



**HAL**  
open science

# Fatigue thermomécanique des élastomères : critère de durée de vie basé sur l'endommagement avec prise en compte du vieillissement physico-chimique

Andréas Hottin

## ► To cite this version:

Andréas Hottin. Fatigue thermomécanique des élastomères : critère de durée de vie basé sur l'endommagement avec prise en compte du vieillissement physico-chimique. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. Université de Lille, 2023. Français. NNT : 2023ULILN001 . tel-04407012

**HAL Id: tel-04407012**

**<https://theses.hal.science/tel-04407012>**

Submitted on 20 Jan 2024

**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.



# THESE

présentée à

## l'Université de Lille

pour obtenir le titre de Docteur de l'Université  
Discipline : Mécanique, Énergétique, Matériaux

soutenue par

**Andréas Hottin**

Le 19 janvier 2023

---

**Fatigue thermomécanique des élastomères : Critère de durée de vie basé sur l'endommagement avec prise en compte du vieillissement physico-chimique**

---

**- JURY -**

<b>N. AIT HOCINE</b>	<b>Professeur</b>	<b>INSA Val de Loire</b>	<b>Président du jury</b>
<b>L. LAIARINANDRASANA</b>	<b>Directeur de recherche</b>	<b>Mines Paris PSL</b>	<b>Rapporteur</b>
<b>R. ESTEVEZ</b>	<b>Professeur</b>	<b>Université Grenoble Alpes</b>	<b>Rapporteur</b>
<b>M. NAÏT-ABDELAZIZ</b>	<b>Professeur</b>	<b>Université de Lille</b>	<b>Directeur de thèse</b>
<b>A. TALHA</b>	<b>Maître de conférences</b>	<b>Junia - HEI</b>	<b>Co-encadrant de thèse</b>
<b>K. CHARLET</b>	<b>Maîtres de conférences HDR</b>	<b>SIGMA Clermont</b>	<b>Examinatrice</b>
<b>C. OVALLE RODAS</b>	<b>Chargé de Recherche</b>	<b>Mines Paris PSL</b>	<b>Invité</b>

Unité de Mécanique de Lille

UML ULR 7512

Boulevard Paul Langevin, Cité Scientifique, 59655 VILLENEUVE D'ASCQ CEDEX

# REMERCIEMENTS

Ce travail de thèse a été réalisé à l'Unité de mécanique de Lille, sous la direction conjointe de Moussa Naït-Abdelaziz, professeur à l'Université de Lille, et d'Abderrahim Talha, Enseignant-Chercheur à Junia-HEI. Le financement provient de l'Université de Lille à raison de 50% et du Junia-HEI à raison de 50%.

Je remercie de tout cœur Moussa Naït-Abdelaziz de m'avoir choisi parmi tous les candidats postulant à cette bourse de thèse. Il m'a permis de réaliser un rêve, celui de devenir chercheur. Durant ces 3 années de collaboration, j'ai énormément appris de Moussa tant sur des aspects scientifiques que personnels. Je le remercie pour ces longues séances de discussion qui aboutissent à un travail complet fondé sur des bases scientifiques solides. Les remises en question, les découvertes, les fausses joies mais aussi le contentement de participer activement au développement des connaissances scientifiques resteront à jamais dans ma mémoire.

Je tiens également à remercier Abderrahim Talha de m'avoir accompagné durant ces 3 années. Son suivi et ses interventions lors des travaux expérimentaux, sa connaissance des méthodes expérimentales et ses connexions avec le monde industriel m'ont permis de progresser sur des aspects techniques et de réaliser une campagne expérimentale complète et précise. Abderrahim m'a aussi beaucoup aidé à comprendre le métier d'enseignant-chercheur qui paraît bien mystérieux au premier abord.

Moussa et Abderrahim ont vu en moi un passionné de science, une force de proposition et d'initiative mais aussi une forte tête et travailleur autonome. Ils ont fait preuve de patience, ils ont su me laisser de l'espace et du temps tout en restant présents lorsque je sollicitais leur aide afin que je puisse m'épanouir pleinement et pour ça je ne les remercierai jamais assez.

Je remercie aussi tous les collègues que j'ai pu côtoyer : Reda Kadri, Hamdi Beji, Anissa Khalifa, Toufik Kanit, Arnaud Beaurain... Merci pour votre présence et votre bonne humeur.

Je souhaite remercier ma femme, Marion Declerck pour sa présence quotidienne à mes côtés, pour sa compréhension quand je pensais plus à mes recherches qu'à la vie personnelle et tout simplement pour son soutien indéfectible. Je remercie finalement ma famille : mon père, ma mère, ma sœur et mes grands-parents. Leur soutien quotidien et leur exemple de persévérance et de pugnacité m'ont permis de continuer à avancer quand le moral me faisait défaut.

# Table des matières

## INTRODUCTION GENERALE

I.	Bibliographie.....	4
I.1	Généralités sur les polymères .....	4
I.1.1	Historique .....	4
I.1.2	Qu'est-ce qu'un polymère ? .....	4
I.2	Bibliographie : Études expérimentales du comportement thermomécanique cyclique des élastomères .....	8
I.2.1	Comportement quasi-statique.....	9
I.2.2	Influence des charges .....	10
I.2.3	Dépendance au temps – Viscoélasticité .....	12
I.2.4	Comportement hystérétique et effet Mullins.....	16
I.2.5	Influence de la température .....	19
I.2.6	Vieillessement thermique.....	22
I.2.7	Fatigue .....	24
I.2.8	Auto-échauffement.....	28
I.2.9	Cristallisation sous-tension .....	29
I.3	Bibliographie : État de l'art de la modélisation du comportement thermomécanique cyclique des élastomères .....	34
I.3.1	Rappel de mécanique des milieux continus .....	34
I.3.2	Hyperélasticité et modèles existants .....	37
I.3.3	Viscoélasticité et modèles existants .....	43
I.3.4	Fatigue et outils de prédiction de durée de vie.....	49
I.4	Conclusion de l'étude bibliographique.....	59
II.	Prédiction de la durée de vie d'élastomères sous chargement multiaxial et prise en compte du rapport de charge .....	61
II.1	Introduction .....	61

