grâce à ce modèle. Elle démontre que son origine provient majoritairement de leur différence de fraction volumique. Cependant, un phénomène de second ordre induit tout de même un écart substantiel ($< 30\%$) entre les modules estimés expérimentalement et analytiquement. En revanche, dans le cas de la quatrième composition (liant inerte+PA) aucun élément ne semble justifier sa rigidité exceptionnellement élevée, en particulier vis-à-vis des trois autres quasi-propergols. Or, les simulations numériques ont mis en évidence la possibilité d’obtenir de telles rigidifications en cas de blocage morphologique. Il semble donc que cette dernière composition soit affectée par un tel phénomène expliquant, en partie, son comportement linéaire. Cet effet morphologique ne semble pouvoir justifier, à lui seul, ces propriétés élastiques singulières. Un phénomène supplémentaire intervient vraisemblablement, probablement dû à une rigidification de la matrice autour des charges (interphases).

Dans le cas des grandes déformations, quelques simulations numériques supplémentaires ont été proposées afin de s’assurer que les variabilités des compositions (fraction volumique, rigidification de la matrice due à l’aluminium) ne puissent expliquer les différences de comportements observées. Ces dernières sont, sur la base de ces simulations, essentiellement associées aux différentes propriétés d’interface. De manière standard, une caractérisation des quasi-propergols en traction uniaxiale jusqu’à rupture a été proposée avec une mesure de la dilatation. Ces ana-

lyses démontrent, d'abord, les limites d'une étude de l'endommagement sur la simple base de la variation de volume. Elles mettent ensuite en évidence la possibilité d'identifier des propriétés d'interface, pour chacune des compositions, en suivant la phénoménologie du comportement cohésif implémenté dans les simulations. Ainsi, en s'appuyant sur les tendances suggérées par les études paramétriques numériques, une contrainte critique T^c similaire a pu être identifiée pour la première et la dernière composition alors que celle des deuxième et troisième quasi-propergols semblent respectivement d'un niveau intermédiaire et très faible. Afin d'étayer cette analyse, une méthode de caractérisation de la densité d'énergie d'endommagement des compositions a été mise en œuvre. Elle donne accès à une évaluation comparative des énergies d'adhésion Γ de leurs interfaces. Bien que cette approche soit complexe et repose sur des hypothèses fortes, elle présente à la fois l'avantage de donner accès à une nouvelle propriété d'interface tout en ne nécessitant pas de s'appuyer sur les tendances suggérées par les simulations numériques. Des propriétés radicalement différentes sont alors identifiées pour les quatre compositions. Cependant, les énergies Γ extraites sont tout à fait cohérentes avec les contraintes critiques T^c identifiées précédemment et permettent d'étayer les analyses reposant sur les tendances des simulations numériques.

Ces approches macroscopiques ont été complétées par des observations de l'endommagement à l'échelle locale grâce à des observations au MEB d'éprouvettes en relaxation. Un montage de maintien en traction a été utilisé et des observations avant sollicitation ont été proposées pour chaque matériau. Si un état d'endommagement initial très différent peut alors être visualisé, celui-ci est toujours cohérent avec les propriétés d'interface intuitées à partir des caractérisations précédentes. Il semble qu'une identification de l'endommagement, résultant de la traction, reste possible dans tous les cas. L'observation de la première composition révèle un endommagement partiel de toutes les interfaces, sans localisation. Ce champ de décohésions ainsi que le comportement macroscopique de cette composition, qui présente un adoucissement stable, sont cohérents avec un déplacement à rupture δ^f très important. L'origine de celui-ci a pu être associée aux particules d'aluminium qui sont visibles au niveau des décohésions. Celles-ci induisent alors une modification importante de l'adhésion. Dans le cas des autres compositions à liant inerte, un déplacement à rupture important, quoique plus faible, a pu être identifié du fait de la présence de fibrilles dans la plupart des décohésions. À l'inverse, de tel phénomène n'ont pas pu être observés sur le troisième quasi-propergols, induisant un déplacement à rupture δ^f réduit. Par ailleurs, la quatrième composition présente des zones de localisation qui sont cohérentes tant avec la valeur importante de la contrainte critique T^c de ses interfaces, caractérisée précédemment, qu'avec l'inflexion de son comportement global. Il convient de noter que l'ensemble des propriétés extraites des observations à l'échelle locale sont tout à fait cohérentes avec les caractérisations macroscopiques précédentes. Une représentation qualitative des propriétés d'adhésion de ces quatre compositions peut donc être proposée, mettant en lumière les spécificités des interfaces les plus courantes des propergols. Cette analyse permet de remettre en question la phénoménologie sélectionnée dans le cas de la première composition, du fait de l'introduction de particules de petites taille.

Enfin, cette démarche de caractérisation, ainsi que les éléments de compréhension qu'elle apporte, ont été déployés dans le cadre d'un projet d'amélioration des propriétés de l'interface liant nitré/RDX. Le comportement de deux compositions, l'une brute et l'autre intégrant une stratégie d'optimisation de l'adhésion, a pu être caractérisé en suivant leur dilatation. Si cette approche permet de valider l'amélioration du comportement, elle n'autorise pas la mise en évidence des propriétés améliorées. Aussi, des observations de l'endommagement local au MEB ont été proposées, révélant alors des allures très différentes, avec l'apparition de localisations dans

le cas des interfaces optimisées. Cette analyse, associée aux simulations numériques, permet de mettre clairement en évidence une augmentation de la contrainte critique T^c de l'interface. Si, dans ce cas, les localisations induites par cette amélioration locale ne sont pas néfastes et permettent de perfectionner le comportement mécanique, un effet très différent a pu être identifié sur des compositions dont le comportement a été extrait de la littérature. En effet, pour ces deux quasi-propergols à liant nitré, les comportements macroscopiques suggèrent une contrainte critique T^c largement supérieure dans la première composition, chargée avec du PA. Or, celle-ci présente une rupture très prématurée par rapport au second matériau qui contient des charges de nitramines. Cette ruine peut vraisemblablement être attribuée aux localisations caractéristiques des interfaces ayant une contrainte critique T^c importante. Elle démontre alors un impact capital de ce paramètre. Cette dernière analyse souligne l'intérêt que représenterait la définition d'un critère numérique de rupture pour étudier la criticité de ces localisations.

Chapitre 5

Conclusions et perspectives

Ce dernier chapitre propose de revenir sur l'ensemble des développements proposés dans le cadre de ce projet de recherche. Il permet de mettre en évidence les hypothèses posées et de rappeler les étapes clés de la démarche ainsi que les méthodes de validations mises en œuvre. Il débutera donc par les propriétés élémentaires des propergols, conduisant aux stratégies développées pour simuler leur comportement élastique puis leur endommagement, aboutissant enfin à une confrontation atypique avec des quasi-propergols. Ce chapitre conduira finalement à l'évocation des perspectives du projet avec quelques résultats originaux, motivant leur exploration.

« L'homme de science ne vise pas un résultat immédiat. Il ne s'attend pas à ce que les idées qu'il avance soient facilement acceptées. Son travail est comme celui d'un cultivateur, pour l'avenir. Son devoir est de jeter les bases pour ceux qui sont à venir et de montrer la voie. Il vit, travaille et espère. »

Nikola Tesla (1856–1943)

Sommaire

5.1	Conclusions	143
5.2	Perspectives	146
5.2.1	L'impact du facteur de forme des charges irrégulières	146
5.2.2	Différenciation des comportements cohésifs normaux et tangentiels	149
5.2.3	Analyse de l'impact de nouveaux paramètres sur l'endommagement	151
5.2.4	Microstructures avec un défaut de désordre	152
5.2.5	Utilisation additionnelle des microstructures numériques	153
5.3	Bilan final	155

5.1 Conclusions

Les propergols solides composites sont des élastomères fortement chargés dont les propriétés énergétiques sont utilisées pour la propulsion anaérobie. Ces matériaux présentent des morphologies et comportements complexes, nécessitant une meilleure connaissance des phénomènes qui surviennent lorsqu'ils sont soumis à des sollicitations mécaniques. Ainsi, la compréhension de leur endommagement constitue un élément essentiel pour garantir l'intégrité des propulseurs ou optimiser les formulations. Par ailleurs, les particules énergétiques de nouvelle génération ont une géométrie irrégulière et facettée comparée à la forme sphérique et lisse des charges traditionnelles, sans que l'impact sur le comportement mécanique de ces nouvelles configurations ne soit encore clairement identifié. Tout l'enjeu du présent projet de recherche était donc le développement de stratégies de simulations numériques capables de reproduire le comportement et l'endommagement spécifique de ces matériaux. Par la suite, sur la base de la compréhension apportée par ces simulations, une caractérisation qualitative de l'endommagement de propergols communs a pu être proposée.

Le premier chapitre est revenu sur l'histoire de la propulsion et l'émergence des propergols solides pour assurer le déplacement d'engins spatiaux ou militaires. Ce contexte a permis de mettre en évidence l'enjeu stratégique que représente l'optimisation des propergols et qui explique la mise en place d'une démarche de compréhension et d'amélioration centrée sur le matériau lui-même. Les propergols sont ainsi constitués d'une matrice élastomère, énergétique ou non, contenant une très forte fraction volumique ($> 70\%$) de particules pyrotechniques de tailles micrométriques réparties aléatoirement. Le caractère énergétique de ces matériaux n'impactant pas leur comportement mécanique, l'étude a été étendue à l'ensemble des élastomères fortement chargés avec des inclusions micrométriques. En outre, afin de réduire la variabilité des paramètres simulés et dans la mesure où l'endommagement provient essentiellement des ruptures des interfaces des plus grosses charges, seules ces dernières ont été prises en compte. Des matériaux composites inertes modèles, constitués d'une matrice de méthacrylate contenant des billes ou des éclats de verre tamisés, ont été proposés. Le comportement mécanique de ces matériaux modèles a alors pu être confronté à celui des propergols afin de valider la cohérence de cette extension. Du point de vue des constituants, les matrices caoutchoutiques ont toutes une température de transition vitreuse inférieure à 20°C et présentent un comportement viscoélastique linéaire. Cependant, leur réponse sous sollicitation cyclique révèle que, pour une sollicitation quasi-statique à température ambiante, les effets visqueux peuvent être négligés. Cette simplification a donc été adoptée dans l'ensemble de l'étude. Les particules énergétiques et le verre présentent un comportement élastique fragile avec un module de Young de quelques dizaines de GPa, entraînant un rapport des raideurs des phases toujours supérieures à 10^4 . Enfin les propergols de même que les composites modèles présentent un adoucissement de leur comportement en grandes déformations du fait d'un phénomène d'endommagement dont la principale source est l'apparition de décohésions à l'interface matrice/particule, mises en évidence notamment par des mesures de variations de volume et des observations à l'échelle des particules. Des liens sont alors envisagés entre les phénomènes de rupture d'interface à l'échelle locale et le comportement endommagé de ces composites. De ce fait, les stratégies de simulations micromécaniques ont suscité un intérêt tout particulier dans le cadre de ce projet. Une revue des études utilisant ces approches révèle que les analyses volumiques de microstructures représentatives des propergols avec une simulation de l'endommagement sont rares. Alors que de nombreuses approches analytiques ont été proposées, la prise en compte des décohésions ou l'analyse précise des champs locaux avec ces méthodes reste complexe. Les simulations numériques offrent, de leur côté, un suivi précis des comportements

locaux mais nécessitent une représentation explicite de la morphologie du matériau et donc des volumes élémentaires représentatifs. Si l'obtention de ces derniers est facilitée dès lors que des conditions aux limites périodiques sont implémentées dans le cadre d'une analyse statistique, la forte fraction volumique de particules combinée à leur dispersion aléatoire impose d'employer des stratégies de génération sophistiquées. Le désordre des cellules obtenues peut être analysé à l'aide de fonctions de caractérisation géométrique. Le chapitre s'est finalement conclu sur une présentation des zones cohésives qui permettent de simuler les phénomènes de fissuration dans le cadre des éléments finis. Le principe de cette méthode et une approche spécifique ont ainsi pu être détaillés.

Le chapitre suivant s'est appliqué à détailler les stratégies de génération de microstructures qui ont été développées que ce soit pour obtenir des dispersions aléatoires de sphères ou de polyèdres irréguliers. Ainsi, dans le cas des sphères, un algorithme de Lubachevsky et Stillinger a été utilisé et une méthode atypique de sélection de ses paramètres a été proposée en s'appuyant à la fois sur l'évolution d'une pression théorique pendant la génération et sur les fonctions de caractérisation de l'ordre géométrique. On a alors pu démontrer que seules les évolutions de pression stables, suivant l'équation d'état, pouvaient éventuellement conduire à des dispersions aléatoires de sphères. Dans le cas de particules irrégulières, un diagramme de Voronoï a été obtenu à partir d'une dispersion aléatoire de centres de sphère, qui servent alors de points de germination. Les polyèdres obtenus ont ensuite été rétractés pour atteindre la fraction volumique cible (55%). Enfin, l'orientation et la position de ces derniers ont été perturbées afin de renforcer le caractère aléatoire du système. Par la suite, afin d'envisager une confrontation des comportements simulés à des données expérimentales, l'élaboration des matériaux composites modèles a été détaillée de même que leur caractérisation en petites et en grandes déformations. De plus, le comportement de la matrice élastomérique a aussi été analysé permettant de définir les modèles et les paramètres matériaux à implémenter dans les simulations numériques. Par la suite, une analyse statistique du comportement de vingt microstructures contenant des sphères a pu être proposée, mettant alors en évidence une dispersion importante des propriétés élastiques et, dans certains cas, une grande anisotropie. Un processus de sélection préalable des microstructures les plus aléatoires, et donc les plus représentatives, a été proposé, permettant non seulement de réduire l'effort de calcul mais aussi d'obtenir une dispersion réduite de moitié avec les mêmes estimations moyennes des modules. Ces propriétés ont été quantitativement confortées au modèle autocohérent généralisé ainsi qu'aux données expérimentales démontrant une cohérence remarquable. Dans le cas des particules irrégulières, la dispersion des modules s'est révélée largement plus réduite que dans le cas des sphères, ne nécessitant alors pas de présélection à partir des propriétés géométriques. Une confrontation des propriétés élastiques des deux types de VER, avec sphères ou avec polyèdres, a donc pu être proposée, mettant en évidence un effet du second ordre de la forme des particules avec une raideur légèrement plus importante dans le cas des particules sphériques ($\approx 10\%$).

Le troisième chapitre a proposé d'étendre l'étude aux grandes déformations en simulant l'endommagement dû aux décohésions matrice/particule. Ces dernières sont simulées avec des zones cohésives dont le principe et l'implémentation, pour des éléments quadratiques, ont été détaillés. Par ailleurs, les enjeux de la paramétrisation du modèle ainsi que les problèmes de convergence numérique ont été évoqués. Afin d'améliorer ce dernier point, une régularisation visqueuse a été proposée avec une étape de validation de son efficacité pour améliorer la convergence numérique sans toutefois modifier le comportement mécanique. Enfin, un affichage de l'état d'endommagement des interfaces a été proposé, donnant accès à une observation détaillée des phénomènes d'endommagement locaux dans les simulations. Dans ce contexte, les premières simulations du comportement endommagé ont pu être proposées sur la base de trois jeux de paramètres de

zone cohésive. Le premier jeu de paramètres, qui a servi de référence, a permis de reproduire de manière remarquable les spécificités des comportements expérimentaux, aussi bien aux échelles macroscopiques que locales. Les autres jeux de paramètres ont permis de mettre en évidence un impact de tout premier ordre des propriétés d'interface autant sur la réponse du matériau que sur son endommagement local, confirmant le lien étroit entre les propriétés d'interface et les phénomènes qui interviennent au niveau tant des champs d'endommagement que du comportement global. Fort de la cohérence remarquable des tendances numériques et expérimentales obtenues avec les paramètres de zone cohésive de référence, une confrontation quantitative a été proposée. Cette dernière s'est révélée décevante, notamment du fait d'un écart substantiel des comportements linéaires initiaux. Une analyse paramétrique a alors pu démontrer l'impact majeur de la rigidité initiale K des éléments cohésifs sur la phase de comportement linéaire du composite, ainsi que l'impossibilité de s'affranchir de cet assouplissement du fait d'une divergence numérique précoce induite pour les valeurs importantes de K . L'analyse paramétrique a également été étendue aux autres paramètres de zone cohésive : la contrainte critique T^c de même que le déplacement à rupture δ^f mettent en évidence leurs effets respectifs sur le comportement. Enfin, l'impact de la géométrie des particules a pu être étudié dans le cadre des grandes déformations avec endommagement, démontrant une fois encore un impact très limité, malgré une raideur sensiblement plus importante pour les VER contenant des polyèdres.

Les simulations numériques, ainsi que les éléments de compréhension de l'endommagement auxquels elles donnent accès, ont pu être confrontés aux comportements effectifs des propergols. Afin de s'affranchir de la complexité des propergols opérationnels, des formulations modifiées ont été considérées en réduisant la dispersion des tailles de charges. Cependant, malgré cette simplification, les combinaisons classiques des composants des propergols industriels ont été considérées. L'objectif est alors de suivre un processus standard de caractérisation de l'endommagement, dans le cadre industriel, et de s'appuyer sur les simulations numériques pour expliquer leur comportement et identifier leurs propriétés d'interface. Ainsi, dans le cadre des petites déformations, les propriétés élastiques ont pu être analysées et interprétées grâce au modèle autocohérent généralisé, dont la pertinence avait été validée par les simulations éléments finis. Un effet important de la fraction volumique a pu justifier les écarts de comportements, dans un cas, dès lors qu'un effet de blocage morphologique a pu être envisagé pour une autre composition. Dans le cas du comportement endommagé, les interfaces ont été analysées en suivant la phénoménologie des zones cohésives (loi bilinéaire). Certaines de leurs propriétés ont alors été identifiées à partir de leur réponse en contraintes-déformation par comparaison avec les tendances suggérées par les simulations numériques. Par la suite, cette étude a été validée grâce à une caractérisation expérimentale et quantitative de la densité d'énergie d'endommagement de chaque composition. Bien que cette approche repose sur des hypothèses fortes, elle présente l'avantage d'être auto-suffisante. Les densités d'énergies d'endommagement alors mesurées ont présenté une cohérence notable avec les propriétés d'interface identifiées sur le comportement macroscopique à partir des simulations numériques. Afin de compléter cette analyse, des observations de l'endommagement à l'échelle des particules ont été proposées pour chacun des quasi-propergols. Ces visualisations ont permis d'identifier de nouvelles propriétés d'interface tout en proposant des scénarii spécifiques d'endommagement. Si ces différentes approches ne permettent que de caractériser qualitativement les interfaces, les différences notables des comportements facilitent l'identification relative des propriétés d'adhésion et permettent de proposer une illustration qualitative de la phénoménologie des interfaces les plus communes des propergols. Enfin, la présentation du projet s'est achevée sur deux études :

- D'une part en présentant la mise en place de cette démarche dans le cadre d'un projet d'op-

timisation des interfaces pour lequel les caractérisations de l'endommagement à l'échelle des particules combinées aux simulations numériques ont permis d'identifier l'impact de la stratégie d'amélioration mise en œuvre.

- D'autre part, en proposant une l'analyse de comportements extraits de la littérature qui met en évidence une cohérence remarquable avec les simulations numériques. Ces dernières permettent alors d'envisager une explication à la rupture précoce d'un des quasi-propergols considérés, confirmant, par ailleurs, la nécessité d'enrichir la démarche de simulation proposée tout au long de ce projet en définissant un critère numérique de rupture de la matrice.

5.2 Perspectives

Cette étude ouvre de nombreuses perspectives aussi bien pour enrichir les simulations numériques que pour développer ou tester des outils de caractérisation des propergols. Quelques axes d'approfondissement sont proposés, en fournissant parfois des résultats originaux, afin de motiver leur exploration.

5.2.1 L'impact du facteur de forme des charges irrégulières

La première perspective concerne l'étude de l'impact d'un élanement des particules sur le comportement mécanique et l'endommagement. En effet, il est envisagé de doper les propergols avec du dinitramine d'ammonium (ADN) plus performant et plus écologique que le perchlorate d'ammonium. Cependant, ce composé oxydant présente, à l'issue de sa synthèse, une forme allongée. Il est donc nécessaire de comprendre l'impact de cette nouvelle forme sur les propriétés mécaniques du composite. Sur la base des simulations détaillées précédemment, l'influence des facteurs de forme de particules polyédriques a été brièvement analysée. À partir du processus détaillé en section 2.1.2, une microstructure chargée avec des polyèdres est générée avec une fraction volumique de 13%. Par la suite, pour chaque polyèdre, un axe de direction aléatoire passant par son point de germination est défini. Tous les sommets du polyèdre sont ensuite projetés sur l'axe. Ils subissent ensuite une translation définie par le vecteur partant du point de germination jusqu'à leur projeté. Un facteur d'amplitude est aussi appliqué à ce vecteur pour contrôler l'élongation des particules. La Figure 5.1 schématise, en deux dimensions, le processus proposé. Enfin, le volume des polyèdres est augmenté de manière incrémentale et des rotations ou translations aléatoires sont appliquées dès lors que le gonflement induit une interpénétration. Afin de permettre l'analyse de polyèdres notablement allongés, sans blocage lors de la phase de gonflement, des fractions volumiques réduites à 45% ont été considérées et des microstructures telles que celle de la Figure 5.2(b) peuvent être obtenues.