II.2	Procédure expérimentale .....	66
II.3	Modélisation du comportement mécanique.....	69
II.3.1	Rappels de l'état de l'art.....	69
II.3.2	Identification des paramètres.....	70
II.3.3	Critère de durée de vie multiaxiale .....	73
II.3.4	Développement d'une contrainte équivalente basée sur la Théorie de l'endommagement continu.....	76
II.3.5	Prise en compte du rapport de charge .....	87
II.4	Conclusion du chapitre II .....	93
III.	Prédiction de la durée de vie d'élastomères vieillis par thermo-oxydation .....	95
III.1	Introduction .....	95
III.2	Procédure expérimentale et résultats .....	99
III.3	Modélisation du comportement mécanique du matériau vieilli .....	102
III.3.1	Choix d'un critère de durée de vie .....	107
III.3.2	Prédiction par quantification du dommage induit par le vieillissement.....	107
III.3.3	Relation entre les paramètres de la théorie de l'endommagement continu et la microstructure. ....	114
III.3.4	Résultats et capacité prédictive du modèle couplé.....	117
III.4	Conclusion du chapitre III .....	123
IV.	Prédiction de l'auto-échauffement des élastomères sous chargement multiaxial.....	125
IV.1	Introduction .....	125
IV.2	Procédure expérimentale .....	129
IV.3	Résultats expérimentaux.....	131
IV.4	Modélisation de l'auto-échauffement sous sollicitations multiaxiales.....	134
IV.5	Prédictions du modèle .....	147
IV.6	Discussion de la dépendance au chargement du coefficient de transfert thermique convectif .....	157

IV.7	Comparaison entre couplage fort et couplage faible .....	158
IV.8	Conclusion du chapitre IV .....	162
V.	Prédiction de durée de vie des élastomères sous chargement multiaxial : Prise en compte de l'auto-échauffement.....	164
V.1	Introduction .....	164
V.2	Procédure expérimentale et résultats .....	165
V.3	Prise en compte de la température dans la prédiction de durée de vie .....	168
V.4	Prise en compte de l'auto-échauffement dans la prédiction de durée de vie.....	170
V.5	Conclusion du chapitre V .....	177
VI.	Annexes.....	183
VI.1	Annexe 1 .....	183
VI.2	Annexe 2.....	184
VI.2.1	Dispositif d'essais de fatigue multiaxiaux .....	184
VI.2.2	Dispositif d'essais de fatigue uniaxiaux.....	186
VI.2.3	Dispositif d'essais de fatigue à température contrôlée.....	187
VI.2.4	Dispositif de vieillissement accéléré .....	189
VI.3	Annexe 3.....	189
VII.	Références.....	192
 CONCLUSION GENERALE & PERSPECTIVES		

# INTRODUCTION GÉNÉRALE

Grâce à leurs propriétés mécaniques particulières, notamment leur capacité à subir de grandes déformations d'une part, et à dissiper de l'énergie d'autre part, les élastomères chargés sont employés dans de nombreux domaines industriels et plus particulièrement dans celui des transports. En service, la plupart des composants sont soumis à des sollicitations cycliques et les chargements sont souvent multiaxiaux et non-relaxants. L'optimisation de tels composants en termes de durée de vie nécessitent de mettre en place des outils prédictifs permettant de quantifier leur tenue mécanique pour ces chargements complexes. D'autre part, leur comportement dissipatif associé à leur faible conductivité thermique conduit à une accumulation de chaleur dans le matériau entraînant une élévation de la température lors de chargements répétés. On parle d'auto-échauffement. Puisque ce phénomène tend à réduire la tenue en fatigue, il a été largement étudié ces dernières années mais rarement pour les chargements multiaxiaux. Finalement, les élastomères soumis à des températures élevées pendant un certain temps voient leurs propriétés mécaniques se dégrader. Les études qui s'intéressent à ce phénomène dit de vieillissement thermo-oxydant se concentre bien souvent sur son impact sur les propriétés à rupture du matériau et négligent malheureusement son impact sur le comportement en fatigue.

Ce travail de thèse consiste à construire un outil de prédiction de durée de vie basé sur le cumul de dommage prenant en compte à la fois la multiaxialité des chargements cycliques, le phénomène d'auto-échauffement ainsi que le vieillissement thermo-oxydant. Le mémoire est organisé en 4 chapitres :

Dans le premier chapitre, un critère de durée vie pour les élastomères sous sollicitations multiaxiales est développé indépendamment de l'auto-échauffement et du vieillissement. Ce critère de durée de vie se base sur la théorie de l'endommagement continu (TEC) issue des travaux de (Lemaître et Chaboche 1990). Il s'agit de quantifier puis cumuler cycle après cycle, l'endommagement occasionné au matériau. Pour ce faire, une variable d'endommagement notée  $D$ , dont l'évolution dépend du chargement, est introduite. La dépendance non-linéaire au chargement est exprimé par le biais du nombre de cycle d'une part et d'une contrainte équivalente, supposée caractériser la complexité et l'intensité de la sollicitation, d'autre part.

L'intégration de la variable d'endommagement entre le matériau vierge et l'apparition d'une fissure macroscopique ( $\approx 1mm$ ), qui correspond à l'état complètement dégradé du matériau, permet l'estimation de la durée de vie pour tous les trajets de chargement possibles. Dans ce chapitre, la théorie de l'endommagement continu est étendue aux matériaux élastomères pour des chargements multiaxiaux et des rapports de charges variables. Dans un premier temps, une nouvelle expression de la contrainte équivalente dépendant de l'élongation principale maximale et des paramètres structuraux du matériau est développée. Dans un second temps, le rapport de charge est pris en compte en utilisant l'amplitude de la contrainte équivalente. Des essais de fatigue sous des trajets de chargement multiaxiaux et des rapports de charge variables ont été réalisées sur deux types d'élastomères : le caoutchouc naturel (NR) et le styrène butadiène (SBR). La comparaison entre les prédictions du modèle et les résultats expérimentaux ont conduit à un bon accord faisant de cette approche un outil intéressant pour la conception de composants en caoutchouc soumis à des chargements de fatigue multiaxiaux et non-relaxants.

Dans le second chapitre, les effets du vieillissement thermo-oxydants sont intégrés au critère précédemment développé. Les changements structuraux induits par le vieillissement sont modélisés à l'aide d'une équivalence temps-température sur la densité de chaîne de la matrice élastomère. Une relation entre les paramètres de la théorie de l'endommagement continu et la microstructure est établie. De cette manière, les modifications structurelles induites par vieillissement ont un impact direct sur le comportement en fatigue. Un très bon accord est trouvé entre les résultats de la modélisation et de l'expérimentation, et ce, pour une large gamme de conditions de vieillissement. Les capacités prédictives du modèle sont démontrées en le testant sur d'autres conditions de vieillissement impliquant des températures qui ne sont pas utilisées pour l'ajustement des paramètres.

Le troisième chapitre se concentre sur la prédiction de l'auto-échauffement des élastomères sous sollicitations multiaxiales. Le modèle proposé est un modèle découplé ne nécessitant qu'une estimation de la fraction d'énergie dissipée par rapport à l'énergie total de déformation en amont. La simulation par éléments finis pour résoudre le problème thermique utilise la configuration non déformée du matériau. L'évolution de la surface externe au cours de la déformation doit donc être prise en compte. En effet, l'augmentation de surface entraînée par la déformation favorise l'évacuation de la chaleur, et réciproquement, sa diminution favorise l'accumulation de la chaleur. Une façon de tenir compte de ce changement de surface lors de l'utilisation de la configuration non déformée consiste à rendre le coefficient de convection



thermique dépendant de la déformation de sorte que son produit avec la surface externe soit maintenu égal à celui normalement obtenu dans la configuration déformée (réelle). Le modèle proposé est en capacité de reproduire les mesures d'auto-échauffement faites sur 3 géométries d'éprouvettes différentes sollicitées en traction, en torsion, en compression et en traction-torsion combinées. Les capacités de ce modèle découplé sont comparées à celles d'un modèle à couplage fort de la littérature. Les deux modèles fournissent des résultats identiques avec un avantage significatif pour le premier qui ne nécessite que quelques minutes de calculs contre plusieurs heures pour le second.

Dans le quatrième chapitre, les effets de l'auto-échauffement sont pris en compte dans la prédiction de la durée de vie. On remarque notamment que pour une sollicitation donnée, plus l'éprouvette sollicitée est épaisse, plus l'auto-échauffement est important, plus sa durée de vie est courte. Cependant, les données expérimentales ont montré que le vieillissement thermique n'avait pas le temps de se produire lors des essais de fatigue. En effet, pour les faibles sollicitations, les essais sont suffisamment longs mais les températures atteintes sont trop faibles. D'autre part, pour les chargements plus importants, les températures atteintes sont élevées mais les essais sont trop courts pour que le vieillissement thermique puisse se manifester. L'impact de l'auto-échauffement sur la durée de vie se réduit à l'influence de la température qui peut être modélisée par le biais d'une équivalence temps-température sur les courbes de Wöhler obtenues pour 3 géométries d'éprouvette différentes. La courbe maîtresse ainsi obtenue permet l'estimation de la durée de vie du matériau quel que soit le chargement appliqué et quelle que soit la température.

Enfin, les résultats mis en évidence et les modèles développés dans cette thèse sont discutés dans une conclusion générale et les perspectives que ce travail aura soulevées sont également abordées.

## I. Bibliographie

### I.1 Généralités sur les polymères

#### I.1.1 Historique

Le caoutchouc, du terme amérindien « cao tchu » qui signifie « bois qui pleure », est un matériau aux propriétés spectaculaires qui intervenait dans l'artisanat domestique d'Amérique du sud et d'Amérique centrale bien avant l'arrivée des européens. Lors de la découverte du continent américain en 1492, Christophe Colomb observait les amérindiens jouer avec des balles fabriquées à partir de cet étrange matériau. Intrigué, il en rapporta un échantillon pour montrer aux européens les mystères du nouveau monde. Ce n'est qu'en 1736 que le français Charles-Marie de la Contamine redécouvre le « cao tchu » qu'il francise en caoutchouc. Les premières expériences scientifiques sur ce matériau, menées par l'ingénieur français François Fresneau pour imperméabiliser ses bottes, ont montré qu'il était difficile de façonner le caoutchouc qui est collant et très sensible à la température (il se fige à froid et devient visqueux à chaud). Il faudra attendre 1839 pour que Charles Goodyear fasse une découverte capitale : la vulcanisation. En présence de soufre et d'une source de chaleur, le caoutchouc perd son adhésivité et sa viscosité, le matériau devient élastique. C'est en 1888 que John Dunlop et les frères Michelin rivalisent d'ingéniosité en utilisant la vulcanisation de Goodyear pour fabriquer une chambre à air afin de donner naissance aux premiers pneumatiques. L'industrie du caoutchouc était lancée.

#### I.1.2 Qu'est-ce qu'un polymère ?

On appelle « polymère » un système formé par un ensemble de macromolécules. Chaque macromolécule est le résultat de l'enchaînement de plusieurs dizaines à plusieurs milliers d'unités de répétition appelées « monomères » et liées entre-elles par des liaisons primaires.

La polymérisation est la réaction chimique qui permet de passer du monomère au polymère. Si ce dernier est constitué d'un seul type de monomère, on parle d'homopolymère. Si deux ou trois espèces de monomères sont en jeu, il s'agit de copolymère. (Fig.I.2)

La structure d'une macromolécule est définie par la composition chimique des monomères, l'ordre d'enchaînement et les aspects topologiques. D'autres atomes ou des groupements chimiques peuvent être attachés au squelette par des liaisons primaires. Selon l'orientation de ces ramifications, on distinguera les macromolécules mono-, bi- et tridimensionnelles.

A l'échelle macroscopique, un matériau polymère est considéré comme un continu. Cependant à l'échelle microscopique, il peut être vu comme une pelote de macromolécule mêlées les unes aux autres à l'instar d'un plat de spaghetti, chaque pâte étant une macromolécule. En sorti de cuisson, les spaghetti sont mobiles les uns par rapport aux autres et les comportements des pâtes est globalement celui d'un liquide visqueux. Toutefois, les spaghetti fraîchement sortis du réfrigérateur semblent être figés et se comporter comme un solide élastique. Alors que les spaghetti sont collés entre eux par l'amidon refroidi, les macromolécules de polyisoprène dans le caoutchouc naturel sont liées par des ponts mono-, di- ou polysulfures grâce à de la vulcanisation de Goodyear. Ce phénomène est appelé « réticulation » (Fig.I.1). Dans les deux cas, un réseau tridimensionnel a été créé par réticulation à partir d'un mélange de chaînes résultant en un solide élastique. On distingue alors plusieurs populations de chaînes :