Les propriétés élastiques de ces microstructures n'ont pas présenté de variations notables avec moins de 5% de différences des modules moyens, pour des facteurs de forme entre 0.7 et 2.1. Le modèle autocohérent généralisé, qui a servi de référence dans l'étude pour estimer les propriétés élastiques, ne permet pas de prendre en compte l'élongation des particules avec une formulation analytique implicite. Si un calcul itératif pourrait être mis en œuvre pour obtenir une estimation du modèle autocohérent généralisé avec des ellipsoïdes (Bédoui *et al.*, 2004), on se propose plus simplement de faire appel au modèle de Mori Tanaka (Mori et Tanaka, 1973) pour étayer qualitativement cette tendance. En effet, bien que la validité de ce modèle soit limitée à de faibles fractions volumiques, sa révision par Benveniste (1987) permet de prendre en compte un facteur de forme des inclusions. Dans une configuration où le modèle est valide (une fraction

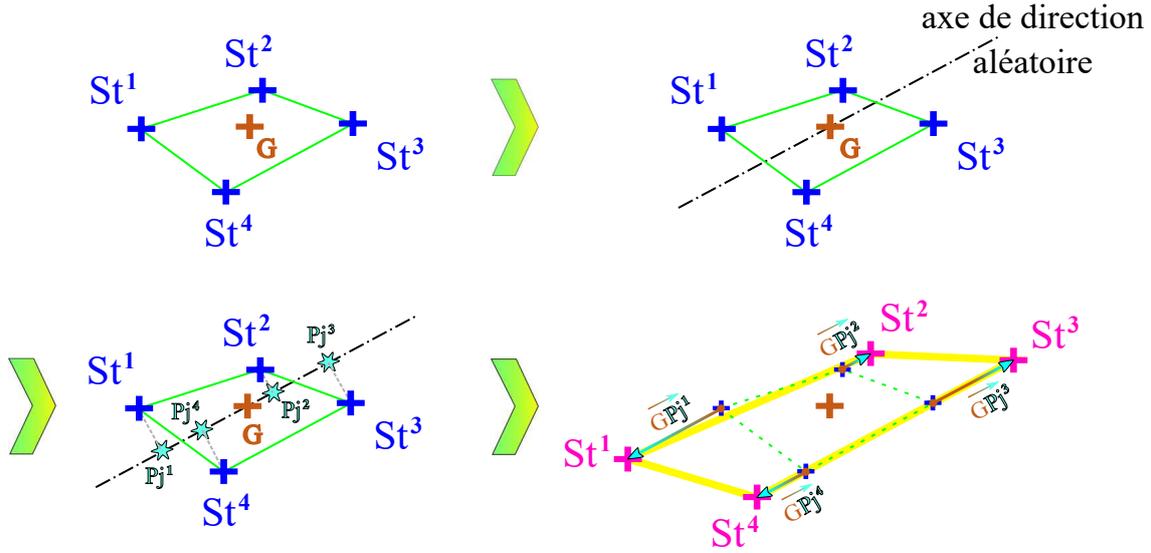


FIGURE 5.1 : Schématisation, en deux dimensions, de la séquence mise en œuvre pour obtenir des polyèdres allongés (sommets magenta, arêtes jaunes) à partir d'un polyèdre équiaxe (sommets bleus, arêtes vertes). Le Point G est le point de germination du polyèdre et les points P_j^i désignent les projetés des sommets originels sur l'axe de direction aléatoire.

volumique de particules de 15% a été choisie) et avec les paramètres matériaux de l'étude, on obtient l'évolution du module de cisaillement en fonction du facteur de forme reportée sur la Figure 5.3. Ainsi, si la différence de fraction volumique ne permet pas de confrontation directe, l'effet négligeable de l'élongement des particules est retrouvé avec cette approche analytique.

Comme évoqué plus haut, une approche semi-analytique du modèle autocohérent généralisé pourrait être mise en œuvre afin d'approfondir l'étude et de valider qualitativement ces résultats, de même une caractérisation expérimentale serait envisageable. Néanmoins, cette dernière démarche nécessiterait une confirmation de la répartition et l'orientation aléatoires des particules dans le matériau élaboré.

Dans le cas des grandes déformations, avec le jeu de paramètres de zone cohésive de référence (Tableau 3.1), la Figure 5.4 reporte le comportement et l'endommagement des microstructures de la Figure 5.2 avec des polyèdres équiaxes (approche classique) ou allongés d'un facteur 2.1 (élongation maximum obtenue pour $f_{vol}=45\%$). Il convient de noter que cette dernière microstructure présente, dans le cadre des petites déformations, une isotropie similaire à celle observée dans le cas des polyèdres équiaxes. On constate d'abord que ces configurations entraînent une divergence trop précoce pour analyser totalement l'impact de l'élongation des inclusions. Cependant, contrairement au comportement élastique, on note que l'allongement entraîne une rigidification non négligeable de la réponse endommagée. Si cet effet reste limité, il semble impacter le comportement dans la même mesure que l'irrégularité des particules (inclusions sphériques par rapport aux inclusions polyédriques, voir Figure 3.20).

Sur la base de cette étude, une analyse plus détaillée, considérant des microstructures contenant des ellipsoïdes avec une fraction volumique de 55% pourrait s'avérer très intéressante. Elle permettrait aussi de générer des polyèdres allongés à fortes fractions volumiques, à partir du diagramme de Voronoï du centre de ces ellipsoïdes. L'implémentation d'un algorithme de Lubachevsky et Stillinger (1990) pour des ellipsoïdes a d'ailleurs été proposé par Donev *et al.* (2005a,b). Néanmoins, l'algorithme complet n'est accessible que depuis quelques mois sur le site de Torquato. Ces nouvelles configurations, en particulier pour $f_{vol}=55\%$, nécessiteront une nou-

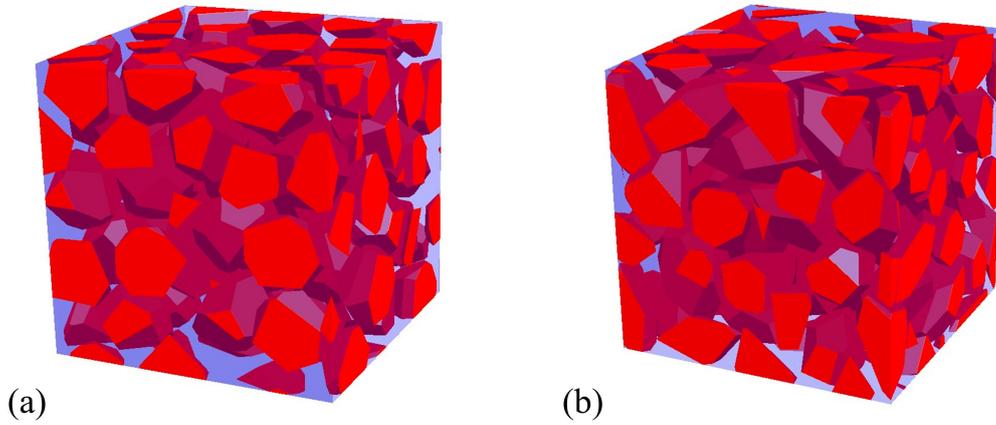


FIGURE 5.2 : Microstructures de référence pour l'analyse de l'impact du facteur de forme, $f_{\text{vol}}=45\%$ avec 64 polyèdres (a) équiaxe ou (b) avec un allongement d'un facteur 2.1.

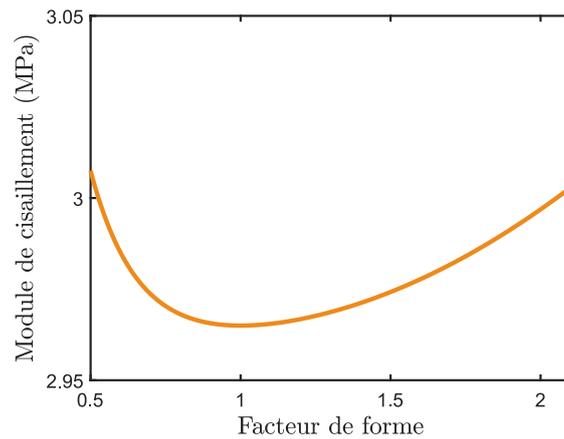


FIGURE 5.3 : Estimation du modèle de Mori Tanaka (Benveniste, 1987) en fonction du facteur de forme des inclusions, pour une fraction volumique de particules de 15%, avec les propriétés des constituants prises en compte dans le cadre des petites déformations (chapitre 2). Bien noter l'échelle très réduite de l'axe des ordonnées.

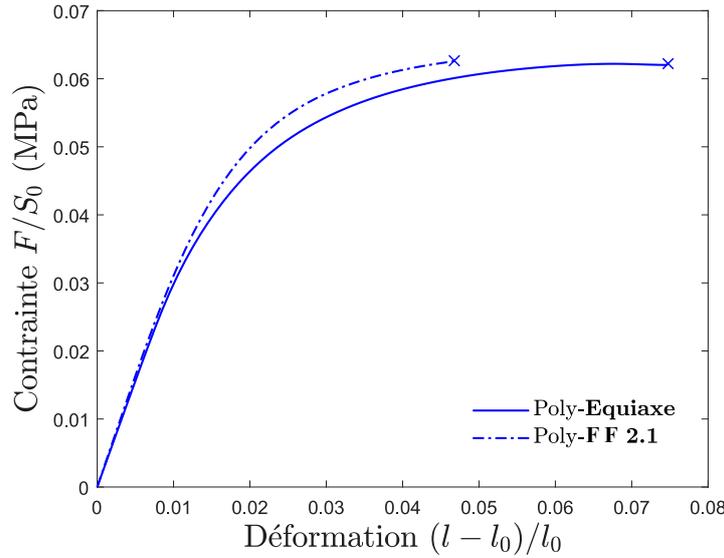


FIGURE 5.4 : Réponses en contrainte–déformation pour une traction uniaxiale de deux microstructures chargées avec des polyèdres équiaxe ou allongés (facteur de forme (\mathbf{F}) de 2.1) pour les paramètres de zone cohésive de référence (Table 3.1).

velle analyse du nombre de particules à prendre en compte pour obtenir un volume élémentaire statistique, conduisant vraisemblablement à la génération de microstructures de plus grande taille.

La réplique de l'ensemble du processus développé dans les chapitres deux et trois pour des particules allongées pourrait ainsi présenter un intérêt tout particulier pour mieux identifier l'impact des facteurs de forme. La paramétrisation de l'algorithme de génération pourrait alors se reposer sur les équations d'état des particules complexes qui peuvent être approximées sur la base de la *scaled particle theory* (Boublík, 1974; Reiss, 1992; Allen *et al.*, 1993). Cependant, l'introduction d'une élongation des particules nécessitera la prise en compte d'un nouvel état thermodynamique : l'état nématique (Frenkel et Mulder, 1985).

5.2.2 Différenciation des comportements cohésifs normaux et tangentiels

Par ailleurs, une simplification importante introduite lors de la simulation phénoménologique des zones cohésives est la non-différenciation des comportements normaux et tangentiels. Fort d'une connaissance approfondie de l'impact des différents paramètres de zone cohésive de la loi bilinéaire de Tvergaard et Hutchinson il serait possible de prendre en compte des comportements différenciés. Le modèle sélectionné dans le projet présente alors l'avantage de prendre en compte cette différenciation, illustrée sur la Figure 5.5(a), avec un unique paramètre (Tableau 5.1). L'impact d'une telle différenciation est reportée sur la Figure 5.5(b) où la réponse du composite est sensiblement modifiée aussi bien quand à l'initiation de l'endommagement que dans ses caractéristiques (inflexion).

La loi PPR, évoquée dans le chapitre trois (Gilormini et Diani, 2017), permet de son côté de différencier avec une plus grande flexibilité les deux comportements, mais au prix d'un grand nombre de paramètres de zone cohésive (Tableau 5.2). Les comportements obtenus sont reportés sur la Figure 5.6 avec les lois de zone cohésive implémentées. Le premier cas de différenciation, qui reprend les tendances globales de l'évolution de la loi TH différenciée, a une influence similaire sur le comportement global : une évolution proche de la configuration de référence mais avec une initiation précoce de l'adoucissement et un inflexion réduite. Ce constat renforce l'idée que

	K_n (MPa)	K_t (MPa)	T^c (MPa)	δ^f (mm)
référence	70	70	0.050	0.04
différencié	70	30	0.050	0.04

TABLE 5.1 : Paramètres de zone cohésive de la loi de Tvergaard et Hutchinson avec et sans différenciation.

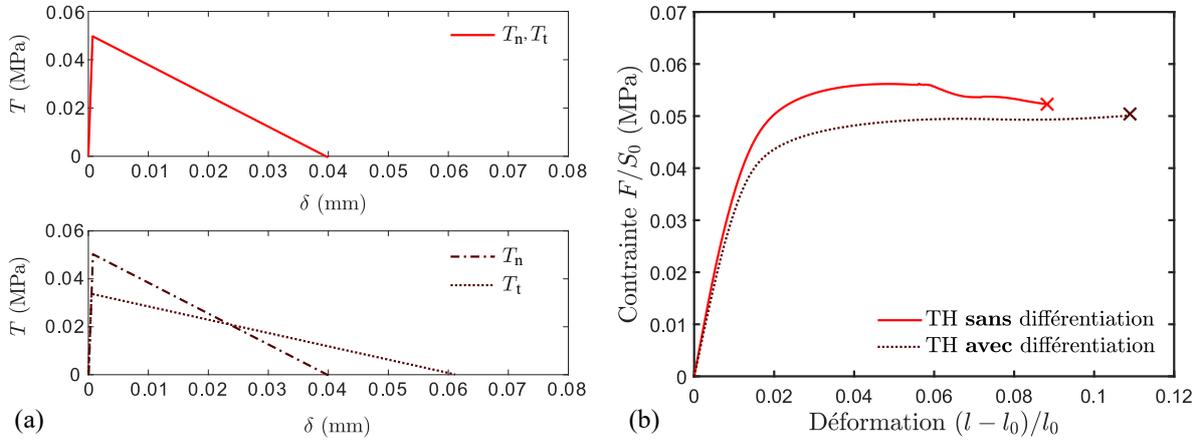


FIGURE 5.5 : (a) La loi de zone cohésive de Tvergaard et Hutchinson sans (haut) et avec (bas) différenciation des comportements normaux et tangentiels et (b) comportements macroscopique obtenus pour la microstructure de référence avec des sphères.

	Normal				Tangentiel			
	Γ_n (J/m ²)	T_n^c (MPa)	exp. _n	δ_n^c/δ_n^f	Γ_t (J/m ²)	T_t^c (MPa)	exp. _t	δ_t^c/δ_t^f
référence	1	0.05	3	0.05	1	0.05	3	0.05
cas 1	1	0.05	3	0.05	1	0.033	3	0.05
cas 2	1	0.05	3	0.05	0.5	0.033	3	0.05

TABLE 5.2 : Paramètres de zone cohésive de la loi PPR avec et sans différenciation des effort normaux et tangentiels (2 cas). Les paramètres correspondent aux propriétés de la loi TH (Figure 1.24), à l'exception de l'exposant (exp.) qui pilote l'évolution de la perte de raideur de cette loi cohésive.

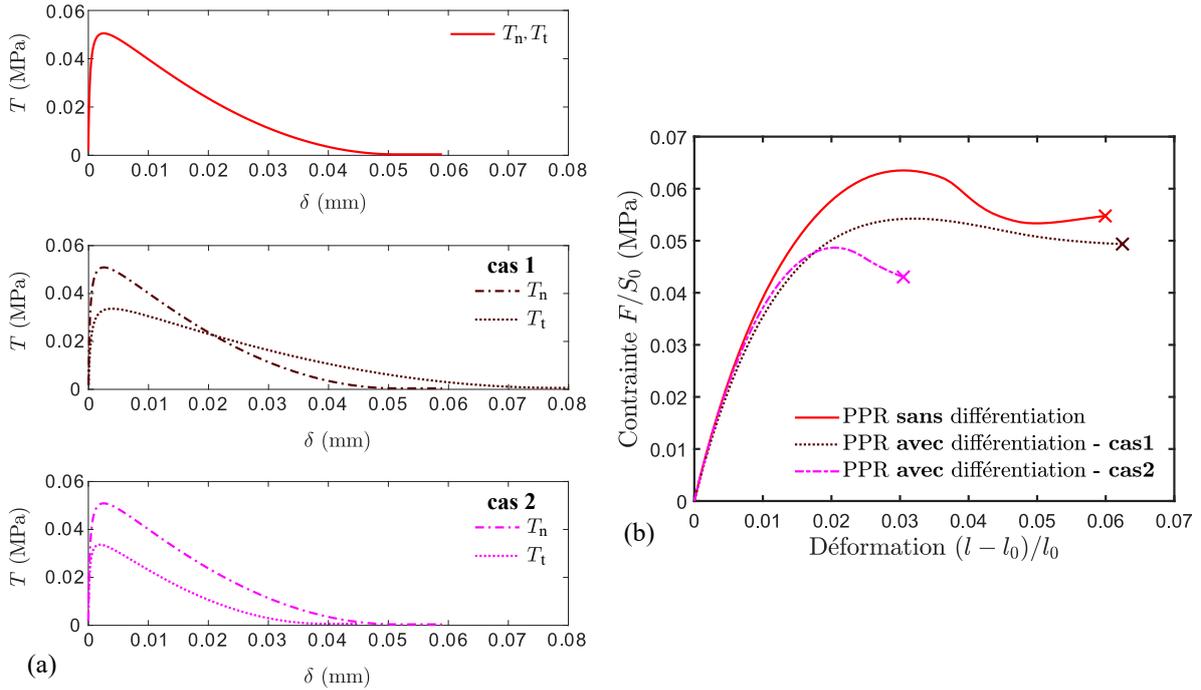


FIGURE 5.6 : (a) La loi de zone cohésive de Park-Paulino-Roesler sans (haut) et avec (milieu, bas) différenciation des comportements normaux et tangentiels et (b) comportements macroscopique obtenus pour la microstructure de référence avec des sphères.

pour des évolutions proches, les deux modèles de zone cohésive conduisent à des comportements similaires. Cependant, le second cas prend en compte une nouvelle évolution de la loi de zone cohésive tangentielle qui ne peut être obtenue avec la loi bilinéaire TH, conduisant alors à une modification bien plus notable du comportement de la même microstructure.

La prise en compte d'une plus grande variabilité de la zone cohésive semble donc induire des modifications importantes des comportements simulés et mériterait donc un approfondissement. Le comportement tangentiel implémenté ici présente toujours une contrainte critique T^c réduite par rapport au comportement normal, et ce de manière tout à fait arbitraire. Ainsi, cette nouvelle approche nécessite de mettre en place des démarches de caractérisation permettant d'identifier les différences de comportements aux interfaces, en fonction des directions de sollicitation de façon à s'assurer de la cohérence de la phénoménologie choisie pour les décohésions. Il ouvre aussi la voie à une étude de l'unicité des paramètres de zone cohésive pouvant conduire à un comportement en traction uniaxiale donné. Cette dernière analyse pourrait imposer de prendre en compte de nouvelles sollicitations mécaniques pour analyser l'endommagement des propegols ou des élastomères fortement chargés. L'étude des comportements obtenus par simulations numériques pour des sollicitations cycliques pourrait également s'avérer particulièrement intéressante en particulier pour suivre l'évolution de l'endommagement.