- La première population est constituée de chaînes fermement liées entre elles par réticulation et forment ainsi le réseau réticulé (Fig.1a). Leur mobilité relative est faible. Elles se comportent globalement comme un solide élastique. On parle aussi de chaînes élastiquement actives (CEA)
- La seconde est constituée de chaînes dites « libres-enchevêtrées » car elles ne sont pas réticulées mais sont tout de même nouées les unes aux autres et peuvent aussi être nouées au réseau réticulé (Fig.1b). Ces enchevêtrements sont susceptibles de glisser le long des chaînes et de se dénouer sous l'effet d'un chargement mécanique. A la différence des points de réticulation que l'on qualifie de nœuds chimiques, les enchevêtrements sont appelés nœuds physiques. La mobilité relative de ces chaînes est bien supérieure à celles chaînes de la première population mais les enchevêtrements peuvent parfois être indénouable. Par conséquent, elles participent tout de même à la rigidité du matériau en générant un peu d'élasticité mais surtout beaucoup de viscosité. En effet, le désenchevêtrement et le glissement des nœuds physiques nécessite de l'énergie qui ne sera pas rendu élastiquement. De plus, il est d'usage de considérer qu'un enchevêtrement ne peut que se dénouer sous tension et ne peut pas se reformer. Ainsi,

la seconde population de chaîne se transforme progressivement en une troisième population que l'on appelle chaînes « libres ».

- Ces chaînes sont dites « libres » car elles ne sont pas réticulées et ne présentent pas d'enchevêtrement (Fig.I.1c). Leur mobilité relative est totale bien qu'éventuellement bloquées par la présence d'autres chaînes et charges. Ainsi elles ne jouent aucun rôle dans l'élasticité du matériau. On parle donc de chaînes élastiquement inactives. En revanche, leur reptation avec le reste des chaînes dissipe une partie de l'énergie mécanique. Ces chaînes jouent donc un rôle dans la viscosité du matériau.

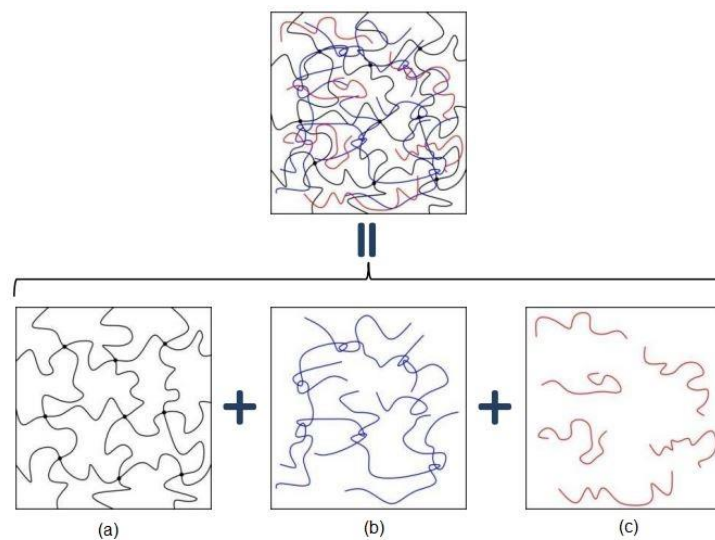


Fig.I.1 : Illustrations des diverses populations de chaînes dans un polymère réticulé

Selon leur comportement thermomécanique et leur degré de réticulation, on distingue trois familles de polymères : les thermoplastiques, les thermodurcissables et les élastomères.

□ Les thermoplastiques sont constitués de chaînes plus ou moins longues pouvant posséder ou non des ramifications et liées entre-elles par des liaisons de Van der Waals. Selon l'organisation des chaînes, ces polymères peuvent cristalliser ou non : on distingue alors les polymères semi-cristallins des polymères amorphes. Nous verrons plus en détails ce phénomène de cristallisation dans la partie 1.2.8 *Cristallisation sous tension*. Face à une élévation de température, les thermoplastiques ramollissent et perdent en rigidité jusqu'à fondre totalement et se comportent comme un fluide visqueux. Ils sont donc faciles à mettre en forme et à recycler.

On citera comme exemple le polychlorure de vinyle (PVC), le polyéthylène (PE) ou encore le caoutchouc naturel non-réticulé (NR pour « *Natural rubber* »)

□ Les thermodurcissables sont constitués de chaînes longues solidement liées entre elles par des liaisons primaires formant un réseau tridimensionnel stable et rigide. Ils sont mis en forme par coulée et ajout d'un catalyseur qui, une fois exposé à haute température, durcit le mélange. Contrairement au thermoplastique, une élévation de température après la mise en forme conduit à une combustion spontanée du matériau sans passer par une phase liquide. Les thermodurcissables ne sont donc pas recyclables. Le formica utilisé pour le revêtement des plans de travail ou la bakélite utilisé comme isolant électrique en sont de bons exemples.

□ Les élastomères sont des thermoplastiques très faiblement réticulés. A température ambiante, ils sont extrêmement déformables mais de manière réversible. Face à une élévation de température, ils ramollissent dans un premier temps à l'instar des thermoplastiques. S'ils sont confrontés longuement à des températures élevées, le phénomène de vieillissement thermique impactera la résistance du matériau en agissant sur le taux de réticulation. (*Voir paragraphe 1.2.6*). Le NR réticulé et le SBR (Styrène-Butadiène Rubber) en sont des exemples courants.





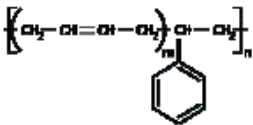

Désignation	Architecture des macromolécules	Exemple	Mère ou unité constitutive
Macromolécule linéaire		Polyéthylène haute densité (HDPE)	$\left( \begin{array}{cc} \text{H} & \text{H} \\   &   \\ -\text{C} & -\text{C}- \\   &   \\ \text{H} & \text{H} \end{array} \right)_n$
Homopolymère branché		Polyéthylène basse densité (LDPE)	$\left( \begin{array}{cc} \text{H} & \text{H} \\   &   \\ -\text{C} & -\text{C}- \\   &   \\ \text{H} & \text{H} \end{array} \right)_n$
Homopolymère à branches courtes		Polyéthylène linéaire de basse densité (LDPE)	$\left( \begin{array}{cc} \text{H} & \text{H} \\   &   \\ -\text{C} & -\text{C}- \\   &   \\ \text{H} & \text{H} \end{array} \right)_n$
Polymère en étoile à quatre branches		Styrène-butadiène bloc copolymère	$\left[ \text{CH}_2 - \text{CH} = \text{CH} - \text{CH}_2 - \text{CH} - \text{CH}_2 \right]_n$ 
Polymère réticulé		Caoutchouc vulcanisé, caoutchouc naturel	$\begin{array}{c} \text{CH}_2 \\   \\ -\text{CH}_2 - \text{C} = \text{CH} - \text{CH}_2 - \end{array}$

Fig.I.2: Exemple d'architecture des macromolécules [Kaush et al. 2001]

## I.2 Bibliographie : Études expérimentales du comportement thermomécanique cyclique des élastomères

Dans cette partie, une étude bibliographique est menée afin de déterminer l'état actuel de connaissance du comportement mécanique des élastomères ainsi que l'état de l'art de la modélisation de ce comportement.

### I.2.1 Comportement quasi-statique

Comme nous l'avons vu précédemment, les polymères peuvent être vus comme une pelote de macromolécules dont la mobilité relative dépend du degré de réticulation. Un élastomère étant faiblement réticulé, ses chaînes possèdent une grande mobilité lui permettant de grandes déformations toutefois réversibles.

Lors d'une sollicitation mécanique, la contrainte tend à ordonner les chaînes dans la direction de chargement. Cette modification s'accompagne d'une diminution de l'entropie du système. La suppression de la contrainte ramène le matériau à son état de désordre initial, état le plus probable correspondant à l'entropie la plus élevée du système. Les élastomères, pour lesquels l'état d'équilibre correspond à leur entropie maximale, sont des solides à élasticité entropique. Ils se différencient en cela des solides à élasticité enthalpique (métaux, polymères thermodurcissables, etc.) pour lesquels l'état d'équilibre correspond à leur enthalpie minimale.

La courbe Contrainte-Déformation, notée S-E dans la suite de ce manuscrit, typique d'un essai de traction uni-axial sur un élastomère est illustrée par la (Fig.I.3). On parle de chargement quasi-statique lorsque la vitesse de déformation est si faible qu'à chaque instant, on peut considérer que le matériau est en état d'équilibre thermodynamique. Cette hypothèse est communément appelée « Hypothèse de l'état local associé » (ou HELA)

Pour de faibles déformations, le comportement est élastique linéaire, présentant un module d'Young de l'ordre de 1 MPa. Pour les plus grandes déformations, les chaînes commencent à s'aligner petit à petit dans la direction de chargement, leur rigidité augmentant subséquemment. Il y a rupture quand elles ont atteint leur limite d'extensibilité. On notera que pour les matériaux cristallisables tels que le NR ou le CR (Polychloroprène), le durcissement aux grandes déformations est beaucoup plus marqué en raison du phénomène de cristallisation sous tension (Voir paragraphe 1.2.8)

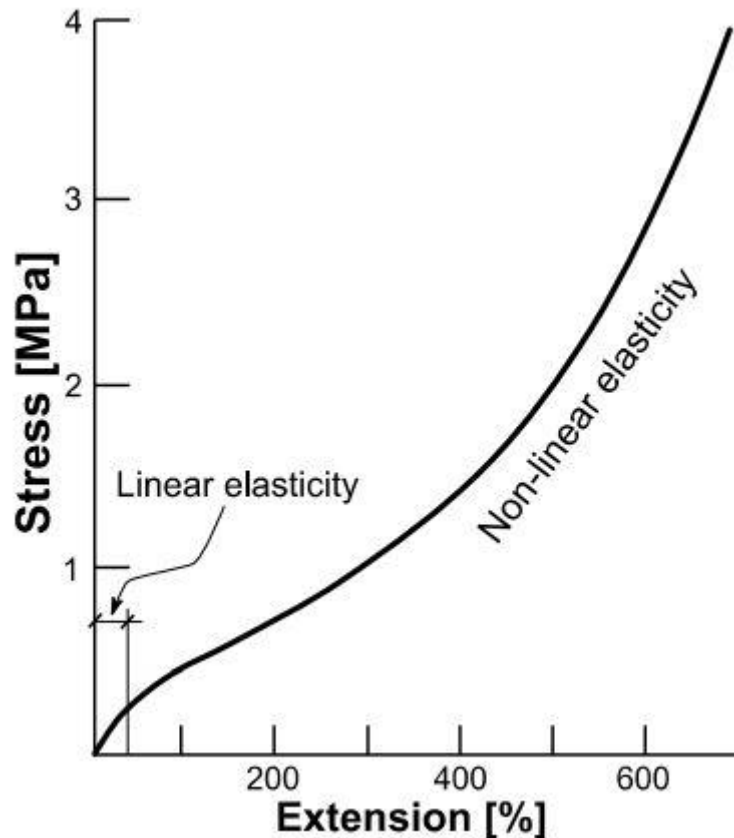


Fig.I.3 : Graphique Contrainte-Déformation typique d'un élastomère (Ovalle Rodas 2014)

### I.2.2 Influence des charges

L'utilisation des élastomères purs est rare, surtout dans le monde industriel. Bien souvent il s'agit de matériaux composites chargés. Ils sont composés d'une matrice élastomère et de particules d'un matériau beaucoup plus rigide comme le noir de carbone ou la silice que l'on appelle renforts ou charges. Les composites chargés ont un comportement bien différent de leurs composants élémentaires. Ils présentent un comportement élastique eu égard à la matrice élastomère mais aussi un comportement visqueux correspondant à l'écoulement des chaînes autour des charges considérées rigides. Ce comportement visqueux est semblable à l'écoulement d'un fluide autour d'un objet. Les charges, créant un obstacle et limitant ainsi la mobilité des chaînes, vont raidir le matériau et lui conférer des propriétés visqueuses et hystérétiques importantes que nous détaillerons dans les prochains paragraphes.

L'influence des charges sur la raideur du matériau est fonction de divers paramètres :



- La fraction volumique de charges notée  $\nu_f$  est exprimée en « pce » : Pour Cent d'Élastomère (en anglais *phr* : *Per Hundred of Rubber*)
- Le type de charges : Silice, noir de carbone, fibre de verre, etc.
- La topologie des charges : Les charges globalement sphériques tendent à se regrouper et former des agrégats ellipsoïdaux qui eux-mêmes peuvent se regrouper en agglomérats de forme aléatoire. (Fig.I.4). Les agglomérats peuvent emprisonner une portion de matrice qui se retrouvera protégée des sollicitations extérieures. Ne se déformant pas, le volume occupé par la matrice agira comme une charge plutôt que comme un élastomère. (Medalia 1970)
- La dispersion des charges : Un mélange matrice-charges homogène aura un comportement plus homogène. De plus la présence d'agglomérat de taille importante favoriserait les concentrations de contraintes et, par conséquent, une rupture prématurée. On notera donc que la qualité de manufacture est primordiale.