5.2.3 Analyse de l'impact de nouveaux paramètres sur l'endommagement

Un autre axe d'amélioration des simulations numériques consisterait à mettre plus clairement en évidence l'effet des phénomènes d'interphases qui ont été évoqués, notamment pour expliquer les différences de propriétés élastiques des quasi-propegols vis-à-vis des estimations numériques. Une étude détaillée a été proposée, en deux dimensions, par Toulemonde (2016) démontrant une influence importante de ces effets en particulier en cas de percolation des interphases. Une confi-

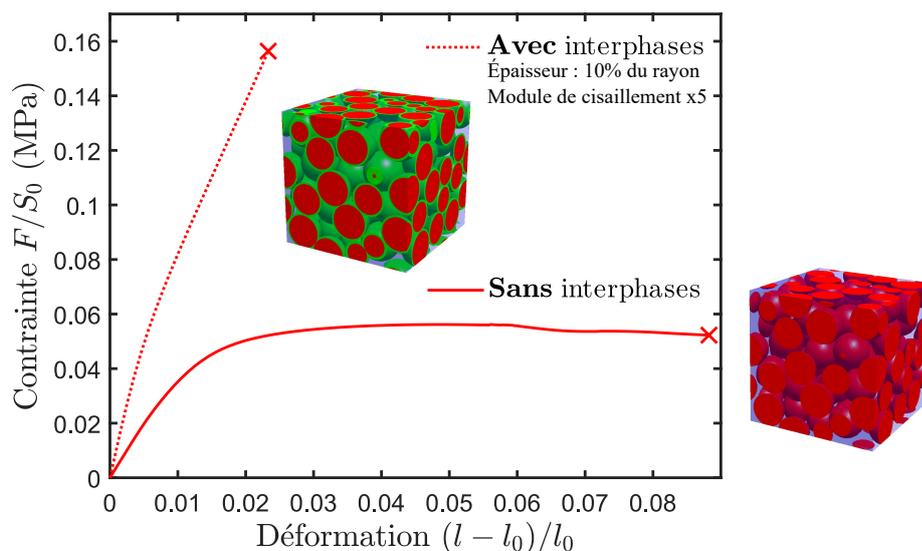


FIGURE 5.7 : Comportements macroscopiques obtenus pour la microstructure de référence avec des sphères et en présence d'une interphase ayant une épaisseur de 10% du rayon et une rigidification d'un facteur 5, le tout avec les paramètres de zone cohésive de référence (Tableau 3.1).

guration supplémentaire est proposée ici avec une épaisseur d'interphase correspondant à 10% du rayon des sphères et une rigidification du module de cisaillement de la loi d'Ogden d'un facteur 5. Le comportement alors obtenu est reporté sur la Figure 5.7 mettant en valeur une rigidification notable du comportement linéaire (facteur 2.75) et un adoucissement largement ralenti, bien qu'il semble s'initier au même niveau de contrainte globale. Une fois encore, la divergence numérique précoce empêche la simulation complète du comportement endommagé de cette nouvelle configuration. Une étude plus approfondie de ce phénomène, ainsi qu'une extension au cas des particules irrégulières, pourrait ouvrir une nouvelle voie à la compréhension du comportement des différents types de propergols et surtout à l'identification de stratégies d'optimisation des compositions ayant des propriétés mécaniques insuffisantes. Par ailleurs, l'effet de la fraction volumique n'a été que brièvement étudié (Figure 4.9) et mériterait une analyse plus approfondie.

Enfin, le développement d'un critère de rupture numérique nécessiterait de reconsidérer aussi bien l'impact du comportement de la matrice que celui de la polydispersité des charges, qui est courante dans les propergols opérationnels. L'endommagement étant piloté presque exclusivement par le comportement des interfaces, ces deux paramètres ont été négligés dans l'étude. Cependant, ils pourraient prendre une dimension particulière dans l'avènement de la ruine finale du matériau.

5.2.4 Microstructures avec un défaut de désordre

Les considérations relatives à la morphologie des propergols conduisent également à évoquer le cas des microstructures présentant une morphologie qui induit une rigidification très importante (Figure 2.25). Dans la mesure où ce type de phénomène semble avoir été identifié dans les quasi-propergols du chapitre quatre, il serait particulièrement intéressant de développer des méthodes de caractérisation de ces phénomènes à partir d'observations tomographiques pour mettre en évidence les procédés et les configurations qui induisent ces morphologies et les contrôler plus précisément. Des tentatives de simulation en grandes déformations avec zones cohésives des microstructures présentant ce type de défaut morphologique ont été mises en œuvre. Cependant,

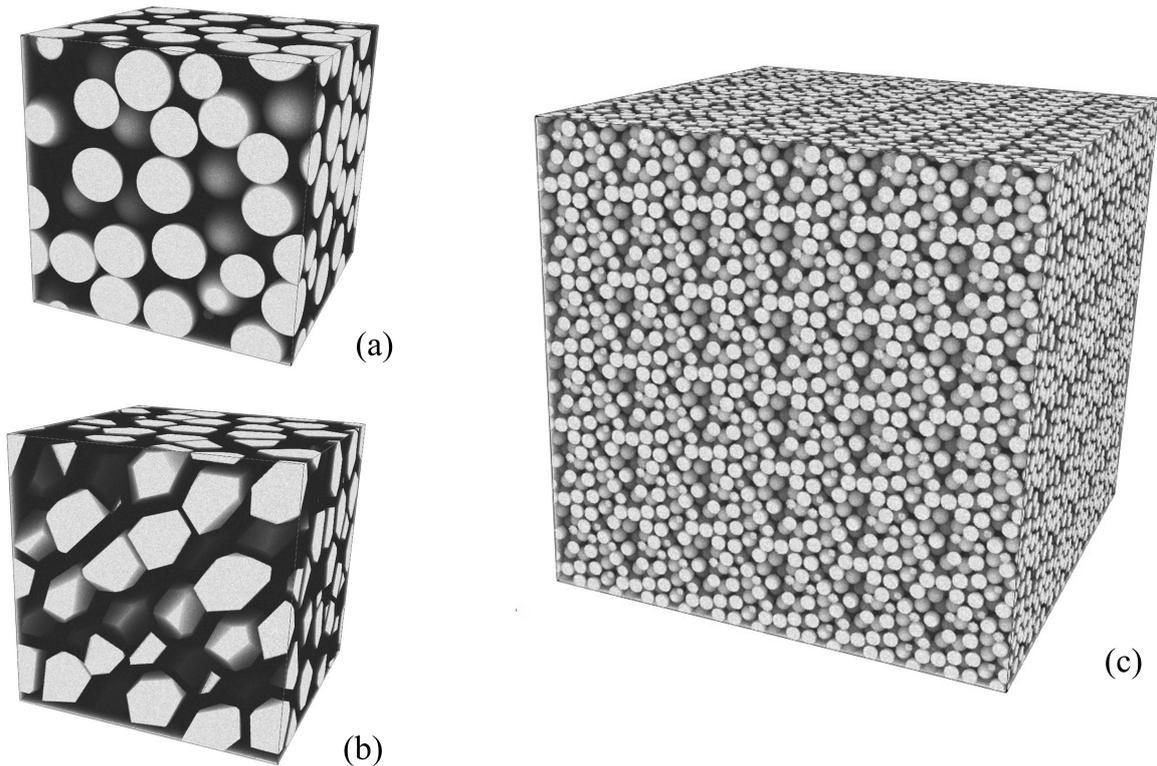


FIGURE 5.8 : Images volumiques artificielles obtenues à partir de deux microstructures numériques contenant (a) des sphères ou (b) des polyèdres allongés avec une résolution de $2 \cdot 10^{-3} a/vx$. a est la longueur d'un côté de la cellule. (c) Images volumiques artificielle obtenues par duplication 215 fois d'une microstructure contenant des sphères avec une résolution de $1.2 \cdot 10^{-2} a/vx$. a est la longueur d'un côté de la cellule originale.

du fait d'une influence trop importante de la rigidité initiale K des zones cohésives, le phénomène de rigidification sur la phase linéaire est largement réduit et une divergence numérique trop précoce empêche d'analyser précisément l'influence de ce phénomène sur l'endommagement. Ce constat renforce la nécessité d'approfondir les stratégies d'optimisation de la convergence numérique pour étendre la gamme de rigidité initiale K des éléments cohésifs permettant de simuler un comportement endommagé. L'analyse et la compréhension de ces effets morphologiques constituent donc un défi exigeant, cependant, il pourrait s'avérer particulièrement intéressant dans le cadre industriel.

5.2.5 Utilisation additionnelle des microstructures numériques

Enfin, la nécessité de développer les outils de caractérisation morphologique des propegols ouvre de nouvelles perspectives aux microstructures générées dans l'étude. En effet, ces dernières sont définies avec un niveau de précision très important. La caractérisation avec la fonction de corrélation à deux points a nécessité le développement de stratégies optimisées de *voxélisation* des cellules. Aussi, il est envisageable d'utiliser ces discrétisations pour générer des tomographies artificielles. De plus, il est possible de perturber les images volumiques alors obtenues pour prendre en compte les défauts caractéristiques des acquisitions tomographiques et finalement tester des outils de caractérisation morphologique. Il est alors possible de confronter les propriétés mesurées, à l'issue de l'analyse morphologique, aux propriétés réelles des microstructures numériques, qui sont connues avec une précision remarquable.

La périodicité des microstructures peut également être exploitée en dupliquant une même cellule pour obtenir des structures de taille supérieure. Ces dernières peuvent alors servir de base pour étudier la représentativité d'une tomographie, pour une propriété donnée (Blanc, 2007). En effet, au-delà de la caractérisation précise d'un échantillon tomographié, la validation de sa représentativité est essentielle afin de s'assurer que sa taille est suffisante pour la propriété mesurée. Les structures étant obtenues à partir d'une seule cellule élémentaire, des sous volumes peuvent être échantillonnés et caractérisés afin d'évaluer la sensibilité des outils de caractérisation de la représentativité d'un échantillon tomographique. Des exemples de microstructures *voxélisées* sont ainsi reproduits sur la Figure 5.8. Ils ont été utilisés, dans le cadre industriel, pour valider une méthode de caractérisation spécifiquement focalisée sur la mesure de la fraction volumique de charges des propergols par tomographie. Ces mesures sur des volumes parfaitement connus permettent de mettre précisément en évidence la complexité d'identifier des propriétés par tomographie. En effet, plus l'échantillon est petit, plus la résolution sera fine et donc la caractérisation sera précise. Cependant, un échantillon trop réduit conduit à une mesure minutieuse mais en contradiction avec les propriétés du bloc dont il est issu. Si cette première propriété étudiée reste élémentaire, le processus d'analyse peut être étendu à de nombreuses autres caractéristiques (sphéricité, orientation, granulométrie, ...)

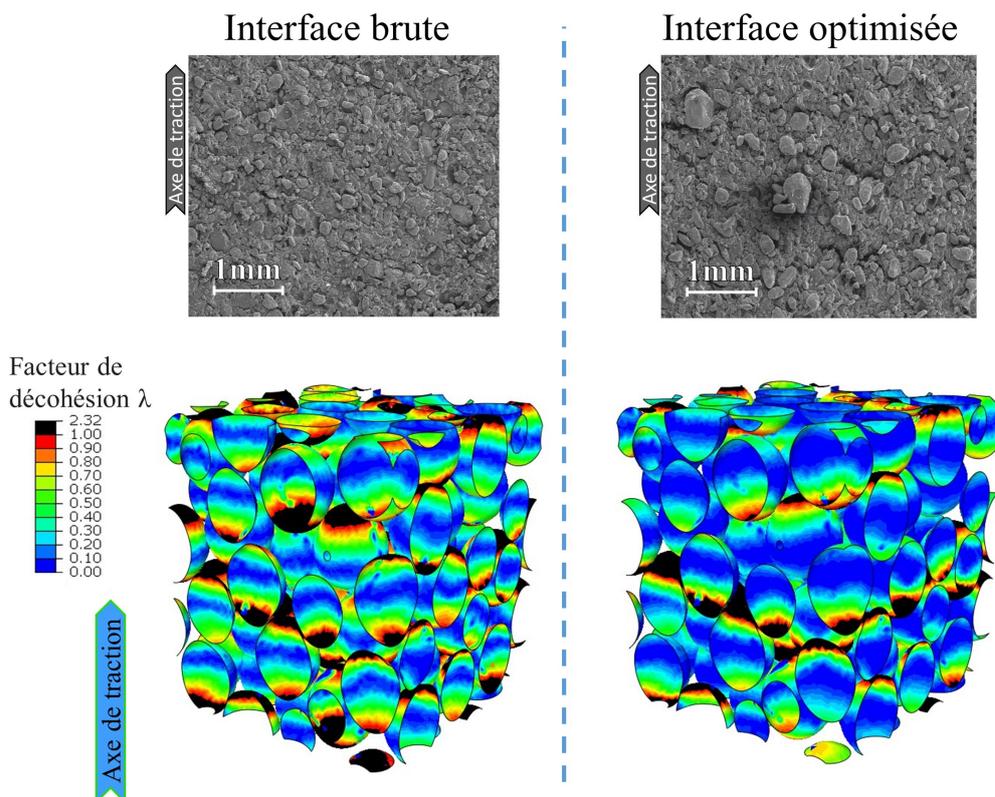


FIGURE 5.9 : Identification expérimentale des propriétés d'interface optimisées à partir des champs d'endommagement obtenus par simulation numérique. Cette approche permet de caractériser précisément l'impact des stratégies d'amélioration du comportement mise en œuvre lors de l'élaboration de ces propergols.

5.3 Bilan final

On propose de conclure ce projet en soulignant la compréhension de l'endommagement apportée par les simulations numériques bien que ces dernières puissent être largement enrichies afin de devenir quantitativement prédictives. La caractérisation de l'amélioration d'interface détaillée en section 4.4.1 met en évidence non seulement une des applications directes de la compréhension apportée par le projet de recherche, mais aussi la cohérence remarquable entre les champs d'endommagement simulés et observés expérimentalement. Cette adéquation notable est reportée sur la Figure 5.9 qui résume un des aboutissements notables de ce projet. Ainsi, si la complexité des propergols entrave le développement de simulations parfaitement représentatives et donc prédictives, les simplifications qui ont été proposées ont permis de se focaliser sur les propriétés ayant un effet de premier ordre sur l'endommagement. Elles conduisent alors à une meilleure compréhension de leurs influences respectives. Cette approche numérique réduite offre la possibilité d'identifier des phénomènes ou des propriétés qui restent inaccessibles ou difficilement reconnaissables à partir de caractérisations expérimentales, même très élaborées.

Table des figures

1	Principaux organismes acteurs du projet.	IX
1.1	Utilisation de la propulsion solide dans la prochaine génération de lanceur spatiaux en Europe comme aux États-Unis (ArianeGroup ; NASA, 2019). Les boosters chargés en propergol sont surlignés en vert.	6
1.2	Classification des matériaux énergétiques.	7
1.3	Exemples de moteurs à propulsion solide (ArianeGroup).	9
1.4	Observations au microscope électronique à balayage (MEB) de charges (a) de perchlorate d’ammonium et (b) de RDX couramment utilisées dans les formulations de propergols. Images obtenues sur le MEB <i>Zeiss JSM-6510</i> du centre de recherche du Bouchet (CRB) d’ArianeGroup pour une accélération de faisceau de 10 kV (ArianeGroup).	9
1.5	Plans de coupe tomographiques de propergols simplifiés à liant inerte chargés en PA (a) et RDX (b) et d’un propergol simplifié à liant nitré chargé en RDX (c). Observations obtenues sur le microtomographe <i>Skyscan 1072</i> du centre de recherche du Bouchet (CRB, ArianeGroup), avec une résolution de $6.7 \mu\text{m}/\text{vx}$ et les paramètres de source suivant : 65 kV–152 μA , 46 kV–219 μA et 65 kV–152 μA	10
1.6	Observations MEB des (a) billes de verre et des (b) éclats de verre tamisés introduits dans les matériaux composites modèles. Images obtenues sur le microscope électronique à balayage <i>Hitachi 4800 II</i> du laboratoire PIMM (ENSAM, Paris), pour une accélération de faisceau de 3 kV.	12
1.7	Microstructures en trois dimensions obtenues par tomographie (a) du composite modèle avec des billes de verre et (b) du composite modèle avec des éclats de verre pour une fraction volumique de 55% dans les deux cas. Observations obtenues sur le microtomographe <i>Skyscan 1072</i> du centre de recherche du Bouchet (CRB, ArianeGroup), avec une résolution de $6.7 \mu\text{m}/\text{vx}$ et des paramètres de source de 65 kV–152 μA	13
1.8	(a) Comportements mécaniques en traction uniaxiale à 20°C et $5\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$ de liants inerte et nitré. (b) Réponse sur un cycle de traction à 20°C et $5\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$ d’un liant nitré. Pour l’ensemble des comportements expérimentaux reportés dans ce projet, le symbole \star correspond à la rupture du matériau.	14
1.9	Comportement mécanique en traction uniaxiale à 20°C et $0.1\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$ d’un méthacrylate.	14
1.10	Comportements en traction uniaxiale à $50\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$ et 20°C d’un propergol à liant inerte et d’un propergol à liant nitré.	15
1.11	Synopsis des sollicitations cycliques proposés par Heuillet (1992) pour mettre en évidence l’endommagement des propergols et identification des énergies dissipées/stockées d’un propergol à liant inerte.	16

1.12	Variation de volume en traction uniaxiale à 20°C et 0.1mm.min ⁻¹ d'un propergol à liant inerte et du composite modèle avec billes (Toulemonde, 2016).	17
1.13	Comportements en traction uniaxiale à 20°C et 0.1mm.min ⁻¹ de trois échantillons de chacun des composites modèles.	17
1.14	Comportement mécanique sous sollicitation cyclique jusqu'à rupture à 20°C et 5mm.min ⁻¹ d'un propergol à liant nitré.	18
1.15	Évolution schématique de la variation de volume sous sollicitations cycliques (a) d'un propergol (d'après Tunç et Özüpek (2017)) (b) d'un caoutchouc chargé au noir de carbone (d'après Zhang <i>et al.</i> (2013)).	19
1.16	Observations AFM des petites particules (a) de compositions à liant inerte avec des interfaces importantes et percolantes et (b) de composition à liant nitré pour lequel les interfaces sont quasiment absentes. Les analyses ont été réalisées sur deux appareils différents d'où la modification des échelles de couleur (ArianeGroup).	20
1.17	Comportement en traction uniaxiale à 5mm.min ⁻¹ et 20°C d'un propergol à liant inerte avec suivi de sa variation de volume. Les liens avec les phénomènes microstructuraux sont illustrés par des observations MEB réalisées au début de chacune des étapes de l'endommagement.	20
1.18	Localisations intervenant pour des déformations au moins 20% inférieures à la rupture : (a) Champs de déformation longitudinale d'un propergol à liant inerte soumis à une traction (20%), de nombreuses zones ponctuelles de localisation sont réparties uniformément. (b) champs de déformation longitudinale d'un propergol à liant nitré soumis à une traction (16%), trois zones de localisation macroscopique sont visibles. (c) Observations MEB d'un propergol à liant nitré sollicité en traction uniaxiale (7%), la localisation de l'endommagement par coalescence des décohésions est nettement visible. Images obtenues sur le MEB Zeiss JSM-6510 du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 10 kV.	22
1.19	Coupes issues de microtomographies du composite modèle chargé avec des billes dans son état initial puis à 5%, 10% et 15% de déformation uniaxiale. Observations obtenues sur le microtomographe Ultratom développé par RX-Solutions du laboratoire Navier (École nationale des ponts et chaussées ParisTech), pour les paramètres de source de 73 kV-70 μA (Toulemonde, 2016).	23
1.20	Influence schématique des conditions aux limites sur l'estimation des propriétés élastiques d'une microstructure (d'après Kanit <i>et al.</i> (2003)). L'effet de la taille de la structure sur la dispersion des propriétés est aussi nettement visible.	26
1.21	Évolution théorique de la pression d'un système de sphères rigides en fonction de la fraction volumique (d'après Rintoul et Torquato (1996a)).	28
1.22	Fonction de corrélation à deux points S_2 évaluée pour (a) une distribution de Percus-Yevick et (b) une structure parfaitement ordonnée (FCC), toutes deux contenant 55% de fraction volumique de particules.	30
1.23	Fonction de corrélation à deux points S_2 évaluée à partir d'une tomographie (Figure 1.7(a)) du composite modèle contenant 55% de fraction volumique de billes.	31
1.24	(a) Principe des zones cohésives à l'échelle d'une décohésion. (b) Zoom sur la zone cohésive : les points I_1 et I_2 initialement confondus sont désormais séparés par une distance δ et exercent l'un sur l'autre un effort T. En trois dimensions, ces deux grandeurs sont généralement multiaxiales avec une composante normale (indice $-n$) et une composante tangentielle (indice $-t$ ou indices $-t_1$ et $-t_2$).	32

1.25	Loi de Tvergaard et Hutchinson pour un élément cohésif soumis à un déplacement purement normal δ_n (ou purement tangentiel δ_t) pilotée par trois paramètres indépendants parmi les cinq (K , Γ , T^c , δ^c , δ^f) affichés.	33
2.1	Exemple de configurations prélevées au cours de la génération d'une microstructure avec l'algorithme de Lubachevsky et Stillinger (1990) pour une distribution de vitesse pilotée par la température $T = 0.2$ et un facteur de grossissement $g_{fact}(t) = 0.005$	41
2.2	Trois types d'évolution de la pression réduite en fonction du rapport g_{fact}/T comparés à l'équation d'état (EOS) de Carnahan-Starling-Kolafa (Boublík et Nezbeda, 1986).	43
2.3	(a) Fonction de corrélation à deux points S_2 et (b) distribution des plus proches voisins H_v typiquement obtenues pour des microstructures montrant une chute de pression durant leur génération (Figure 2.2).	44
2.4	(a) Fonction de corrélation à deux points S_2 et (b) distribution des plus proches voisins H_v typiquement obtenues pour des microstructures montrant une pression divergente durant leur génération (Figure 2.2).	44
2.5	Schéma détaillant les paramètres de la formulation des conditions aux limites périodiques (Eq. (2.5)).	46
2.6	(a) Exemple d'une microstructure générée avec 64 sphères pour $f_{vol}=55\%$. (b) Sa discrétisation périodique obtenue avec Netgen (c) Zoom illustrant le raffinement local du maillage qui a été implémenté.	46
2.7	Valeurs moyennes et dispersion des modules de Young (a) et de cisaillement (b) normalisés par ceux de la matrice, obtenues avec six microstructures contenant une fraction volumique (f_{vol}) de 50% de sphères en fonction des interdistances minium normalisées. La dispersion des modules est obtenue en évaluant le comportement de chaque microstructure suivant ses trois axes principaux.	47
2.8	Processus de génération d'une microstructure chargée avec une distribution aléatoire de polyèdres irréguliers. (a) Initialisation à partir d'une distribution aléatoire de sphères ($f_{vol} = 55\%$). (b) Utilisation de leur centre en tant que point de germination du diagramme de Voronoï. (c) Les particules sont contractées pour faire décroître la fraction volumique de 100 à 55%. (d) Application à chaque polyèdre de rotation et translations aléatoires.	48
2.9	Exemple de microstructure générée avec 64 polyèdres pour $f_{vol}=55\%$ (a) avant et (b) après son maillage en vue de l'analyse éléments finis.	50
2.10	Propriétés élastiques de microstructures chargées à 55% avec des polyèdres irréguliers en fonction de leur nombre. Cinq microstructures ont été testées pour chaque nombre d'inclusions considéré. Pour faciliter l'identification de la convergence, une ligne en pointillés reporte le comportement moyen de toutes les configurations testées et l'étendue de la dispersion obtenue avec les microstructures contenant 64 particules est couverte par une bande bleutée.	50
2.11	Étapes du processus d'élaboration des deux matériaux composites et des échantillons de matrice pure.	52

2.12	(a) Échantillon du matériau composite avec des billes de verre après les étapes de découpe et de collage. (b) Éprouvette prête pour la caractérisation en traction. On distingue les marqueurs blancs pour la vidéoextensométrie, les mors en aluminium collés et enfin leurs supports assurant la compatibilité du montage avec des fixations standard de la machine de traction.	53
2.13	Comportements mécaniques en traction uniaxiale à 20°C et 0.1mm.min ⁻¹ de trois éprouvettes de matrice pure.	54
2.14	Comportements mécaniques en traction uniaxiale à 20°C et 0.1mm.min ⁻¹ de quatre éprouvettes de composite contenant 52±1% de fraction volumique de billes de verre.	54
2.15	Comportements mécaniques en grandes déformations pour une traction uniaxiale à 20°C et 0.1mm.min ⁻¹ de trois éprouvettes de matrice pure. Une évolution rectiligne est ajoutée pour mettre en évidence la non-linéarité des comportements.	55
2.16	Comportements mécaniques en grandes déformations pour une traction uniaxiale à 20°C et 0.1mm.min ⁻¹ de trois éprouvettes des composites modèles contenant 55±1% de fraction volumique respectivement de billes et d'éclats de verre.	56
2.17	Modules de Young (a) et de cisaillement (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux des vingt microstructures contenant une fraction volumique de 55% de sphères. Les lignes en pointillés représentent les moyennes des modules sur l'ensemble de la série. (c) Critère supplémentaire d'isotropie évalué à partir du rapport des valeurs moyennes des modules de Young et de cisaillement calculés pour chaque microstructure.	58
2.18	Évolution de la fonction S_2 pour quatre microstructures contenant 64 sphères représentant 55% de la fraction volumique et dans le cas d'une évolution de Percus-Yevick. L'échelle de couleur a été réduite afin de faciliter l'analyse.	59
2.19	Comparaison des distributions des plus proches voisins des microstructures 6 (a) et 11 (b) avec la distribution théorique d'un système parfaitement aléatoire (pointillés noirs) contenant une fraction volumique de 55% de sphères.	60
2.20	Évolution de la fonction S_2 pour les six autres microstructures sélectionnées contenant 64 sphères représentant 55% de la fraction volumique.	61
2.21	Évolutions coïncidentes des distributions des plus proches voisins H_v des sept microstructures sélectionnées contenant 64 sphères représentant 55% de la fraction volumique avec la distribution théorique d'un système parfaitement aléatoire dans cette configuration (pointillés noirs).	62
2.22	Modules de Young (a) et de cisaillement (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux des sept microstructures sélectionnées selon les critères géométriques S_2 et H_v (Figures 2.20 et 2.21). Les lignes en pointillés représentent les moyennes des modules pour les sept microstructures. (c) Critère supplémentaire d'isotropie évalué à partir du rapport des valeurs moyennes des modules de Young et de cisaillement pour ces microstructures.	63
2.23	Modules de cisaillement obtenus à partir des VER et des simulations éléments finis pour une matrice polymérique (Module de Young E_m) dans un état caoutchoutique (a) ou vitreux (b). La fraction volumique est de 55% en sphères et les résultats sans barre d'erreur sont directement extraits de la seule caractérisation de la microstructure numéro 14 (suivant les 3 axes principaux).	64

2.24	Cohérence globale entre les propriétés obtenues par analyse éléments finis (dans chaque cas, moyenne obtenue sur sept microstructures sélectionnées), dans l'étude de Gusev (2016) , avec le modèle GSC, et expérimentalement.	65
2.25	Modules de Young (a) et de cisaillement (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux de deux microstructures ayant montrées une pression divergente lors de la génération jusqu'à la fraction volumique de 55% de sphères. (c) Critère supplémentaire d'isotropie évalué à partir du rapport des valeurs moyennes des modules de Young et de cisaillement. Pour faciliter la comparaison avec les microstructures représentatives, leurs comportements moyens ainsi que la dispersion sont reportés avec et sans sélection des VER.	66
2.26	Modules de Young (a) et de cisaillement (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux de vingt microstructures contenant une fraction volumique de 55% de polyèdres. Les lignes en pointillés représentent les moyennes des modules sur l'ensemble de la série. (c) Critère d'isotropie évalué à partir du rapport des modules de Young et de cisaillement moyen pour chaque microstructure.	68
2.27	Modules de Young (a) et de cisaillement (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux, de sept microstructures avec sphères sélectionnées selon les critères géométriques (S_2 & H_v) et de vingt microstructures avec polyèdres, contenant toutes deux une fraction volumique de 55%. La dispersion des propriétés ainsi que leur moyenne sont mises en évidence pour faciliter la comparaison.	70
3.1	Illustration de l'élément cohésif prismatique à 12 nœuds implémenté dans les simulations (les nœuds dupliqués sont identifiés par " ' ") avec son repère local $(\vec{n}, \vec{t}_1, \vec{t}_2)$, son déplacement $\vec{\delta}$ et les efforts transmis \vec{T}	81
3.2	Validation, pour une unique zone cohésive, du comportement implémenté via la UEL. Le comportement des 2x2 éléments qui entourent la zone cohésive est définie comme infiniment rigide comparé à l'interface.	83
3.3	Comparaison de la réponse en contrainte-déformation d'une microstructure numérique soumise à une traction uniaxiale en implémentant, ou non, un facteur de viscosité dans la loi de zone cohésive de Tvergaard et Hutchinson (1993) . La divergence numérique est identifiée par une croix.	84
3.4	Observation classique (a) du champ de contraintes et de déformations par rapport à une analyse directe (b) du champ de facteur de décohesion λ pour une microstructure réduite à 8 sphères ($f_{vol} = 55\%$).	85
3.5	Les quatre étapes du comportement en traction uniaxiale du composite chargé avec 55% de billes de verre, combinées à des coupes tomographiques illustrant l'état d'endommagement local à chaque étape.	86
3.6	Illustration de l'évolution des trois lois de zone cohésive étudiée en détails. Leurs paramètres correspondants sont listés dans la Table 3.1. Les symboles permettent d'identifier la séparation maximum atteinte par l'élément le plus endommagé au moment de la divergence, pour la microstructure de référence chargée avec des sphères.	87
3.7	Réponses en contrainte-déformation de deux microstructures pour le premier jeu de paramètres de zone cohésive (Tableau 3.1) et soumises respectivement à trois et une seule traction uniaxiale selon les axes principaux de la cellule.	88

3.8	Champs de décohésions pour des déformations de 4, 8 et 10% (a–c respectivement) pour le comportement global suivant l’axe Y reporté sur la Figure 3.7.	89
3.9	(a) Réponse en contrainte–déformation de la microstructure de référence avec des sphères pour le deuxième jeu de paramètres de zone cohésive (Tableau 3.1), (b) Champs de décohésions au moment de la divergence.	90
3.10	(a) Réponse en contrainte–déformation de la microstructure de référence avec des sphères pour le troisième jeu de paramètres de zone cohésive (Table 3.1). (b) Champs de décohésions au moment de la divergence.	91
3.11	Comparaison de la réponse en traction uniaxiale du composite simplifié avec des billes de verre (expérimental) et d’un VER avec sphères pour les paramètres de zone cohésive de référence (numérique).	92
3.12	Influence de la rigidité initiale K sur (a) la loi de zone cohésive et impact sur (b) le comportement macroscopique pour la microstructure de référence avec des sphères. Sur la loi de zone cohésive, les symboles permettent de localiser la séparation maximum atteinte par l’élément le plus endommagé au moment de la divergence dans chacun des trois cas.	93
3.13	Influence du paramètre de contrainte critique T^c sur (a) la loi de zone cohésive et impact sur (b) le comportement macroscopique pour la microstructure de référence avec des sphères. Sur la loi de zone cohésive, les symboles permettent de localiser la séparation maximum atteinte par l’élément le plus endommagé au moment de la divergence dans chacun des trois cas.	93
3.14	Influence du déplacement à rupture δ^f sur (a) la loi de zone cohésive et impact sur (b) le comportement macroscopique pour la microstructure de référence avec des sphères. Sur la loi de zone cohésive, les symboles permettent de localiser la séparation maximum atteinte par l’élément le plus endommagé au moment de la divergence dans chacun des trois cas.	94
3.15	(a) Évolution des deux lois de zone cohésive pour les paramètres de référence avec Tvergaard et Hutchinson (1993) (TH) et une configuration approchante avec Park <i>et al.</i> (2009) (PPR). (b) Comportements uniaxiaux macroscopiques obtenus pour les deux lois implémentées avec la microstructure de référence avec des sphères.	95
3.16	Champs décohésion de la microstructure de référence avec des sphères pour (a) le premier jeu de paramètres de zone cohésive (7% de déformation) (b) la configuration avec un déplacement à rupture δ^f réduit (comportement de la Figure 3.14)(5% de déformation) et (c) la configuration avec la loi de zone cohésive PPR (Figure 3.15(a)) pour une déformation de 5%. On note que la localisation de l’endommagement se concentre sur des plans différents avec des variations notables du nombre d’éléments endommagés.	96
3.17	Observation MEB d’un propergol à liant inerte sollicité en traction uniaxiale (16% de déformation) : les fibrilles interfaciales sont nettement visibles. Image obtenue sur le MEB Zeiss JSM-6510 du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 3 kV.	97
3.18	Réponses en contrainte–déformation de deux microstructures avec des polyèdres pour le premier jeu de paramètres de zone cohésive. Elles sont soumises respectivement à trois et une seule traction uniaxiale selon les axes principaux de la cellule. Les carrés noirs correspondent à l’état de contrainte–déformation des champs de décohésions visibles sur la Figure 3.19.	98

3.19	Champs de décohésions pour des déformations de 5, 8 and 10% (a–c respectivement) correspondant au comportement suivant l’axe Z sur la Figure 3.18.	98
3.20	Réponses en contrainte–déformation pour une traction uniaxiale des microstructures chargées avec des sphères ou des polyèdres pour les trois jeux de paramètres de zone cohésive listés dans le Tableau 3.1.	99
3.21	Champs de décohésion pour des VER chargés avec de sphères (a–c) ou des polyèdres (d–f) pour les trois jeux de paramètres de zone cohésive listés dans le Tableau 3.1 (colonne) pour des déformations uniaxiales macroscopiques de 10.6%, 10.6% et 9.4% respectivement.	100
3.22	Comparaison quantitative des comportements en grandes déformations des deux composites simplifiés (avec billes et éclats de verre), d’un VER avec sphères pour le premier jeu de paramètres de zone cohésive de référence et d’un VER avec polyèdres pour le second jeu de paramètres de zone cohésive.	102
4.1	(a) Comportements en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min des liants de base des quasi-propergols avec (b) un agrandissement sur la réponse aux petites déformations.	110
4.2	Tomographie de la dernière composition à base de liant inerte et contenant du perchlorate d’ammonium (a) en surface et (b) à cœur (coupes). Observations obtenues sur le microtomographe <i>Skyscan 1072</i> du CRB (ArianeGroup), avec une résolution de 6.7 $\mu\text{m}/\text{vx}$ et des paramètres de source de 65 kV et 152 μA	111
4.3	Tomographie de la deuxième composition à base de liant inerte et contenant du RDX (a) en surface et (b) à cœur (coupes). Observations obtenues sur le microtomographe <i>Skyscan 1072</i> du CRB (ArianeGroup), avec une résolution de 6.7 $\mu\text{m}/\text{vx}$ et des paramètres de source de 46 kV et 219 μA	112
4.4	(a) Principe de mesure de la variation de volume par dilatométrie à gaz et (b) exemple de caractérisation obtenue pour la première composition.	113
4.5	Comportements en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min de deux échantillons de chacun des types de quasi-propergol dont les caractéristiques sont listées dans le Tableau 4.1.	113
4.6	Comportements en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min en petites déformations de la première composition, avec le module de Young correspondant.	114
4.7	Comportements en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min en petites déformations des compositions deux et trois contenant des charges de RDX, avec les modules de Young correspondants.	115
4.8	Comportements en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min pour les premiers niveaux de sollicitation des compositions une, deux et quatre toutes les trois à base de liant inerte avec les modules de Young correspondants.	116
4.9	Simulations numériques de la réponse en contrainte–déformation de la microstructure de référence contenant une fraction volumique de 55% de sphères et une autre microstructure contenant une fraction volumique de 50% de sphères, toutes deux avec le jeu de paramètres de zone cohésive de référence.	117

4.10	Comportements en traction uniaxiale jusqu'à rupture à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min des quasi-propergols, mesurée au dilatomètre Farris. Dans le cas de la troisième composition, aucune variation de volume n'a été enregistrée.	118
4.11	Comportements jusqu'à rupture en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min de la première et la quatrième composition, toutes les deux à base de liant inerte et contenant du perchlorate d'ammonium.	119
4.12	Simulations numériques de la réponse en contrainte-déformation pour la micro-structure de référence avec des sphères (jeu de paramètres de zone cohésive de référence) et avec une multiplication du module de cisaillement du modèle d'Ogden.	120
4.13	Synopsis des chargements mécaniques appliqués aux compositions afin d'obtenir une évaluation de leur énergie d'endommagement suivant les trois étapes de la démarche d'Heuillet (1992). On y retrouve le cycle primaire pour lequel les trois densités d'énergie peuvent être identifiées puis, pour la même éprouvette, les cycles incrémentaux qui permettent d'identifier une densité d'énergie élastique et dissipée. Les densités d'énergies viscoélastiques et d'endommagement sont différenciées grâce à la sollicitation supplémentaire indirecte , c'est à dire appliquée à une nouvelle éprouvette, présentée sous le synopsis du chargement mécanique principal. Un exemple de comportements obtenus est reporté sur la Figure 4.14.	121
4.14	Identification de la répartition des densités d'énergie lors des sollicitations mécaniques de la première composition ((a) sollicitation primaire, (b) sollicitation incrémentale avec l'énergie pseudo-viscoélastique identifiée indirectement). La densité associée à l'élasticité est repérée en vert, celle associée aux effets viscoélastiques en rouge et celle associée à l'endommagement en bleu.	122
4.15	Échantillon de quasi-propergol collé à des mors en aluminium élargis, compatibles avec une machine de traction et permettant un maintien en relaxation grâce aux deux tiges visibles de part et d'autre.	123
4.16	Observations MEB des quatre compositions de quasi-propergols respectivement de (a) à (d) avant chargement mécanique. Images obtenues sur le MEB <i>Zeiss JSM-6510</i> du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 8 kV.	124
4.17	Observations MEB de la première composition soumise à une déformation de 11%. Images obtenues sur le MEB <i>Zeiss JSM-6510</i> du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 8 kV.	126
4.18	Illustration de l'influence d'une rigidité accrue des fibrilles interfaciales sur les propriétés phénoménologiques d'une même interface. Les propriétés inchangées sont affichées en rouge alors que les propriétés de l'interface avec aluminium sont reportées en gris (correspondant à la première composition) par comparaison avec une interface simple, reportée en orange, (correspondant à la quatrième composition).	127
4.19	Observations MEB de la deuxième composition soumise à une déformation de 19%. Images obtenues sur le MEB <i>Zeiss JSM-6510</i> du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 8 kV.	128
4.20	Observations MEB de la troisième composition soumise à une déformation de 5%. Images obtenues sur le MEB <i>Zeiss JSM-6510</i> du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 8 kV.	129

4.21	Observations MEB de la quatrième composition soumise à une déformation de 15%. Images obtenues sur le MEB <i>Zeiss JSM-6510</i> du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 8 kV.	130
4.22	Illustration qualitative des propriétés des interfaces des quasi-propergols déduites des différentes caractérisations de la section précédente et des tendances suggérées par les simulations numériques développées tout au long du projet.	132
4.23	Comportements jusqu'à rupture en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 50mm/min et suivi de dilatation de deux compositions à base de liant nitré et contenant des charges de RDX. Dans un des cas une stratégie d'optimisation de l'adhésion liant/charge a été mise en œuvre.	133
4.24	Observations MEB de la composition sans optimisation de l'adhésion soumise à une déformation de 3.5%. Images obtenues sur le MEB <i>Zeiss JSM-6510</i> du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 10 kV (a–b) et 15kV (c).	135
4.25	Observations MEB de la composition avec optimisation de l'adhésion soumise à une déformation de 6%. Images obtenues sur le MEB <i>Zeiss JSM-6510</i> du CRB (ArianeGroup) pour une accélération de faisceau de 10 kV.	135
4.26	Comportements jusqu'à rupture en traction uniaxiale à 20°C avec une vitesse de traverse constante de 5mm/min de deux compositions à base d'un autre liant nitré contenant des charges de HMX ou de PA (d'après Toulemonde (2016)).	136
4.27	Simulation numérique de la réponse en contrainte–déformation de deux microstructures numériques contenant 55% de sphères pour le premier et le troisième jeu de paramètres de zone cohésive (Tableau 3.1).	137
5.1	Schématisation, en deux dimensions, de la séquence mise en œuvre pour obtenir des polyèdres allongés (sommets magenta, arêtes jaunes) à partir d'un polyèdre équiaxe (sommets bleus, arêtes vertes). Le Point G est le point de germination du polyèdre et les points P_j^i désignent les projetés des sommets originels sur l'axe de direction aléatoire.	147
5.2	Microstructures de référence pour l'analyse de l'impact du facteur de forme, $f_{vol}=45\%$ avec 64 polyèdres (a) équiaxe ou (b) avec un allongement d'un facteur 2.1	148
5.3	Estimation du modèle de Mori Tanaka (Benveniste, 1987) en fonction du facteur de forme des inclusions, pour une fraction volumique de particules de 15%, avec les propriétés des constituants prises en compte dans le cadre des petites déformations (chapitre 2). Bien noter l'échelle très réduite de l'axe des ordonnées.	148
5.4	Réponses en contrainte–déformation pour une traction uniaxiale de deux microstructures chargées avec des polyèdres équiaxe ou allongés (facteur de forme (F F) de 2.1) pour les paramètres de zone cohésive de référence (Table 3.1).	149
5.5	(a) La loi de zone cohésive de Tvergaard et Hutchinson sans (haut) et avec (bas) différenciation des comportements normaux et tangentiels et (b) comportements macroscopique obtenus pour la microstructure de référence avec des sphères.	150
5.6	(a) La loi de zone cohésive de Park-Paulino-Roesler sans (haut) et avec (milieu, bas) différenciation des comportements normaux et tangentiels et (b) comportements macroscopique obtenus pour la microstructure de référence avec des sphères.	151
5.7	Comportements macroscopiques obtenus pour la microstructure de référence avec des sphères et en présence d'une interphase ayant une épaisseur de 10% du rayon et une rigidification d'un facteur 5, le tout avec les paramètres de zone cohésive de référence (Tableau 3.1).	152