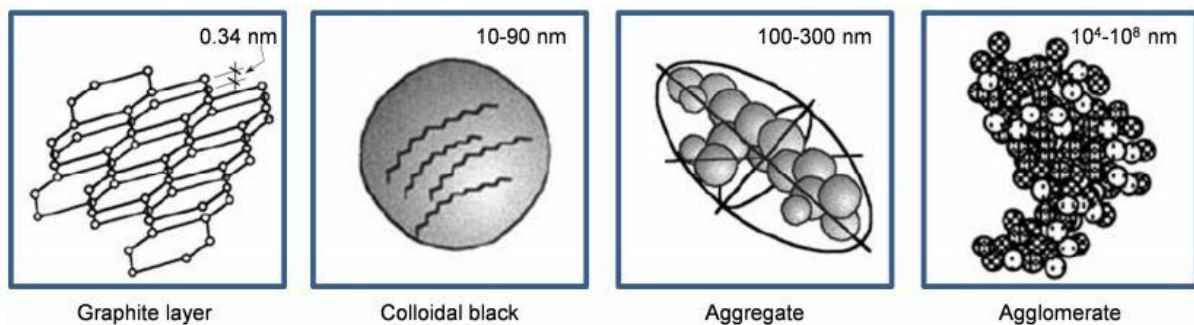


Fig.I.4 : Topologie des charges de noir de carbone à différentes échelles

L'influence des charges a été largement étudiée et de nombreux auteurs ont proposé des lois d'amplification du module élastique. (Guth et Gold 1938) propose une loi affine prédisant le module d'Young pour de faibles déformations :

$$\frac{E}{E_m} = 1 + 2.5\nu_f \quad (I.1)$$

Où  $E$  est le module d'Young du composite,  $E_m$  le module de la matrice élastomère et  $\nu_f$  la fraction volumique de charges. Pour tenir compte des interactions inter-agrégats, permettant

par conséquent des prédictions pour des fractions volumiques plus élevées, (Smallwood 1944) ont ajouté un terme à l'expression polynomiale précédente :

$$\frac{E}{E_m} = 1 + 2.5v_f + 14.1v_f^2 \quad (I.2)$$

Pour prendre en compte la forme ellipsoïdale des agrégats, (Guth 1945) ajouta un facteur de forme  $g_f$  à la précédente équation. Ce facteur de forme est le rapport entre le grand axe et le petit axe de l'ellipsoïde :

$$\frac{E}{E_m} = 1 + 2.5g_f v_f + 14.1g_f^2 v_f^2 \quad (I.3)$$

Souhaitant incorporer les interactions inter-particulaires (Mooney 1951) proposa une loi exponentielle et un facteur  $k$  à déterminer expérimentalement :

$$\frac{E}{E_m} = \exp\left(\frac{2.5v_f}{1 - kv_f}\right) \quad (I.4)$$

Notons que dans la pratique, la forme polynomiale incluant le rapport de forme  $g_f$  (Eq.I.3) est généralement utilisée.

### I.2.3 Dépendance au temps – Viscoélasticité

On définit un matériau viscoélastique comme un matériau qui présente un comportement à la fois élastique, i.e. réponse instantanée et réversible, et visqueux, i.e. réponse dépendante du temps et dissipative. Cette dépendance au temps est vue comme un temps nécessaire à un matériau pour trouver son équilibre thermodynamique et proposer une réponse stabilisée. Ce temps est appelé temps caractéristique, il est noté  $\tau$  et est propre à chaque matériau.

En réalité, tous les matériaux sont viscoélastiques. Qu'il s'agisse de polymères, de métaux ou de céramiques, tous les matériaux « s'écoulent » en quelques sortes, et seul l'ordre de grandeur du temps caractéristique change. Par exemple, le verre à température ambiante a un temps de relaxation de plusieurs milliards d'années. (Zanotto 1998) alors que la plupart des élastomères à température ambiante ont un temps de relaxation de quelques minutes (Ovalle Rodas et al. 2016), (Gamonpilas et McCuiston 2012), (Narooei et Arman 2018)

Dans le cas de sollicitations statiques, deux comportements sont mis en évidence en viscoélasticité : le fluage (Fig.I.5) et la relaxation (Fig.I.6). Le premier s'observe lorsque l'on applique une contrainte constante à un matériau viscoélastique. Ce dernier présentera tout d'abord une déformation instantanée (segment AB), puis une déformation qui évolue au cours du temps de manière non-linéaire (segment BC) puis linéaire (segment CD). Lors de la décharge, une réponse instantanée (DE) est observée suivie d'une évolution non-linéaire (EF) qui laissera place à une déformation résiduelle toutefois réversible après une longue période de temps.

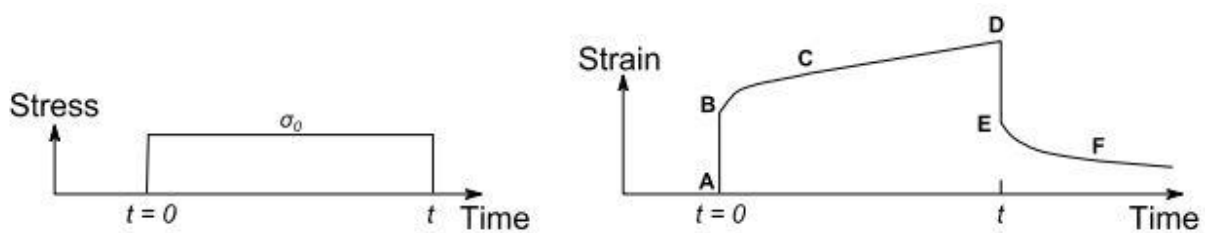


Fig.I.5 : Contrainte et déformation en fonction du temps lors d'un essai de fluage

La relaxation (Fig.I.6), quant à elle, a lieu lorsqu'une déformation constante est appliquée à un matériau. On peut alors observer une réponse en contrainte instantanée (AB) qui diminue ensuite au fil du temps (BD) jusqu'à se stabiliser (CD). A la décharge, on observe le comportement inverse si bien que la réponse instantanée est susceptible de comprimer le matériau (DE). Puis la contrainte se relaxe au cours du temps (EF). Le temps caractéristique cité plus tôt dans ce paragraphe est en réalité le temps nécessaire à faire le trajet BC. Il est donc relativement simple de déterminer ce paramètre expérimentalement. Pour les élastomères,  $\tau$  peut être vu comme le temps nécessaire aux chaînes pour s'aligner correctement avec la direction de chargement. Le noir de carbone raidissant le matériau en faisant obstacle aux chaînes, la réponse instantanée ainsi que le temps caractéristique seront fonction de la fraction volumique de charges.