5.8	Images volumiques artificielles obtenues à partir de deux microstructures numériques contenant (a) des sphères ou (b) des polyèdres allongés avec une résolution de $2 \cdot 10^{-3} a/vx$. a est la longueur d'un côté de la cellule. (c) Images volumiques artificielle obtenues par duplication 215 fois d'une microstructure contenant des sphères avec une résolution de $1.2 \cdot 10^{-2} a/vx$. a est la longueur d'un côté de la cellule originale.	153
5.9	Identification expérimentale des propriétés d'interface optimisées à partir des champs d'endommagement obtenus par simulation numérique. Cette approche permet de caractériser précisément l'impact des stratégies d'amélioration du comportement mise en œuvre lors de l'élaboration de ces propergols.	155
A.1	Illustration de la collision entre deux particules i et j avec leur vecteur vitesse \mathbf{v} avant (t_0) et après (t_1) le choc, la direction de ce dernier étant définie par le vecteur $\overrightarrow{IJ} = \mathbf{d}$	184
A.2	Projection de la vitesse $\mathbf{v}_i^{t_0}$ de la particule i à l'instant t_0 dans le repère local du choc définissant les vecteurs \mathbf{v}_i^{perp} et \mathbf{v}_i^{tang}	185
B.1	Illustration de la démarche mise en œuvre pour extraire la fonction de corrélation à deux points S_2 de la microstructure de référence avec des sphères (#8).	188
C.1	Modules de Young (a) et de cisaillement (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux de dix-huit microstructures contenant 128 sphères avec une fraction volumique de 55%. Les lignes en pointillés représentent les moyennes des modules sur l'ensemble de la série. (c) Critère d'isotropie évalué à partir du rapport des modules de Young et de cisaillement moyen pour chaque microstructure.	190
C.2	Modules de Young (a) et de cisaillement (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux des six microstructures contenant 128 sphères sélectionnées selon les critères géométriques S_2 et H_v . Les lignes en pointillés représentent les moyennes des modules pour les sept microstructures. (c) Critère supplémentaire d'isotropie évalué à partir du rapport des valeurs moyennes des modules de Young et de cisaillement pour ces microstructures.	191
C.3	Modules de Young (a) et de cisaillement (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux de vingt microstructures contenant 32 sphères avec une fraction volumique de 55%. Les lignes en pointillés représentent les moyennes des modules pour les sept microstructures. (c) Critère d'isotropie évalué à partir du rapport des modules de Young et de cisaillement moyen pour chaque microstructure.	192
C.4	Évolution de la fonction S_2 pour les microstructures 10 et 20 contenant 32 sphères représentant 55% de la fraction volumique avec réduction de l'échelle de couleur afin de faciliter l'analyse et comparaison de leur distribution des plus proches voisins avec la distribution théorique d'un système parfaitement aléatoire (pointillés noirs).	193

Liste des tableaux

3.1	Paramètres de zone cohésive de référence pour l'étude.	87
4.1	Détail des compositions de quasi-propergols avec les couleurs et types de lignes associés à la représentation de leurs propriétés.	110
4.2	Propriétés phénoménologiques des interfaces classiques de propergols identifiées qualitativement. LI désignent un liant inerte et LN un liant nitré.	132
5.1	Paramètres de zone cohésive de la loi de Tvergaard et Hutchinson avec et sans différenciation.	150
5.2	Paramètres de zone cohésive de la loi PPR avec et sans différenciation des effort normaux et tangentiels (2 cas). Les paramètres correspondent aux propriétés de la loi TH (Figure 1.24), à l'exception de l'exposant (exp.) qui pilote l'évolution de la perte de raideur de cette loi cohésive.	150

Bibliographie

- ABAQUS/STANDARD.2018 : *Dassault Systèmes Simulia Corporation*. 07-11-2017, Johnston, RI, USA. (Cited on pages 32, 45, 79, 80 and 83.)
- X. ALLAN ZHONG, Wolfgang G. Knauss : Effects of particle interaction and size variation on damage evolution in filled elastomers. *Mechanics of composite materials and structures*, 7 (1):35–53, 2000. (Cited on page 25.)
- M. P. ALLEN, G. T. EVANS, D. FRENKEL et B. MULDER : Hard convex body fluids. *Advances in chemical physics*, 86:1–166, 1993. (Cited on page 149.)
- R. AMIABLE : Les matériaux énergétiques. *Que sais-je ?*, 1998. (Cited on page 7.)
- S. R. ANDERSON, D. J. AM ENDE, J. S. SALAN et P. SAMUELS : Preparation of an energetic-energetic cocrystal using resonant acoustic mixing. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 39 (5):637–640, 2014. (Cited on page 8.)
- H. G. ANG et S. PISHARATH : *Energetic polymers : binders and plasticizers for enhancing performance*. John Wiley & Sons, 2012. (Cited on page 8.)
- K. ANOUKOU, R. BRENNER, F. HONG, M. PELLERIN et K. DANAS : Random distribution of polydisperse ellipsoidal inclusions and homogenization estimates for porous elastic materials. *Computers & Structures*, 210:87–101, 2018. (Cited on pages 12 and 27.)
- ARIANEGROUP : *Documentation interne*. (Cited on pages 6, 9, 20, 157 and 158.)
- H. ARORA, E. TARLETON, J. LI-MAYER, M. CHARALAMBIDES et D. LEWIS : Modelling the damage and deformation process in a plastic bonded explosive microstructure under tension using the finite element method. *Computational Materials Science*, 110:91–101, 2015. (Cited on pages 25 and 101.)
- M. F. ASHBY et D. R. JONES : *Matériaux*. Dunod, 1981. (Cited on pages 14 and 114.)
- A. AZOUG : *Micromécanismes et comportement macroscopique d'un élastomère fortement chargé*. Thèse de doctorat, 2010. (Cited on pages IX, 7, 18, 21 and 66.)
- M. BAILAKANAVAR, Y. LIU, J. FISH et Y. ZHENG : Automated modeling of random inclusion composites. *Engineering with Computers*, 30(4):609–625, 2014. (Cited on page 28.)
- R. B. BARELLO et M. LÉVESQUE : Comparison between the relaxation spectra obtained from homogenization models and finite elements simulation for the same composite. *International Journal of Solids and Structures*, 45(3-4):850–867, 2008. (Cited on page 45.)

-
- G. I. BARENBLATT : The formation of equilibrium cracks during brittle fracture. General ideas and hypotheses. Axially-symmetric cracks. *Journal of Applied Mathematics and Mechanics*, 23(3):622–636, 1959. (Cited on page 32.)
- S. BARGMANN, B. KLUSEMANN, J. MARKMANN, J. E. SCHNABEL, K. SCHNEIDER, C. SOYARSLAN et J. WILMERS : Generation of 3D representative volume elements for heterogeneous materials : A review. *Progress in Materials Science*, 96:322–384, 2018. (Cited on page 28.)
- F. BÉDOUI, J. DIANI et G. RÉGNIER : Micromechanical modeling of elastic properties in polyolefins. *Polymer*, 45(7):2433–2442, 2004. (Cited on page 146.)
- C. BENCHER, R. DAUSKARDT et R. TITCHIE : Microstructural damage and fracture processes in a composite solid rocket propellant. *Journal of Spacecraft and Rockets*, 32(2):328–334, 1995. (Cited on page 16.)
- Y. BENVENISTE : A new approach to the application of mori-tanaka’s theory in composite materials. *Mechanics of materials*, 6(2):147–157, 1987. (Cited on pages 146, 148 and 165.)
- N. BLAL, L. DARIDON, Y. MONERIE et S. PAGANO : Artificial compliance inherent to the intrinsic cohesive zone models : criteria and application to planar meshes. *International Journal of Fracture*, 178(1-2):71–83, 2012. (Cited on page 92.)
- N. BLAL, L. DARIDON, Y. MONERIE et S. PAGANO : Comportement effectif d’un milieu cohésif : approche micromécanique. In *11e colloque national en calcul des structures*, Giens, France, 2013. (Cited on page 92.)
- R. BLANC : *Apport des statistiques spatiales à l’élaboration de critères d’homogénéité et à l’inférence en analyse de textures. Application à la caractérisation de matériaux*. Thèse de doctorat, Université Sciences et Technologies - Bordeaux I, 2007. (Cited on page 154.)
- H. J. BÖHM, A. ECKSCHLAGER et W. HAN : Multi-inclusion unit cell models for metal matrix composites with randomly oriented discontinuous reinforcements. *Computational materials science*, 25(1-2):42–53, 2002. (Cited on page 27.)
- H. J. BÖHM et A. RASOOL : Effects of particle shape on the thermoelastoplastic behavior of particle reinforced composites. *International Journal of Solids and Structures*, 87:90–101, 2016. (Cited on pages 27 and 71.)
- M. BORNERT : Homogénéisation des milieux aléatoires : bornes et estimations, 2001. (Cited on page 23.)
- T. BOUBLÍK : Statistical thermodynamics of convex molecule fluids. *Molecular Physics*, 27(5):1415–1427, 1974. (Cited on page 149.)
- T. BOUBLÍK et I. NEZBEDA : P-V-T behaviour of hard body fluids. Theory and experiment. *Collection of Czechoslovak chemical communications*, 51(11):2301–2432, 1986. (Cited on pages 42, 43 and 159.)
- J.-L. BOUVARD, J.-L. CHABOCHE, F. FEYEL et F. GALLERNEAU : Simulation numérique de la propagation de fissure dans les superalliages monocristallins : Simulation numérique de la propagation de fissure dans les monocristaux. *European Journal of Computational Mechanics/Revue Européenne de Mécanique Numérique*, 16(6-7):845–863, 2007. (Cited on page 34.)
-

-
- J.-Y. BUFFIÈRE, P. CLOETENS, W. LUDWIG, E. MAIRE et L. SALVO : In situ X-ray tomography studies of microstructural evolution combined with 3D modeling. *MRS bulletin*, 33(6):611–619, 2008. (Cited on page 27.)
- V. BURYACHENKO, T. JACKSON et G. AMADIO : Modeling of random bimodal structures of composites (application to solid propellants) : I. simulation of random packs. *arXiv preprint arXiv :1207.7260*, 2012. (Cited on page 29.)
- A. CABALLERO, C. LÓPEZ et I. CAROL : 3D meso-structural analysis of concrete specimens under uniaxial tension. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 195(52):7182–7195, 2006. (Cited on page 29.)
- J.-P. CANSELIER : Énergie et formulation production et transport de l'énergie, carburants et lubrifiants, propergols, interaction énergie-matière, énergie électrique. *Les cahiers de formulation*, 2005. (Cited on page 8.)
- I. CAROL, A. IDIART, C. LOPEZ et A. CABALLERO : Advances in meso-mechanical analysis of concrete specimens using zero-thickness interface elements. *In Fracture mechanics of concrete and concrete structures—proceedings FraMCoS-6*, p. 163–174. Taylor & Francis Group London, 2007. (Cited on page 29.)
- T.-f. CHABARDES : *Segmentation Automatique de Matériaux Granulaires*. Thèse de doctorat, PhD thesis, Mines Paristech, Fontainebleau, 2018. (Cited on page 10.)
- J. L. CHABOCHE, F. FEYEL et Y. MONERIE : Interface debonding models : a viscous regularization with a limited rate dependency. *International journal of solids and structures*, 38(18):3127–3160, 2001. (Cited on page 80.)
- A. CHAI, E. VERRON, A. ANDRIYANA et M. JOHAN : Mullins effect in swollen rubber : Experimental investigation and constitutive modelling. *Polymer Testing*, 32(4):748–759, 2013. (Cited on page 18.)
- S. N. CHIU, D. STOYAN, W. S. KENDALL et J. MECKE : *Stochastic geometry and its applications*. John Wiley & Sons, 2013. (Cited on page 29.)
- Y. CHO, W. LEE et Y. PARK : Finite element modeling of tensile deformation behaviors of iron syntactic foam with hollow glass microspheres. *Materials*, 10(10):1201, 2017. (Cited on page 33.)
- R. M. CHRISTENSEN : A critical evaluation for a class of micro-mechanics models. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 38(3):379–404, 1990. (Cited on page 62.)
- R. CHRISTENSEN et K. LO : Solutions for effective shear properties in three phase sphere and cylinder models. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 27(4):315–330, 1979. (Cited on page 62.)
- J. CHRISTOFFERSEN : Bonded granulates. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 31(1):55–83, 1983. (Cited on pages 24, 25 and 48.)
- B. COLLINS, F. MAGGI, K. MATOUS, T. JACKSON et J. BUCKMASTER : Using tomography to characterize heterogeneous propellants. *In 46th AIAA Aerospace Sciences Meeting and Exhibit*, p. 941, 2008. (Cited on pages 9, 10 and 30.)
-

-
- D. W. COOPER : Random-sequential-packing simulations in three dimensions for spheres. *Physical Review A*, 38(1):522, 1988. (Cited on page 27.)
- M. COQUILLAT : *Vieillessement des propergols à matrice polybutadiène : modélisation cinétique de l'oxydation*. Thèse de doctorat, Arts et Métiers ParisTech, 2007. (Cited on pages 8 and 11.)
- L. CORNWELL et R. SCHAPERLY : SEM study of microcracking in strained solid propellant. *Metallography*, 8(5):445–452, 1975. (Cited on pages 12 and 16.)
- J. CRAS, C. ROWE-TAITT, D. NIVENS et F. LIGLER : Comparison of chemical cleaning methods of glass in preparation for silanization. *Biosensors and bioelectronics*, 14(8-9):683–688, 1999. (Cited on page 51.)
- J. CREVOISIER, de, G. BESNARD, Y. MERCKEL, H. ZHANG, F. VION-LOISEL, J. CAILLARD, D. BERGHEZAN, C. CRETON, J. DIANI, M. BRIEU *et al.* : Volume changes in a filled elastomer studied via digital image correlation. *Polymer Testing*, 31(5):663–670, 2012. (Cited on page 18.)
- S. DARTOIS, C. NADOT-MARTIN, D. HALM, A. DRAGON, A. FANGET et G. CONTESSE : Micromechanical modelling of damage evolution in highly filled particulate composites—induced effects at different scales. *International Journal of Damage Mechanics*, 22(7):927–966, 2013. (Cited on page 24.)
- A. DAVENAS : *Technologie des propergols solides*. Masson, 1989. (Cited on pages 7 and 8.)
- A. DAVIS : Solid propellants : the combustion of particles of metal ingredients. *Combustion and Flame*, 7:359–367, 1963. (Cited on page 10.)
- J. DIANI, Y. MERCKEL, M. BRIEU et J. CAILLARD : Comparison of stress–softenings in carbon-black filled natural rubber and styrene–butadiene rubber. *Rubber Chemistry and Technology*, 86(4):572–578, 2013. (Cited on page 18.)
- J. DIRRENBERGER, S. FOREST et D. JEULIN : Towards gigantic RVE sizes for 3D stochastic fibrous networks. *International Journal of Solids and Structures*, 51(2):359–376, 2014. (Cited on page 26.)
- A. DONEV, S. TORQUATO et F. H. STILLINGER : Neighbor list collision-driven molecular dynamics simulation for nonspherical hard particles. I. algorithmic details. *Journal of computational physics*, 202(2):737–764, 2005a. (Cited on page 147.)
- A. DONEV, S. TORQUATO et F. H. STILLINGER : Neighbor list collision-driven molecular dynamics simulation for nonspherical hard particles. II. applications to ellipses and ellipsoids. *Journal of computational physics*, 202(2):765–793, 2005b. (Cited on page 147.)
- B. DRACH, I. TSUKROV et A. TROFIMOV : Comparison of full field and single pore approaches to homogenization of linearly elastic materials with pores of regular and irregular shapes. *International Journal of Solids and Structures*, 96:48–63, 2016. (Cited on pages 27 and 71.)
- W. DRUGAN et J. WILLIS : A micromechanics-based nonlocal constitutive equation and estimates of representative volume element size for elastic composites. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 44(4):497–524, 1996. (Cited on page 25.)
- D. S. DUGDALE : Yielding of steel sheets containing slits. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 8(2):100–104, 1960. (Cited on page 31.)
-

- C. F. DUNANT, B. BARY, A. B. GIORLA, C. PÉNIGUEL, J. SANAHUJA, C. TOULEMONDE, A.-B. TRAN, F. WILLOT et J. YVONNET : A critical comparison of several numerical methods for computing effective properties of highly heterogeneous materials. *Advances in Engineering Software*, 58:1–12, 2013. (Cited on page 31.)
- G. J. DVORAK et J. ZHANG : Transformation field analysis of damage evolution in composite materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 49(11):2517–2541, 2001. (Cited on page 24.)
- J. D. ESHELBY : The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 241(1226):376–396, 1957. (Cited on pages 23 and 24.)
- R. EVANS et K. PISTER : Stress analysis for elastic response of physically nonlinear solid propellants. *AIAA Journal*, 4(11):1914–1919, 1966. (Cited on page 15.)
- R. FARRIS : Dilatation of granular filled elastomers under high rates of strain. *Journal of Applied Polymer Science*, 8(1):25–35, 1964. (Cited on pages 16, 57 and 112.)
- R. FARRIS : The influence of vacuole formation on the response and failure of filled elastomers. *Transactions of the Society of Rheology*, 12(2):315–334, 1968. (Cited on pages 11 and 19.)
- F. FRANQUEVILLE, de, P. GILORMINI et J. DIANI : Representative volume elements for the simulation of isotropic composites highly filled with monosized spheres. *International Journal of Solids and Structures*, 158:277–286, 2019. (Cited on pages 29 and 54.)
- M. FRANKEL, L. GRANT et J. FLANAGAN : Historical development of glycidyl azide polymer. *Journal of Propulsion and Power*, 8(3):560–563, 1992. (Cited on page 8.)
- D. FRENKEL et B. MULDER : The hard ellipsoid-of-revolution fluid : I. Monte Carlo simulations. *Molecular physics*, 55(5):1171–1192, 1985. (Cited on page 149.)
- F. FRITZEN et T. BOEHLKE : Periodic three-dimensional mesh generation for particle reinforced composites with application to metal matrix composites. *International Journal of Solids and Structures*, 48(5):706–718, 2011. (Cited on pages 29 and 48.)
- F. FRITZEN, T. BÖHLKE et E. SCHNACK : Periodic three-dimensional mesh generation for crystalline aggregates based on voronoi tessellations. *Computational Mechanics*, 43(5):701–713, 2009. (Cited on page 49.)
- S. GALLIER et F. HIERNARD : Microstructure of composite propellants using simulated packings and X-ray tomography. *Journal of propulsion and power*, 24(1):154–157, 2008. (Cited on pages 7 and 9.)
- Y. GAO et A. BOWER : A simple technique for avoiding convergence problems in finite element simulations of crack nucleation and growth on cohesive interfaces. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 12(3):453, 2004. (Cited on page 80.)
- S. GHOSH, Y. LING, B. MAJUMDAR et R. KIM : Interfacial debonding analysis in multiple fiber reinforced composites. *Mechanics of materials*, 32(10):561–591, 2000. (Cited on page 95.)