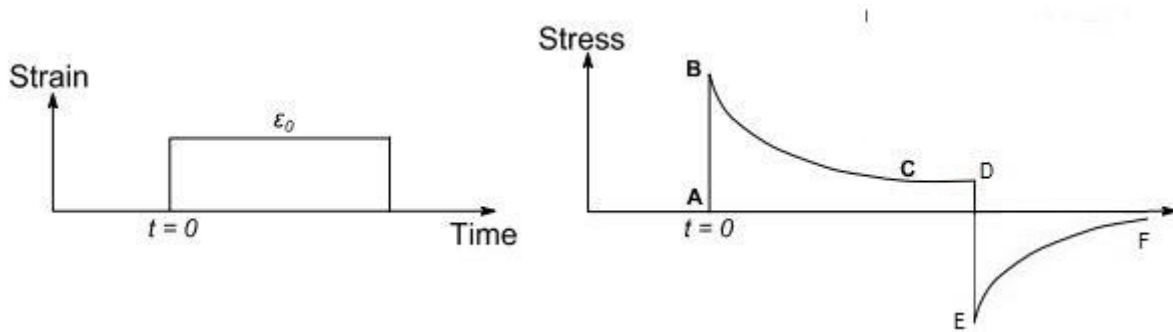


Fig.I.6: Contrainte et déformation en fonction du temps lors d'un essai de relaxation

Dans le cas de sollicitations dynamiques, la viscoélasticité se manifeste par un retard entre la sollicitation et la réponse. Comme on peut le voir sur la (Fig.I.7), lorsque l'on applique une déformation sous la forme d'un signal sinusoïdale à un matériau viscoélastique (trait fin continu), la réponse du matériau est déphasée (pointillés). Cette réponse peut être décomposée en une réponse en phase donc élastique (trait épais continu) et une réponse hors phase donc visqueuse (trait discontinu). Il est commun de modéliser ce comportement à l'aide d'un module complexe défini comme suit :

$$G^* = G' + iG'' \quad (I.5)$$

Où  $G^*$  est le module complexe,  $G'$  le module de conservation relié à l'énergie élastique emmagasinée et  $G''$  le module de dissipation relié à l'énergie visqueuse dissipée.

On définit également le facteur de perte correspondant à l'énergie perdue par frottement interne du matériau :

$$\tan(\delta) = \frac{G''}{G'} \quad (I.6)$$

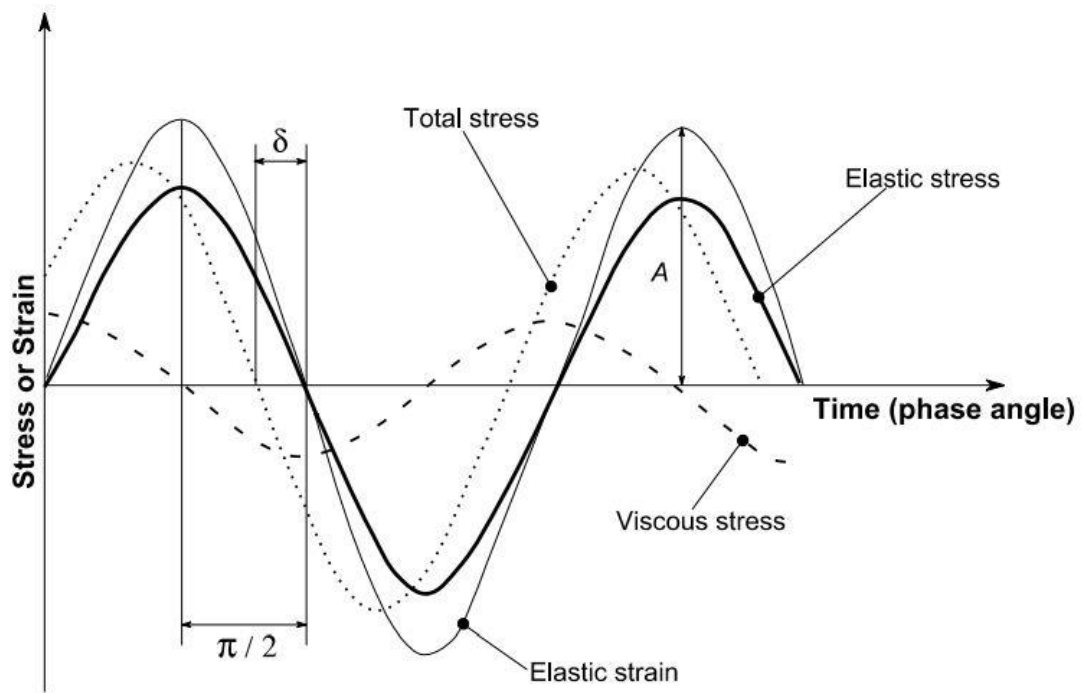


Fig.I.7 : Contrainte en fonction du temps lors d'une sollicitation dynamique

Pour les élastomères renforcés au noir de carbone, les modules  $G'$  et  $G''$  sont dépendants de l'amplitude de déformation imposée au matériau. Ce phénomène est appelé Effet Payne (Payne 1963) et est illustré par la (Fig.I.8).