-
- E. GHOSSEIN et M. LÉVESQUE : A fully automated numerical tool for a comprehensive validation of homogenization models and its application to spherical particles reinforced composites. *International Journal of Solids and Structures*, 49(11-12):1387–1398, 2012. (Cited on pages 29, 31, 41, 47 and 62.)
- E. G. GILBERT, D. W. JOHNSON et S. S. KEERTHI : A fast procedure for computing the distance between complex objects in three-dimensional space. *IEEE Journal on Robotics and Automation*, 4(2):193–203, 1988. (Cited on pages 29 and 49.)
- P. GILORMINI et J. DIANI : Some features of the PPR cohesive-zone model combined with a linear unloading/reloading relationship. *Engineering Fracture Mechanics*, 173:32–40, 2017. (Cited on pages 32, 94 and 149.)
- P. GILORMINI, P.-A. TOULEMONDE, J. DIANI et A. GARDERE : Stress-strain response and volume change of a highly filled rubbery composite : experimental measurements and numerical simulations. *Mechanics of Materials*, 111:57–65, 2017. (Cited on pages 32, 33, 34, 79 and 94.)
- J. GONÇALVES, M. DE MOURA, P. DE CASTRO et A. MARQUES : Interface element including point-to-surface constraints for three-dimensional problems with damage propagation. *Engineering Computations*, 17(1):28–47, 2000. (Cited on page 32.)
- B. GÖZLÜKLÜ et D. COKER : Modeling of the dynamic delamination of l-shaped unidirectional laminated composites. *Composite Structures*, 94(4):1430–1442, 2012. (Cited on page 32.)
- P. GUDLUR, A. MULIANA et M. RADOVIC : The effect of microstructural morphology on the elastic, inelastic, and degradation behaviors of aluminum–alumina composites. *Mechanics Research Communications*, 57:49–56, 2014. (Cited on page 71.)
- A. A. GUSEV : Representative volume element size for elastic composites : a numerical study. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 45(9):1449–1459, 1997. (Cited on pages 26, 28, 31, 42, 45, 49, 50, 189 and 194.)
- A. A. GUSEV : Controlled accuracy finite element estimates for the effective stiffness of composites with spherical inclusions. *International journal of solids and structures*, 80:227–236, 2016. (Cited on pages 28, 45, 47, 56, 62, 64, 65, 69 and 161.)
- L. HAMITOUCHE, M. TARFAOUI et A. VAUTRIN : An interface debonding law subject to viscous regularization for avoiding instability : application to the delamination problems. *Engineering Fracture Mechanics*, 75(10):3084–3100, 2008. (Cited on page 80.)
- J. HANSEN et I. MCDONALD : Theory of simple liquids academic press. *New York*, 1986. (Cited on page 27.)
- P. HEUILLET : *Caractérisation de l'endommagement des propegols solides composites*. Thèse de doctorat, Compiègne, 1992. (Cited on pages 12, 15, 16, 17, 119, 120, 121, 122, 157 and 164.)
- P. HÖFER et A. LION : Modelling of frequency-and amplitude-dependent material properties of filler-reinforced rubber. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 57(3):500–520, 2009. (Cited on page 19.)
- W. G. HOOVER et F. H. REE : Melting transition and communal entropy for hard spheres. *The Journal of Chemical Physics*, 49(8):3609–3617, 1968. (Cited on page 28.)
-

-
- K. HORI, A. IWAMA et T. FUKUDA : On the adhesion between hydroxyl-terminated polybutadiene fuel-binder and ammonium perchlorate. Performance of bonding agents. *Propellants, explosives, pyrotechnics*, 10(6):176–180, 1985. (Cited on page 8.)
- R. J. HUDSON, P. ZIOUPOS et P. P. GILL : Investigating the Mechanical Properties of RDX Crystals Using Nano-Indentation. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 37(2):191–197, 2012. (Cited on page 14.)
- J. HUR, J.-B. PARK, G.-D. JUNG et S.-K. YOUN : Enhancements on a micromechanical constitutive model of solid propellant. *International Journal of Solids and Structures*, 87:110–119, 2016. (Cited on page 24.)
- H. INGLIS, P. H. GEUBELLE, K. MATOUŠ, H. TAN et Y. HUANG : Cohesive modeling of dewetting in particulate composites : micromechanics vs. multiscale finite element analysis. *Mechanics of Materials*, 39(6):580–595, 2007. (Cited on pages 11 and 25.)
- S. JAIN, S. NANDAGOPAL, P. SINGH, K. RADHAKRISHNAN, B. BHATTACHARYA *et al.* : Size and shape of ammonium perchlorate and their influence on properties of composite propellant. *Defence Science Journal*, 59(3):294–299, 2009. (Cited on page 9.)
- D. JALOCHA : *Modélisation du comportement viscoélastique d'un élastomère fortement chargé sous sollicitations multiaxiales*. Thèse de doctorat, 2015. (Cited on pages IX, 11, 13, 18 and 19.)
- W. JODREY et E. TORY : Computer simulation of close random packing of equal spheres. *Physical review A*, 32(4):2347, 1985. (Cited on page 27.)
- A. JOUAN *et al.* : *Influence du vieillissement en atmosphère confinée sur la prédiction de la durée de vie des joints adhésifs*. Thèse de doctorat, Paris Saclay, 2018. (Cited on page 27.)
- G.-D. JUNG et S.-K. YOUN : A nonlinear viscoelastic constitutive model of solidpropellant. *International journal of solids and structures*, 36(25):3755–3777, 1999. (Cited on page 15.)
- G.-D. JUNG, S.-K. YOUN et B.-K. KIM : A three-dimensional nonlinear viscoelastic constitutive model of solid propellant. *International Journal of Solids and Structures*, 37(34):4715–4732, 2000. (Cited on page 15.)
- T. KANIT, S. FOREST, I. GALLIET, V. MOUNOURY et D. JEULIN : Determination of the size of the representative volume element for random composites : statistical and numerical approach. *International Journal of solids and structures*, 40(13-14):3647–3679, 2003. (Cited on pages 26, 56, 158 and 194.)
- E. KATZAV, R. BERDICHEVSKY et M. SCHWARTZ : Random close packing from hard-sphere Percus-Yevick theory. *Physical Review E*, 99(1):012146, 2019. (Cited on page 29.)
- C. S. KIM, H. YOUN, P. N. NOBLE et A. GAO : Development of neutral polymeric bonding agents for propellants with polar composites filled with organic nitramine crystals. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 17(1):38–42, 1992. (Cited on page 8.)
- LABVIEW.2018 : *National Instruments*. Austin, TX, USA. (Cited on page 55.)
- F. LAVERGNE, K. SAB, J. SANAHUJA, M. BORNERT et C. TOULEMONDE : Investigation of the effect of aggregates' morphology on concrete creep properties by numerical simulations. *Cement and Concrete Research*, 71:14–28, 2015. (Cited on page 27.)
-

-
- W. LAWRIE II, D. K. FRANCIS, J.-L. BOUVARD, Y. HAMMI et M. F. HORSTEMEYER : A mesomechanics parametric finite element study of damage growth and coalescence in polymers using an elastoviscoelastic-viscoplastic internal state variable model. *Mechanics of Materials*, 96:83–95, 2016. (Cited on page 17.)
- H. LEE, A. S. GILLMAN et K. MATOUŠ : Computing overall elastic constants of polydisperse particulate composites from microtomographic data. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 59(9):1838–1857, 2011. (Cited on page 29.)
- A. LEPIE et A. ADICOFF : Dynamic mechanical behavior of highly filled polymers : energy balances and damage. *Journal of Applied Polymer Science*, 18(7):2165–2176, 1974. (Cited on page 18.)
- J.-N. LHUILLER *et al.* : Tenue mécanique et fiabilité des chargements à propergol solide. *Sciences et Techniques de l'Armement, Mémorial de l'Artillerie française*, 52, 1978. (Cited on page 10.)
- E. J. LIEBERMAN, R. A. LEBENSOHN, D. B. MENASCHE, C. A. BRONKHORST et A. D. ROLLETT : Microstructural effects on damage evolution in shocked copper polycrystals. *Acta Materialia*, 116:270–280, 2016. (Cited on page 31.)
- C. LIU, L. M. KLYNN et J. D. THOMPSON : Monitoring microstructural evolution and crack formation in a solid propellant under incremental strain condition-using digital radiography x-ray techniques. Rap. tech., Air force research lab edwards AFB CA, space and missile propulsion div., 2004. (Cited on page 21.)
- Y. LIU, Y. JIANG et P. KYRIAKIDIS : Calculation of average covariance using fast fourier transform (FFT), 2006. (Cited on page 187.)
- J. LLORCA et J. SEGURADO : Three-dimensional multiparticle cell simulations of deformation and damage in sphere-reinforced composites. *Materials Science and Engineering : A*, 365(1-2):267–274, 2004. (Cited on page 25.)
- P. LOUIS et A. M. GOKHALE : Application of image analysis for characterization of spatial arrangements of features in microstructure. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 26(6):1449–1456, 1995. (Cited on page 27.)
- B. D. LUBACHEVSKY et F. H. STILLINGER : Geometric properties of random disk packings. *Journal of statistical Physics*, 60(5-6):561–583, 1990. (Cited on pages 29, 41, 147, 159 and 183.)
- D. LUCCA, M. KLOPFSTEIN, O. MEJIA, L. ROSSETTINI et L. DELUCA : Investigation of ammonium perchlorate by nanoindentation. *Materials science and technology*, 22(4):396–401, 2006. (Cited on page 14.)
- E. MAIRE, A. FAZEKAS, L. SALVO, R. DENDIEVEL, S. YOUSSEF, P. CLOETENS et J. M. LETANG : X-ray tomography applied to the characterization of cellular materials. Related finite element modeling problems. *Composites science and technology*, 63(16):2431–2443, 2003. (Cited on page 27.)
- MATLAB.2017A : *MathWorks Inc.* (Cited on pages 43, 47, 49 and 187.)
- K. MATOUŠ, H. INGLIS, X. GU, D. RYPL, T. JACKSON et P. H. GEUBELLE : Multiscale modeling of solid propellants : From particle packing to failure. *Composites science and technology*, 67(7-8):1694–1708, 2007. (Cited on page 25.)
-

-
- K. MATOUŠ et P. H. GEUBELLE : Multiscale modelling of particle debonding in reinforced elastomers subjected to finite deformations. *International Journal for Numerical Methods in Engineering*, 65(2):190–223, 2006. (Cited on pages 11, 12, 25 and 33.)
- A. MBIAKOP, A. CONSTANTINESCU et K. DANAS : On void shape effects of periodic elasto-plastic materials subjected to cyclic loading. *European Journal of Mechanics-A/Solids*, 49:481–499, 2015. (Cited on page 12.)
- R. McLAUGHLIN : A study of the differential scheme for composite materials. *International Journal of Engineering Science*, 15(4):237–244, 1977. (Cited on page 64.)
- N. METROPOLIS, A. W. ROSENBLUTH, M. N. ROSENBLUTH, A. H. TELLER et E. TELLER : Equation of state calculations by fast computing machines. *The journal of chemical physics*, 21(6):1087–1092, 1953. (Cited on page 27.)
- Y. MI, M. CRISFIELD, G. DAVIES et H. HELIWEG : Progressive delamination using interface elements. *Journal of composite materials*, 32(14):1246–1272, 1998. (Cited on page 32.)
- W. MICKEL, S. C. KAPFER, G. E. SCHRÖDER-TURK et K. MECKE : Shortcomings of the bond orientational order parameters for the analysis of disordered particulate matter. *The Journal of chemical physics*, 138(4):044501, 2013. (Cited on page 29.)
- J. MORALEDA, J. SEGURADO et J. LLORCA : Effect of interface fracture on the tensile deformation of fiber-reinforced elastomers. *International Journal of Solids and Structures*, 46(25-26):4287–4297, 2009. (Cited on page 25.)
- T. MORI et K. TANAKA : Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions. *Acta metallurgica*, 21(5):571–574, 1973. (Cited on page 146.)
- H. MOULINEC et P. SUQUET : A numerical method for computing the overall response of nonlinear composites with complex microstructure. *Computer methods in applied mechanics and engineering*, 157(1-2):69–94, 1998. (Cited on page 31.)
- L. MULLINS : Softening of rubber by deformation. *Rubber chemistry and technology*, 42(1):339–362, 1969. (Cited on page 18.)
- C. NADOT-MARTIN, D. HALM, S. DARTOIS, M. TOUBOUL, A. DRAGON et A. FANGET : Une approche multi-échelles directe pour modéliser le comportement non linéaire des composites énergétiques. In *17èmes Journées Nationales sur les Composites (JNC17)*, p. 204, 2011. (Cited on pages 29 and 48.)
- C. NADOT-MARTIN, M. TOUBOUL, A. DRAGON et A. FANGET : Direct scale transition approach for highly-filled viscohyperelastic particulate composites : Computational study. *Multiscale Modeling of Heterogenous Materials : From Microstructure to Macro-scale Properties*, p. 215–235, 2008. (Cited on page 24.)
- C. NADOT-MARTIN, H. TRUMEL et A. DRAGON : Morphology-based homogenization for viscoelastic particulate composites : Part I : Viscoelasticity sole. *European Journal of Mechanics-A/Solids*, 22(1):89–106, 2003. (Cited on page 24.)
- NASA : Nasa, 2019. URL https://www.nasa.gov/exploration/systems/sls/multimedia/gallery/SLS_Concepts.html. (Cited on pages 6 and 157.)
-

-
- R. NEVIÈRE : An extension of the time–temperature superposition principle to non-linear viscoelastic solids. *International journal of solids and structures*, 43(17):5295–5306, 2006. (Cited on pages 18, 21 and 53.)
- D. NGO, K. PARK, G. H. PAULINO et Y. HUANG : On the constitutive relation of materials with microstructure using a potential-based cohesive model for interface interaction. *Engineering Fracture Mechanics*, 77(7):1153–1174, 2010. (Cited on page 24.)
- B. NOUGUEZ et G. ECK : From synthesis to formulation and final application. *Propellants, Explosives, Pyrotechnics*, 41(3):548–554, 2016. (Cited on page 111.)
- K. C. NUNAN et J. B. KELLER : Effective elasticity tensor of a periodic composite. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 32(4):259–280, 1984a. (Cited on page 57.)
- K. C. NUNAN et J. B. KELLER : Effective viscosity of a periodic suspension. *Journal of Fluid Mechanics*, 142:269–287, 1984b. (Cited on page 57.)
- A. OBERTH et R. BRUENNER : Tear phenomena around solid inclusions in castable elastomers. *Transactions of the Society of Rheology*, 9(2):165–185, 1965. (Cited on pages 7, 12, 16 and 21.)
- R. OGDEN : Elastic deformations of rubberlike solids. *In Mechanics of solids*, p. 499–537. Elsevier, 1982. (Cited on pages 55 and 85.)
- W. OGIERMAN et G. KOKOT : Particle shape influence on elastic-plastic behavior of particle-reinforced composites. *Archives of Material Science and Engineering*, 67(2):70–76, 2014. (Cited on page 71.)
- J. OHSER et K. SCHLADITZ : *3D images of materials structures : processing and analysis*. John Wiley & Sons, 2009. (Cited on page 43.)
- S. OZUPEK et E. B. BECKER : Constitutive equations for solid propellants. *Journal of Engineering materials and Technology*, 119(2):125–132, 1997. (Cited on page 11.)
- K. PARK et G. H. PAULINO : Cohesive zone models : a critical review of traction-separation relationships across fracture surfaces. *Applied Mechanics Reviews*, 64(6):060802, 2011. (Cited on pages 31, 33 and 95.)
- K. PARK et G. H. PAULINO : Computational implementation of the PPR potential-based cohesive model in ABAQUS : educational perspective. *Engineering fracture mechanics*, 93:239–262, 2012. (Cited on pages 80 and 94.)
- K. PARK, G. H. PAULINO et J. R. ROESLER : A unified potential-based cohesive model of mixed-mode fracture. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 57(6):891–908, 2009. (Cited on pages 94, 95 and 162.)
- M. PATHAN, V. TAGARIELLI, S. PATSIAS et P. BAIZ-VILAFRANCA : A new algorithm to generate representative volume elements of composites with cylindrical or spherical fillers. *Composites Part B : Engineering*, 110:267–278, 2017. (Cited on pages 27 and 29.)
- A. R. PAYNE : The dynamic properties of carbon black-loaded natural rubber vulcanizates. part I. *Journal of applied polymer science*, 6(19):57–63, 1962. (Cited on page 19.)
-

-
- J. K. PERCUS et G. J. YEVICK : Analysis of classical statistical mechanics by means of collective coordinates. *Physical Review*, 110(1):1, 1958. (Cited on pages 29 and 192.)
- R. QUEY, P. DAWSON et F. BARBE : Large-scale 3D random polycrystals for the finite element method : Generation, meshing and remeshing. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 200(17-20):1729–1745, 2011. (Cited on page 49.)
- H. REISS, H. FRISCH et J. LEBOWITZ : Statistical mechanics of rigid spheres. *The Journal of Chemical Physics*, 31(2):369–380, 1959. (Cited on page 30.)
- H. REISS : Statistical geometry in the study of fluids and porous media. *The Journal of Physical Chemistry*, 96(12):4736–4747, 1992. (Cited on page 149.)
- M. D. RINTOUL et S. TORQUATO : Reconstruction of the structure of dispersions. *Journal of colloid and interface science*, 186(2):467–476, 1997. (Cited on page 29.)
- M. RINTOUL et S. TORQUATO : Computer simulations of dense hard-sphere systems. *The Journal of chemical physics*, 105(20):9258–9265, 1996a. (Cited on pages 27, 28, 29, 42 and 158.)
- M. RINTOUL et S. TORQUATO : Metastability and crystallization in hard-sphere systems. *Physical review letters*, 77(20):4198, 1996b. (Cited on page 29.)
- M. RINTOUL et S. TORQUATO : Hard-sphere statistics along the metastable amorphous branch. *Physical Review E*, 58(1):532, 1998. (Cited on page 30.)
- A. P. ROBERTS : Statistical reconstruction of three-dimensional porous media from two-dimensional images. *Physical Review E*, 56(3):3203, 1997. (Cited on pages 30 and 45.)
- M. ROBLES, M. LÓPEZ de HARO et A. SANTOS : Note : Equation of state and the freezing point in the hard-sphere model. *The Journal of chemical physics*, 140(13):136101, 2014. (Cited on page 42.)
- S. ROTH, G. HÜTTER, U. MÜHLICH, B. NASSAUER, L. ZYBELL et M. KUNA : Visualisation of user defined finite elements with ABAQUS/Viewer. *GACM Report*, 7:7–14, 2012. (Cited on page 83.)
- K. SCHNEIDER, B. KLUSEMANN et S. BARGMANN : Automatic three-dimensional geometry and mesh generation of periodic representative volume elements for matrix-inclusion composites. *Advances in Engineering Software*, 99:177–188, 2016. (Cited on page 45.)
- J. SCHÖBERL : NETGEN An advancing front 2D/3D-mesh generator based on abstract rules. *Computing and visualization in science*, 1(1):41–52, 1997. (Cited on page 45.)
- J. SEGURADO et J. LLORCA : A numerical approximation to the elastic properties of sphere-reinforced composites. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 50(10):2107–2121, 2002. (Cited on pages 28 and 45.)
- J. SEGURADO et J. LLORCA : A new three-dimensional interface finite element to simulate fracture in composites. *International journal of solids and structures*, 41(11-12):2977–2993, 2004. (Cited on page 25.)
- J. SEGURADO et J. LLORCA : A computational micromechanics study of the effect of interface decohesion on the mechanical behavior of composites. *Acta materialia*, 53(18):4931–4942, 2005. (Cited on page 32.)
-

- P. SHENG, J. ZHANG et Z. JI : An advanced 3D modeling method for concrete-like particle-reinforced composites with high volume fraction of randomly distributed particles. *Composites Science and Technology*, 134:26–35, 2016. (Cited on page 27.)
- R. SHINNAR et P. NAOR : A test of randomness for solid-solid mixtures. *Chemical Engineering Science*, 15(3-4):220–229, 1961. (Cited on page 9.)
- M. SKOGE, A. DONEV, F. H. STILLINGER et S. TORQUATO : Packing hyperspheres in high-dimensional euclidean spaces. *Physical Review E*, 74(4):041127, 2006. (Cited on pages 29, 41, 42 and 183.)
- D. W. SPRING, O. GIRALDO-LONDONO et G. H. PAULINO : A study on the thermodynamic consistency of the Park–Paulino–Roesler (PPR) cohesive fracture model. *Mechanics Research Communications*, 78:100–109, 2016. (Cited on page 32.)
- D. W. SPRING et G. H. PAULINO : Computational homogenization of the debonding of particle reinforced composites : The role of interphases in interfaces. *Computational Materials Science*, 109:209–224, 2015. (Cited on pages 19, 32 and 115.)
- P. J. STEINHARDT, D. R. NELSON et M. RONCHETTI : Bond-orientational order in liquids and glasses. *Physical Review B*, 28(2):784, 1983. (Cited on page 29.)
- M. SUMMERFIELD : *Solid propellant rocket research*. American Institute of Aeronautics and Astronautics, 1960. (Cited on page 7.)
- H. TAN, Y. HUANG, C. LIU, G. RAVICHANDRAN, H. INGLIS et P. H. GEUBELLE : The uniaxial tension of particulate composite materials with nonlinear interface debonding. *International Journal of Solids and Structures*, 44(6):1809–1822, 2007. (Cited on pages 24 and 25.)
- H. TAN, C. LIU, Y. HUANG et P. H. GEUBELLE : The cohesive law for the particle/matrix interfaces in high explosives. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 53(8):1892–1917, 2005. (Cited on page 34.)
- Z. J. TAO, S. D. PING, Z. MEI et Z. P. CHENG : Microstructure deformation and fracture mechanism of highly filled polymer composites under large tensile deformation. *In Journal of Physics : Conference Series*, vol. 419, p. 012014. IOP Publishing, 2013. (Cited on pages 12 and 16.)
- V. TARIEL, D. JEULIN, A. FANGET et G. CONTESSÉ : 3D multi-scale segmentation of granular materials. *Image Analysis & Stereology*, 27(1):23–28, 2011. (Cited on page 27.)
- J. TOBOCHNIK et P. CHAPIN : Monte carlo simulation of hard spheres near random closest packing using spherical boundary conditions. *The Journal of chemical physics*, 88(9):5824–5830, 1988. (Cited on page 27.)
- S. TORQUATO : Random heterogeneous media : microstructure and improved bounds on effective properties. *Applied mechanics reviews*, 44(2):37–76, 1991. (Cited on page 64.)
- S. TORQUATO : Effective stiffness tensor of composite media : II. applications to isotropic dispersions. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 46(8):1411–1440, 1998. (Cited on page 64.)

-
- S. TORQUATO : *Random heterogeneous materials : microstructure and macroscopic properties*. Springer Science & Business Media, 2002. (Cited on pages 27 and 29.)
- S. TORQUATO, B. LU et J. RUBINSTEIN : Nearest-neighbor distribution functions in many-body systems. *Physical Review A*, 41(4):2059, 1990. (Cited on page 30.)
- S. TORQUATO et G. STELL : Microstructure of two-phase random media. V. The n-point matrix probability functions for impenetrable spheres. *The Journal of chemical physics*, 82(2):980–987, 1985. (Cited on page 29.)
- S. TORQUATO, T. M. TRUSKETT et P. G. DEBENEDETTI : Is random close packing of spheres well defined? *Physical review letters*, 84(10):2064, 2000. (Cited on page 27.)
- P.-A. TOULEMONDE, J. DIANI, P. GILORMINI et N. DESGARDIN : A numerical study of the influence of polydispersity on the behaviour until break of a reinforced hyperelastic material with a cohesive interface. *Matériaux & Techniques*, 103(3):306, 2015. (Cited on page 12.)
- P.-A. TOULEMONDE : *Etude de la relation microstructure/propriétés mécaniques jusqu'à rupture des propergols composites : Caractérisation expérimentale et modélisation micromécanique par éléments finis*. Thèse de doctorat, Paris, ENSAM, 2016. (Cited on pages IX, 11, 14, 17, 19, 21, 23, 25, 28, 29, 33, 79, 94, 95, 115, 134, 136, 151, 158 and 165.)
- Y. TRAISSAC : *Comportement en grandes déformations d'un propergol solide. Application au dimensionnement mécanique sous pression du tir d'un chargement*. Thèse de doctorat, 1995. (Cited on pages 11 and 19.)
- M. TROMBINI, C. NADOT-MARTIN, D. HALM, M. GUEGUEN, G. CONTESSÉ et A. FANGET : Multiscale damage modeling with the “morphological approach” to highlight particle size and interaction effects in highly-filled particulate composites. *European Journal of Mechanics-A/Solids*, 53:163–174, 2015. (Cited on page 24.)
- B. TUNÇ et Ş. ÖZÜPEK : Constitutive modeling of solid propellants for three dimensional nonlinear finite element analysis. *Aerospace Science and Technology*, 69:290–297, 2017. (Cited on pages 19 and 158.)
- V. TVERGAARD et J. W. HUTCHINSON : The influence of plasticity on mixed mode interface toughness. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 41(6):1119–1135, 1993. (Cited on pages 32, 33, 79, 80, 84, 95, 131, 161 and 162.)
- C. VAN LOAN : *Computational frameworks for the fast Fourier transform*, vol. 10. Siam, 1992. (Cited on page 187.)
- T. VIANT : *Caractérisation et modélisation du comportement dynamique des propergols solides et vulnérabilité des systèmes propulsés*. Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2019. (Cited on page 11.)
- W. M. VISSCHER et M. BOLSTERLI : Random packing of equal and unequal spheres in two and three dimensions. *Nature*, 239(5374):504, 1972. (Cited on page 27.)
- L. A. VRATSANOS et R. J. FARRIS : A predictive model for the mechanical behavior of particulate composites. Part I : Model derivation. *Polymer Engineering & Science*, 33(22):1458–1465, 1993. (Cited on page 24.)
-

- B. WIDOM : Random sequential addition of hard spheres to a volume. *The Journal of Chemical Physics*, 44(10):3888–3894, 1966. (Cited on page 27.)
- S. WILLIAMS et A. PHILIPSE : Random packings of spheres and spherocylinders simulated by mechanical contraction. *Physical Review E*, 67(5):051301, 2003. (Cited on page 27.)
- J. WIMMER, B. STIER, J.-W. SIMON et S. REESE : Computational homogenisation from a 3D finite element model of asphalt concrete—linear elastic computations. *Finite Elements in Analysis and Design*, 110:43–57, 2016. (Cited on page 29.)
- F. XU, N. ARAVAS et P. SOFRONIS : Constitutive modeling of solid propellant materials with evolving microstructural damage. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 56(5):2050–2073, 2008. (Cited on pages 11 and 24.)
- X.-P. XU et A. NEEDLEMAN : Numerical simulations of fast crack growth in brittle solids. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 42(9):1397–1434, 1994. (Cited on page 80.)
- W. YAN-QING et H. FENG-LEI : A micromechanical model for predicting combined damage of particles and interface debonding in PBX explosives. *Mechanics of Materials*, 41(1):27–47, 2009. (Cited on page 25.)
- K.-S. YUN, J.-B. PARK, G.-D. JUNG et S.-K. YOUN : Viscoelastic constitutive modeling of solid propellant with damage. *International Journal of Solids and Structures*, 80:118–127, 2016. (Cited on page 15.)
- J. ZEMAN et M. ŠEJNOHA : Numerical evaluation of effective elastic properties of graphite fiber tow impregnated by polymer matrix. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 49(1):69–90, 2001. (Cited on page 29.)
- O. ZERHOUNI : *Étude des propriétés élastiques effectives de matériaux poreux à microstructure aléatoire : caractérisation numérique, expérimentale et impression 3D*. Thèse de doctorat, Paris, IP Paris, 2019. (Cited on pages 30 and 45.)
- H. ZHANG, A. K. SCHOLZ, F. VION-LOISEL, Y. MERCKEL, M. BRIEU, H. BROWN, S. ROUX, E. J. KRAMER et C. CRETON : Opening and closing of nanocavities under cyclic loading in a soft nanocomposite probed by real-time small-angle x-ray scattering. *Macromolecules*, 46(3):900–913, 2013. (Cited on pages 18, 19 and 158.)
- X. A. ZHONG et W. G. KNAUSS : Analysis of interfacial failure in particle-filled elastomers. *Journal of engineering materials and technology*, 119(3):198–204, 1997. (Cited on page 24.)

Annexe A

Évaluation de la pression dans l'algorithme de Lubachevsky et Stillinger

Cette annexe détaille la démarche permettant d'évaluer une pression théorique lors de la génération de microstructures avec l'algorithme de [Lubachevsky et Stillinger \(1990\)](#). Celui-ci simule une dynamique moléculaire pour un système de particules ayant un mouvement brownien. Cette démarche a été implémentée par [Skoge et al. \(2006\)](#) dans le code utilisé dans ce projet.

L'équation du viriel donne accès à une mesure de la pression P suivant :

$$P = \frac{Nk_bT}{V} + \frac{1}{3V} \left\langle \sum_{i=1}^N \mathbf{r}_i \cdot \mathbf{F}_i \right\rangle \quad (\text{A.1})$$

avec k_b la constante de Boltzmann, N le nombre de particules, V le volume du système, T la température thermodynamique, \mathbf{r}_i le vecteur position d'une particule i , \mathbf{F}_i la résultante des forces internes s'exerçant sur cette même particule, $\bullet \cdot \bullet$ désignant le produit scalaire de deux vecteurs et les crochets $\langle \bullet \rangle$ correspondant à une moyenne temporelle.

À partir de l'énergie cinétique d'un système brownien $E_c = 2/3Nk_bT$ on peut estimer la pression réduite p qui correspond à la pression P du système, normalisée par celle des gaz parfaits $P_{gaz} = Nk_bT/V$:

$$p = 1 + \frac{1}{2E_c} \left\langle \sum_{i=1}^N \mathbf{r}_i \cdot \mathbf{F}_i \right\rangle \quad (\text{A.2})$$

Or, dans le système considéré, les forces internes n'interviennent qu'en cas de collision entre deux particules ([Skoge et al., 2006](#)). Ainsi, si on considère uniquement la collision entre deux particules i et j , sans considération temporelle, la pression réduite s'exprime comme :

$$p = 1 + \frac{1}{2E_c} \langle \mathbf{r}_i \cdot \mathbf{F}_i + \mathbf{r}_j \cdot \mathbf{F}_j \rangle \quad (\text{A.3})$$

Soit, d'après le principe des actions réciproques ($\mathbf{F}_i = -\mathbf{F}_j$) :

$$p = 1 + \frac{1}{2E_c} \langle (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) \cdot \mathbf{F}_i \rangle \quad (\text{A.4})$$

La Force \mathbf{F}_i peut de son côté être estimée suivant le principe fondamental de la dynamique

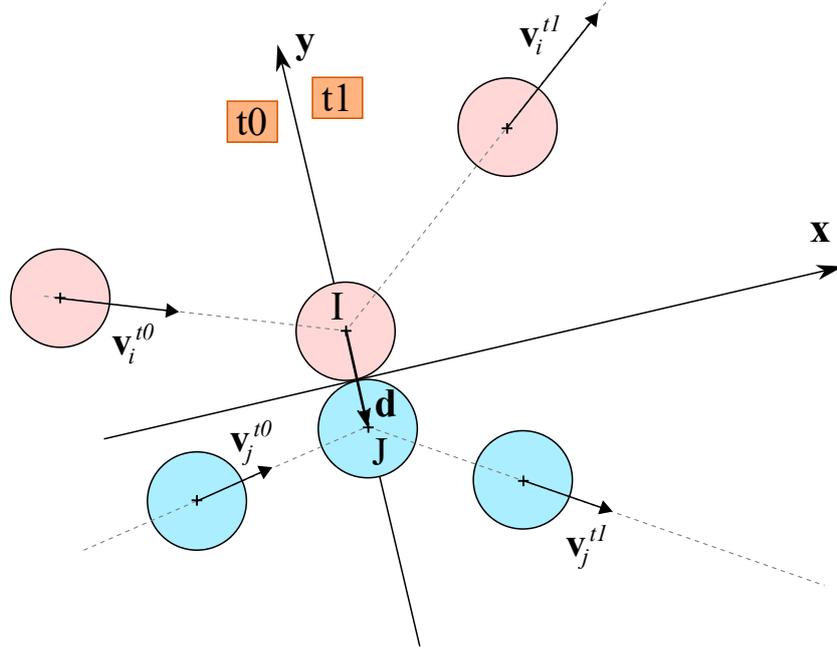


FIGURE A.1 : Illustration de la collision entre deux particules i et j avec leur vecteur vitesse \mathbf{v} avant (t_0) et après (t_1) le choc, la direction de ce dernier étant définie par le vecteur $\vec{IJ} = \mathbf{d}$.

appliqué à la particule i , dans le repère principal du système :

$$\mathbf{F}_i = M\mathbf{a}_i = M \frac{\partial \mathbf{v}_i}{\partial t} \quad (\text{A.5})$$

avec \mathbf{v}_i le vecteur vitesse de la particule i et M la masse de la particule.

D'où :

$$p = 1 + \frac{1}{2E_c} \left\langle (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) \cdot M \frac{\partial \mathbf{v}_i}{\partial t} \right\rangle \quad (\text{A.6})$$

En considérant la durée $\Delta t = t_1 - t_0$, pendant laquelle le choc a lieu, la pression peut être approximée par :

$$p_{\Delta t} = 1 + \frac{1}{2E_c} \left((\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) \cdot M \frac{(\mathbf{v}_i^{t_1} - \mathbf{v}_i^{t_0})}{\Delta t} \right) \quad (\text{A.7})$$

Par la suite, il convient de détailler plus précisément les vecteurs vitesses entrant en jeu lors du choc. La Figure A.1 illustre ainsi les positions des particules avant (t_0) et après (t_1) le choc et les paramètres associés.

De plus, en considérant uniquement la particule i à l'instant t_0 , la projection de sa vitesse sur le repère local du choc permet d'identifier sa composante perpendiculaire \mathbf{v}_i^{perp} et tangente \mathbf{v}_i^{tang} (Figure A.2). Les mêmes projections peuvent aussi être réalisées pour la particule j , permettant d'identifier \mathbf{v}_j^{perp} et \mathbf{v}_j^{tang} . Il convient de noter que ces composantes se référeront, par la suite, toujours aux projections à l'instant t_0 , bien que dans un souci de simplification l'exposant $-t_0$ soit éludé.

Dans le repère local, suite au choc élastique, les composantes perpendiculaires des vitesses des particules sont échangées alors qu'elles conservent leur vitesse tangente, d'où :

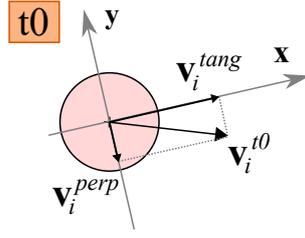


FIGURE A.2 : Projection de la vitesse \mathbf{v}_i^{t0} de la particule i à l'instant $t0$ dans le repère local du choc définissant les vecteurs \mathbf{v}_i^{perp} et \mathbf{v}_i^{tang} .

$$\begin{cases} \mathbf{v}_i^{t1} = \mathbf{v}_j^{perp} + \mathbf{v}_i^{tang} \\ \mathbf{v}_j^{t1} = \mathbf{v}_i^{perp} + \mathbf{v}_j^{tang} \end{cases} \quad (\text{A.8})$$

Dans l'équation A.7 le produit scalaire de la variation de vitesse $(\mathbf{v}_i^{t1} - \mathbf{v}_i^{t0})$ par le vecteur $\vec{IJ} = \mathbf{d} = (\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j)$ peut alors s'écrire :

$$(\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j) \cdot (\mathbf{v}_i^{t1} - \mathbf{v}_i^{t0}) = |\mathbf{d}| \left(|\mathbf{v}_j^{perp}| - |\mathbf{v}_i^{perp}| \right) \quad (\text{A.9})$$

$|\bullet|$ correspondant à la norme euclidienne.

D'où :

$$p_{\Delta t} = 1 + \frac{M}{2E_c \Delta t} |\mathbf{d}| \left(|\mathbf{v}_j^{perp}| - |\mathbf{v}_i^{perp}| \right) \quad (\text{A.10})$$

Or, la quantité de mouvement échangée lors du choc entre les particules i et j s'exprime comme :

$$X_m = M \mathbf{d} \cdot (\mathbf{v}_i^{t1} - \mathbf{v}_j^{t1}) \quad (\text{A.11})$$

d'où, d'après les expressions des vitesses à l'issue du choc (eq A.8) :

$$X_m = M |\mathbf{d}| \left(|\mathbf{v}_j^{perp}| - |\mathbf{v}_i^{perp}| \right) \quad (\text{A.12})$$

Finalement, la pression réduite peut s'exprimer comme :

$$p_{\Delta t} = 1 + \frac{X_m}{2E_c \Delta t} \quad (\text{A.13})$$

Il convient de noter que cette démarche ne considère qu'une unique collision. Cependant, le facteur de pression peut tout à fait être estimé sur un intervalle de temps Δt plus étendu. Le facteur X_m est alors incrémenté de la quantité de mouvement échangée entre les particules à chaque collision.

La prise en compte d'un intervalle relativement conséquent permet d'obtenir une évolution de pression moins oscillante et donc plus évidente à comparer avec l'équation d'état. Cependant, plus cet intervalle sera important moins il y aura de points d'estimation de la pression et l'évolution de la pression risque de perdre sa linéarité. Une fois encore, un équilibre doit être trouvé en jouant majoritairement sur le nombre d'évènements par cycle, afin d'obtenir des évolutions de pressions les plus lisses possibles, en vue de les confronter à l'EOS.

Annexe B

Calcul de la fonction de corrélation à deux points par transformée de Fourier

Une estimation exhaustive de la fonction de corrélation à deux points peut être calculée en balayant une grille de discrétisation avec un large panel de segments tests. Bien que cette approche soit simplifiée par la périodicité des microstructures et la parité de la fonction S_2 , permettant de ne considérer qu'un huitième de l'espace des segments tests, elle reste très chronophage, particulièrement en cas de *voxélisation* fine.

Afin de s'affranchir d'une approche itérative, pour laquelle chaque segment test est considéré séparément, il est possible de tirer parti du caractère périodique et cubique des microstructures étudiées, permettant alors d'aborder l'évaluation de la fonction de corrélation à deux points comme un calcul de matrices circulantes. Cette approche permet dès lors de simplifier considérablement la démarche en exploitant les propriétés remarquables de ces matrices, notamment dans l'espace de Fourier (voir [Van Loan \(1992\)](#) pour les relations de base entre les matrices circulantes et la transformée de Fourier ainsi que ([Liu et al., 2006](#)) pour leurs applications en trois dimensions).

En pratique, ces considérations permettent l'implémentation de la séquence suivante, dans une routine [Matlab.2017a](#), en vue d'évaluer la fonction de corrélation à deux points d'une microstructure donnée :

1. La cellule est échantillonnée pour former une matrice $N \times N \times N$ avec une valeur de un pour chaque *voxel* situé dans une particule et zéros dans l'élastomère.
2. Cette grille d'entier $N \times N \times N$ est convertie en une matrice de nombres complexes, avec une partie réelle égale à l'entier (1.0 ou 0.0) et une partie imaginaire nulle (0.0i).
3. La transformée de Fourier discrète 3D de cette matrice de complexes est ensuite évaluée très rapidement en appliquant un algorithme de *fast Fourier transform* (FFT).
4. Tous les termes de la matrice $N \times N \times N$, alors obtenue, sont multipliés par leur conjugué. Ainsi, chaque terme équivaut à son module élevé au carré, pour sa partie réelle, et une valeur nulle, pour sa partie imaginaire.
5. La transformée de Fourier discrète inverse 3D de cette matrice corrigée est alors calculée par iFFT (*inverse fast Fourier transform*), aboutissant à une matrice $N \times N \times N$ de nombres complexes avec une partie imaginaire nulle et une partie entière correspondant à la distribution de S_2 . Comme évoqué plus haut, seul $1/8^{\text{ème}}$ de cette matrice résultat présente un intérêt.

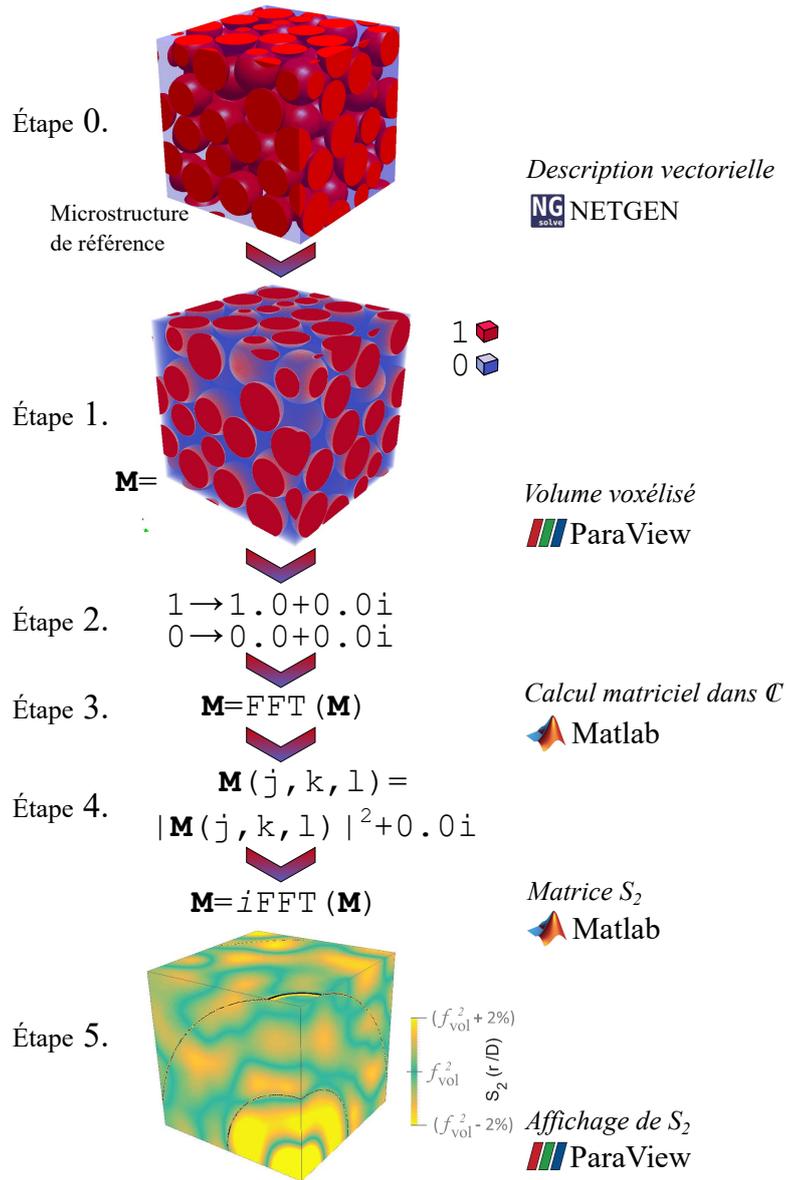


FIGURE B.1 : Illustration de la démarche mise en œuvre pour extraire la fonction de corrélation à deux points S_2 de la microstructure de référence avec des sphères (#8).

Ainsi, pour un segment test [OM], \mathbf{M} étant un point de coordonnée (a, b, c) , la valeur de la fonction de corrélation S_2 correspond à l'élément indexé par $(|a|, |b|, |c|)$ dans la matrice résultat, $|\bullet|$ définissant la partie entière. Cette séquence est illustrée en détails sur la Figure B.1 pour une discrétisation de 512^3 aboutissant à une matrice résultat de 256^3 .

Il est important de noter qu'une division par N^3 est incluse dans la définition de la transformée de Fourier discrète mise en œuvre dans l'algorithme. La division par N^3 implicitement requise par la définition de S_2 (pour obtenir une valeur moyenne sur toutes les positions balayées par les extrémités des segments tests) est donc appliquée lorsque les modules sont élevés au carré (étape 4.). En effet, la transformée de Fourier inverse n'induit qu'une seule multiplication par N^3 .

Annexe C

Travaux de stage de Nassim Zeroual

Cette annexe propose de reprendre les éléments clés des travaux de stage menés entre mai et juillet 2018 par Nassim Zeroual (*Sorbonne Université, Master SPI*).

La démarche de sélection des microstructures les plus représentatives a été testée sur des volumes contenant soit plus (128) soit moins de sphères (32). L'objectif est, d'une part, de confirmer que la sélection permet de supprimer les cellules les plus anisotropes, au-delà des cellules de 64 particules. D'autre part, il permet d'étudier la possibilité de prendre en compte un nombre de sphères plus faible que le consensus issu de [Gusev \(1997\)](#), grâce à l'optimisation des volumes considérés. Les configurations des simulations numériques sont globalement identiques à celle du projet, à l'exception de la matrice qui est considérée comme parfaitement incompressible et du nombre de sphères des microstructures.

C.1 Microstructures avec 128 sphères

Dix-huit microstructures, contenant 128 sphères, ont été caractérisées dans le cadre des petites déformations. Leurs propriétés élastiques et leur critère supplémentaire d'isotropie sont reportés sur la Figure [C.1](#). On constate, par rapport aux configurations à 64 sphères du projet (Figure [2.17](#)), que la dispersion est sensiblement réduite, avec une amélioration globale des critères d'isotropie. Cependant, dans la même lignée que dans l'étude, on note que la qualité de l'isotropie des différentes cellules reste très variable.

La caractérisation des propriétés géométriques de ces microstructures permet de sélectionner uniquement six microstructures, spécifiquement les numéros 1, 2, 4, 8, 10, 12 (Figure [C.1](#)). Leurs propriétés mécaniques sont alors réunies sur la Figure [C.2](#), confirmant aussi bien la réduction des dispersions des propriétés que la suppression des cellules les plus anisotropes du point de vue du critère supplémentaire d'isotropie. On note cependant que si dans le cas du module de Young on retrouve bien un effet négligeable ($<1.8\%$) de la sélection sur le module moyen estimé, un effet plus sensible ($\approx 2.8\%$) est observé dans le cas du module de cisaillement.

Par ailleurs, en se référant à la Figure [C.1](#), on constate que les microstructures 5 et 15, qui présentaient une isotropie remarquable, n'ont pas été conservées, soulignant l'absence de réciprocity de la démarche de sélection. Si des propriétés géométriques convenables semblent garantir une isotropie satisfaisante des microstructures, une isotropie notable ne garantit pas forcément un désordre suffisant du point de vue de S_2 ou H_V .

Ainsi, cette analyse permet de confirmer la validité de l'extension de la démarche à des microstructures contenant plus de sphères. Cependant, dans le cadre du projet, ces dernières ne semblent pas présenter un avantage particulier par rapport à la configuration choisie. En effet,

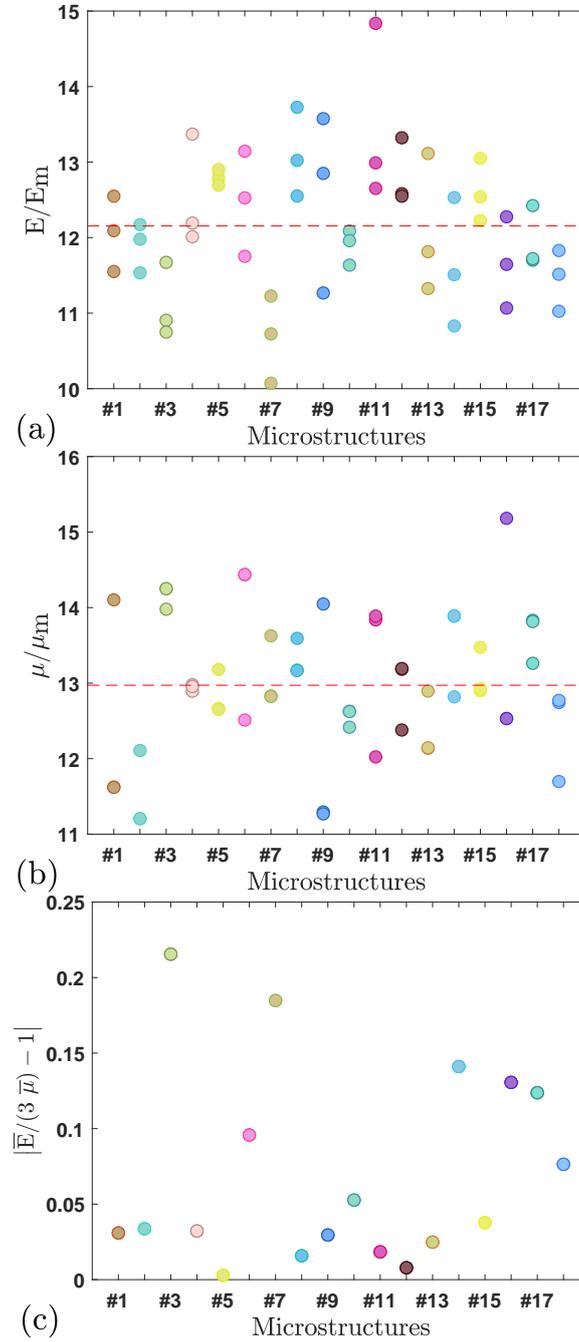


FIGURE C.1 : Modules de Young (a) et de cisaillement (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux de dix-huit microstructures contenant 128 sphères avec une fraction volumique de 55%. Les lignes en pointillés représentent les moyennes des modules sur l'ensemble de la série. (c) Critère d'isotropie évalué à partir du rapport des modules de Young et de cisaillement moyen pour chaque microstructure.

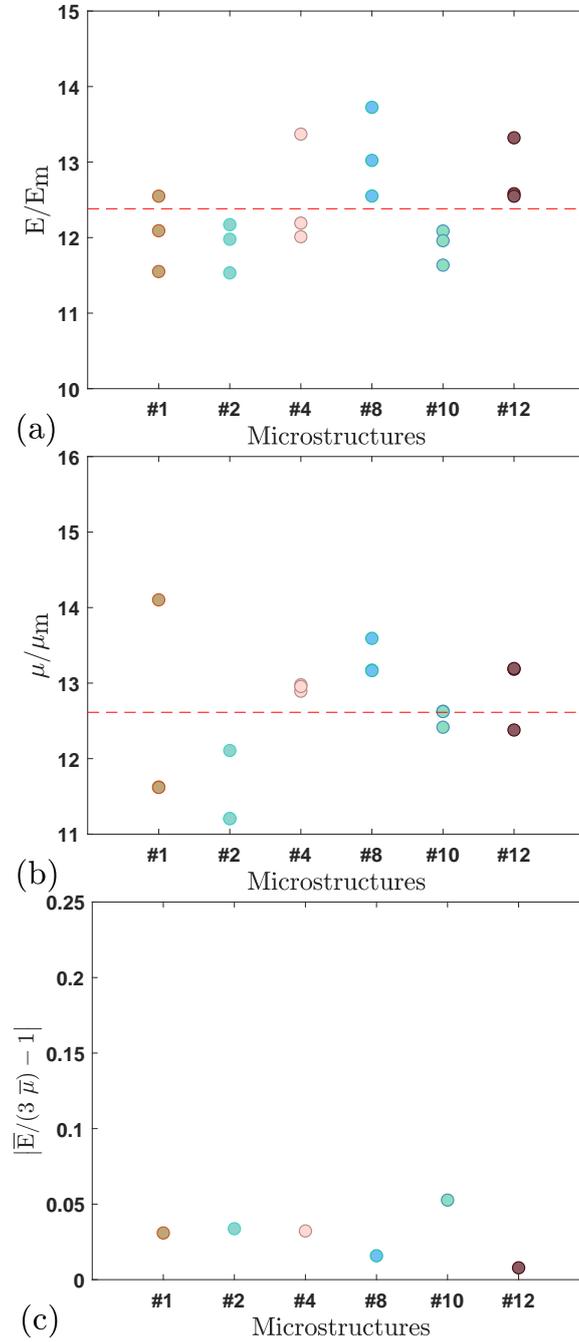


FIGURE C.2 : Modules de Young (a) et de cisailment (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux des six microstructures contenant 128 sphères **sélectionnées** selon les critères géométriques S_2 et H_v . Les lignes en pointillés représentent les moyennes des modules pour les sept microstructures. (c) Critère supplémentaire d'isotropie évalué à partir du rapport des valeurs moyennes des modules de Young et de cisailment pour ces microstructures.

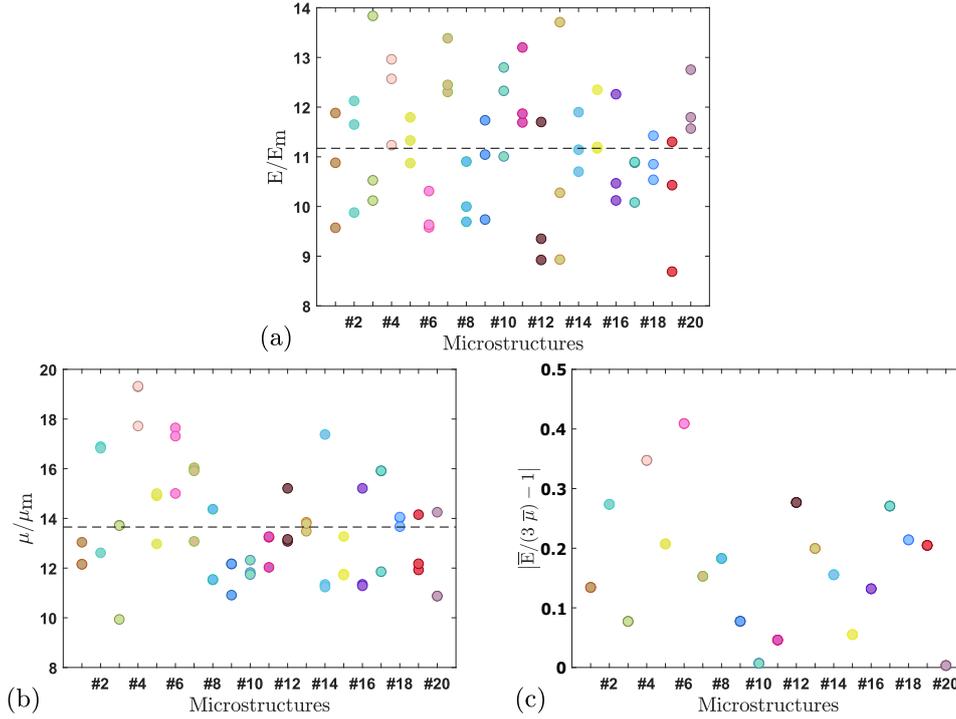


FIGURE C.3 : Modules de Young (a) et de cisaillement (b), normalisés par ceux de la matrice, calculés suivant les trois axes principaux de vingt microstructures contenant 32 sphères avec une fraction volumique de 55%. Les lignes en pointillés représentent les moyennes des modules pour les sept microstructures. (c) Critère d'isotropie évalué à partir du rapport des modules de Young et de cisaillement moyen pour chaque microstructure.

elles nécessitent des maillages plus conséquents afin de discrétiser les particules supplémentaires induisant donc des temps de calcul augmentés.

C.2 Microstructures avec 32 sphères

De la même façon, une analyse statistique sur vingt microstructures contenant 32 billes a été proposée. Les comportements obtenus sont reportés sur la Figure C.3 démontrant globalement une dispersion des propriétés mécaniques similaires aux configurations avec 64 particules. Néanmoins, on note une anisotropie bien plus marquée de chacune des microstructures prise séparément et ce du point de vue des trois critères utilisés dans le projet (dispersion des deux modules et critère supplémentaire d'isotropie). Aussi, très peu de cellules semblent présenter une isotropie satisfaisante (Figure C.3).

Les caractérisations géométriques (S_2 , H_v) de ces microstructures ont également été calculées. Néanmoins, dans le cas de S_2 , aucune microstructure n'a présenté une évolution proche de la référence, obtenue à partir d'une distribution de Percus et Yevick (1958). Leur distribution des plus proches voisins révèle un écart avec l'évolution de référence, pour un système parfaitement aléatoire, bien que celui-ci reste modéré. L'échec de cette approche est d'autant plus marquant que même pour les deux microstructures qui présentent la meilleure isotropie, en particulier du point de vue du critère d'isotropie, (respectivement les numéros 10 et 20) leurs propriétés géométriques restent insatisfaisantes, comme le montre la Figure C.4. Ce constat confirme l'absence de réciprocité, évoquée précédemment, et il semble que sur la population considérée aucune microstructure n'ai présenté des propriétés géométriques satisfaisantes.

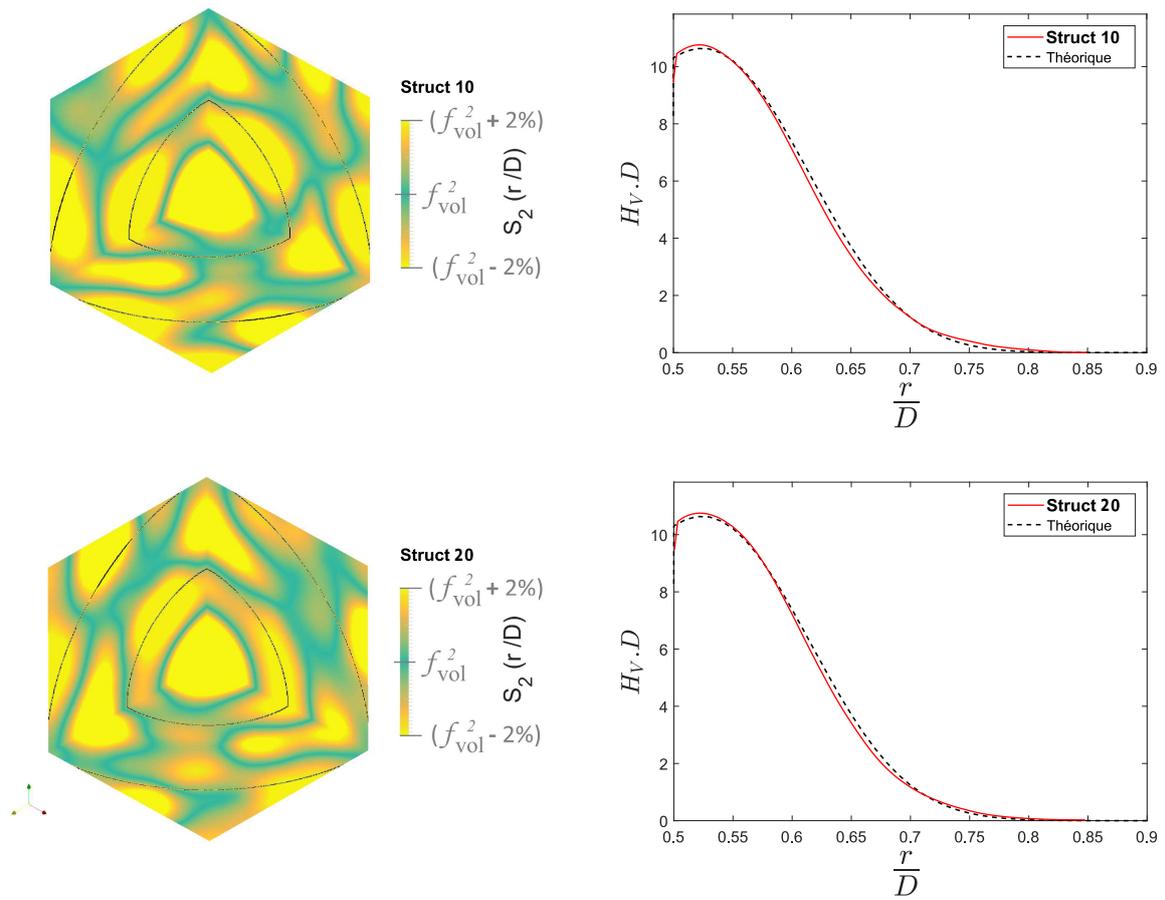


FIGURE C.4 : Évolution de la fonction S_2 pour les microstructures 10 et 20 contenant 32 sphères représentant 55% de la fraction volumique avec réduction de l'échelle de couleur afin de faciliter l'analyse et comparaison de leur distribution des plus proches voisins avec la distribution théorique d'un système parfaitement aléatoire (pointillés noirs).

Cette analyse démontre que la démarche de sélection des microstructures sur la base de leurs propriétés géométriques ne permet pas de considérer un nombre réduit de particules par rapport à la référence issue de Gusev (1997). Ainsi, dans cette configuration, on retrouve une dispersion importante des propriétés élastiques, des anisotropies notables et des propriétés géométriques éloignées de celles d'un système aléatoire. Il est probable que la variabilité d'un système de 32 sphères ne soit pas suffisante pour induire un désordre satisfaisant et ainsi assurer la représentativité des cellules.

On peut cependant noter, en accord avec Kanit *et al.* (2003), que les propriétés moyennes estimées restent proches de celles obtenues avec 128 sphères (9.7% d'écart pour le module de Young et 5.3% pour le module de cisaillement). Aussi, si les microstructures avec 32 sphères ne peuvent être considérées comme des VER, il semble qu'elles puissent fournir des estimations valides dans le cadre d'une approche statistique en prenant en compte un nombre très important de cellules. Néanmoins, au regard des temps de calcul éléments finis de ces microstructures, une telle approche semble moins intéressante que les configurations mises en œuvre dans le projet.

Les études menées dans ce stage ont ainsi permis à la fois de confirmer et d'étendre la démarche de sélection des microstructures proposées puis d'apporter un regard objectif sur le processus et sa mise en œuvre. Par ailleurs, elles ont permis de valider l'extension de l'approche à des microstructures de tailles plus importantes. Si dans le cadre du projet la prise en compte de VER contenant plus de particules ne semble pas avoir un intérêt particulier, la définition d'un critère de rupture pourrait nécessiter de considérer des volumes bien plus grands. Une sélection de ceux-ci, sur la base de leur représentativité, pourrait alors s'avérer capitale.

Titre : Étude micromécanique du lien entre endommagement local et comportement macroscopique de propergols solides

Mots clés : Micromécanique, Matériau renforcé avec des particules, Éléments Finis, Volume élémentaire représentatif, Modèle de zone cohésive, Microstructure aléatoire

Résumé : L'objectif de ce projet de recherche est le développement de simulations numériques de l'endommagement de propergols solides, qui sont dédiés à la propulsion anaérobie, afin d'identifier quelles propriétés affectent leur comportement. Pour étudier l'effet de la géométrie des différentes particules énergétiques, des microstructures 3D sont générées avec une dispersion aléatoire d'inclusions monomodales, sphériques ou polyédriques, à très forte fraction volumique (55%). Dans le cas des sphères, les propriétés élastiques des volumes élémentaires représentatifs (VER) sont confrontées à un modèle analytique et à des caractérisations expérimentales de composites modèles, démontrant une cohérence remarquable entre les trois approches. Par la suite, la réponse linéaire des VER contenant des polyèdres est comparée à celle des particules sphériques, démontrant un effet très limité de la géométrie des charges. L'endommagement de ces matériaux étant majoritairement dû aux décohésions matrice/particules, une loi de zone cohésive bilinéaire est implémentée avec une régularisation visqueuse et un affichage de l'état d'endommagement des interfaces. L'influence du pre-

mier ordre des paramètres de zone cohésive, tant sur le comportement global que l'endommagement local, peut alors être démontrée. Si les difficultés de convergence numérique ne permettent pas d'envisager une confrontation quantitative avec les données expérimentales, les tendances spécifiques de ces dernières sont remarquablement reproduites, que ce soit à l'échelle des particules ou du matériau. Une étude paramétrique permet de mettre en évidence l'influence des paramètres de zone cohésive sur la réponse globale. L'analyse de l'impact de la géométrie des particules sur le comportement endommagé conduit au même effet du second ordre observé précédemment. Enfin, une étude des propriétés de quasi-propergols, représentatifs des propergols les plus communs, est proposée. En suivant un processus industriel de caractérisation, leurs propriétés d'interface sont identifiées qualitativement, en s'appuyant sur les tendances suggérées par les simulations. Afin de compléter cette analyse, des caractérisations non conventionnelles sont proposées, permettant de valider sa cohérence et de fournir de nouveaux éléments d'identification des propriétés d'adhésions.

Title : Micromechanical study of the link between local damage and macroscopic behavior of solid propellants.

Keywords : Micromechanics, Particulate reinforced material, Finite elements, Representative volume element, Cohesive-zone model, Random microstructure

Abstract : The goal of this present project is the development of numerical tools for simulating damage of solid propellants, which are used for anaerobic propulsion. It should allow identifying which properties disturb their behavior. To study the effect of energetic particles shapes, 3D microstructures are generated with a random dispersion of monosized spheres or polyhedra at high volume fraction (55%). In case of spheres, the elastic properties of the representative volume elements (RVE) are confronted with an analytical model and experimental characterizations of model composites, with a remarkable coherence of the three approaches. Then, the linear behavior of REV filled with polyhedra is compared to the one in case of spheres, highlighting only a limited effect of particles shapes. Damage of those materials being mostly due to matrix/filler debonding, a bilinear cohesive zone model with a viscous regularization and posting of interfaces damage state

is implemented. The first order influence of the cohesive zone parameters either on the mechanical response or on the local damage is demonstrated. If convergence troubles prevent any quantitative confrontation with experimental data, their specific trends are well reproduced at either the particles or the global scales. A parameter study highlights also the impact of each cohesive zone parameter on the global behavior. Study of the damaged behavior, depending on particles shape, leads again to a second order impact. Finally, analyses of quasi-propellants, representative of common propellants, are proposed. Following the industrial characterization process, the interfaces properties are identified qualitatively based on the trends of the simulations. This analysis is completed by non-conventional characterization techniques to validate its coherence and to offer exhaustive information on the adhesives properties.