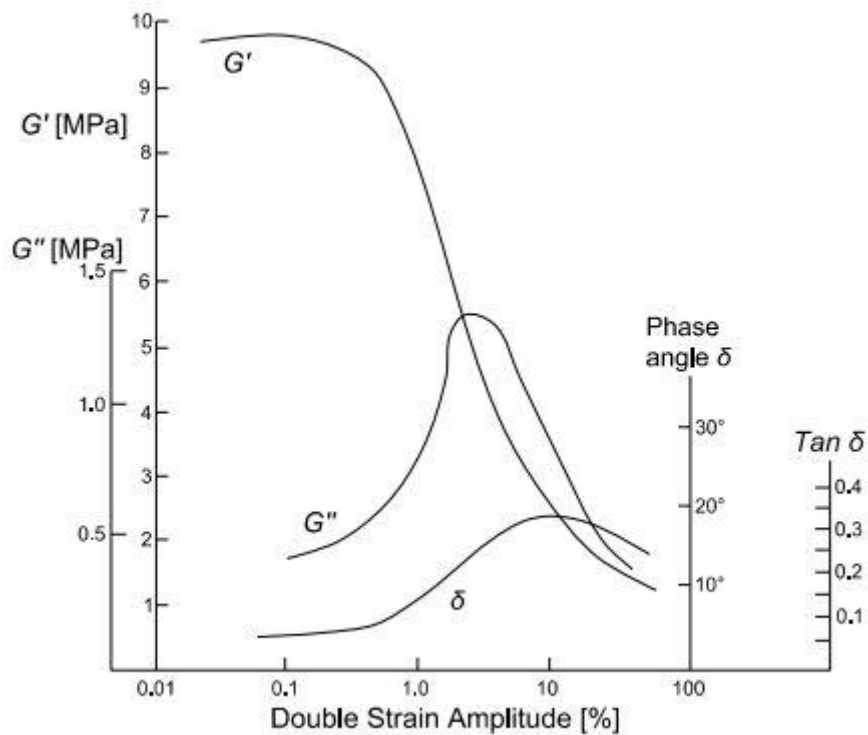


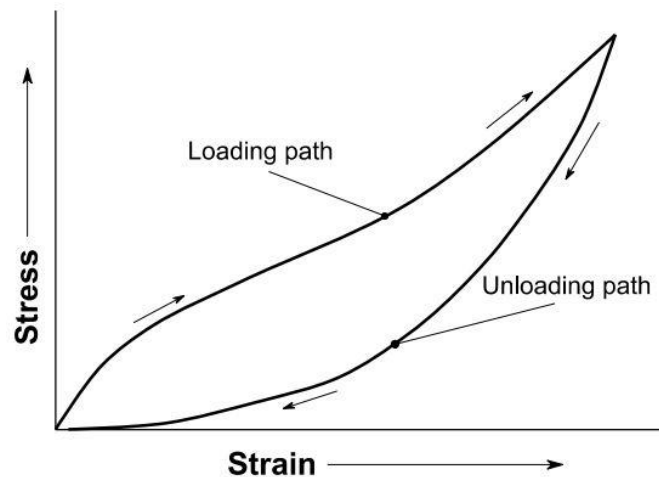
Fig.I.8 : Effet Payne (Payne 1963)

#### I.2.4 Comportement hystérétique et effet Mullins

L'hystérésis du grec *ὑστερος* (*hústeros*) signifiant « après, plus tard » est la propriété d'un système dont l'évolution ne suit pas le même chemin lors de l'application d'une sollicitation extérieure que lors de son retrait. L'hystérésis est communément comprise comme un phénomène de dissipation. En mécanique, et plus précisément en mécanique des élastomères, ce phénomène est observable lorsque l'on déforme un élastomère puis qu'on annule la déformation. La réponse en contrainte lors de la charge est plus importante que lors de la décharge (Fig.I.9). On attribue ce phénomène à l'énergie dissipée par le matériau. Les causes de cette dissipation sont nombreuses :

- Les frottements internes : La reptation entre les chaînes, la reptation entre les chaînes et les charges, la reptation entre les charges.
- Un endommagement quelconque : L'énergie nécessaire à la nucléation ou à la propagation d'une fissure est appelée énergie de fissuration. Cette énergie n'est pas rendue par le matériau sous forme de retour élastique, elle est donc dissipée.

- Des réorganisations microstructurales : Les agrégats de charges peuvent se dessouder et se reformer au gré des déformations qu'ils subissent. L'énergie nécessaire à ces restructurations n'est pas restituée élastiquement.
- La cristallisation sous-tension : Pour des chargements quasi-statiques et en grandes déformations, le graphique contrainte-déformation peut présenter une hystérésis qui est alors indépendante de toute dissipation mécanique. Il s'agit d'une quantité d'énergie nécessaire à la création de cristallites au sein du matériau lors de la charge et restituée différemment lors de la décharge (Samaca Martinez et al. 2013) (Voir paragraphes 1.2.8)



*Fig.I.9 : Boucle d'hystérésis sur un graphe S-E*

Le phénomène d'hystérésis est particulièrement prononcé lors des premiers cycles charge-décharge sur un polymère : on parle alors d'effet Mullins (Mullins 1969), dont le nom vient du scientifique Leonard Mullins qui l'a découvert. Comme le montre la (Fig.I.10), les premiers cycles à une élongation donnée exhibent une hystérésis prononcée qui tend à diminuer pour les cycles de chargement suivants et finit par se stabiliser. Il s'agit d'un adoucissement cyclique. Réitérer un cyclage à une élongation supérieure provoque le même phénomène.

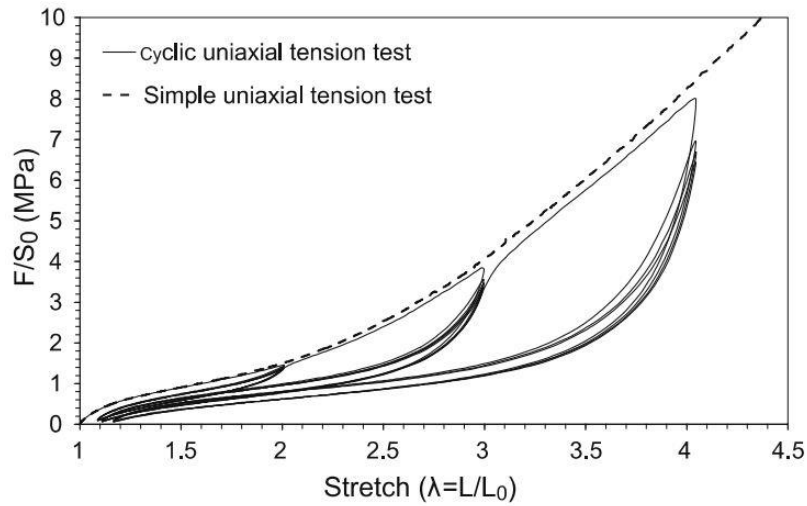


Fig.I.10 : Effet Mullins (Ovalle Rodas 2014)

Les opinions quant au processus causant l'effet Mullins divergent. Plusieurs auteurs ont tenté d'en donner une explication physique (Blanchard et Parkinson 1952; Houwink 1956; Bueche 1960; Kraus, Childers, et Rollmann 1966; Fukahori 2005; Hanson et al. 2005) (Fig.I.11) mais leur grand nombre montrent que ce phénomène est encore mal compris.

Finalement, certains auteurs ont montré que l'effet Mullins engendre une anisotropie des propriétés mécaniques du matériau (Machado, 2012). En effet, dans la direction de chargement le matériau perd en rigidité alors qu'il reste rigide dans les directions transverses.



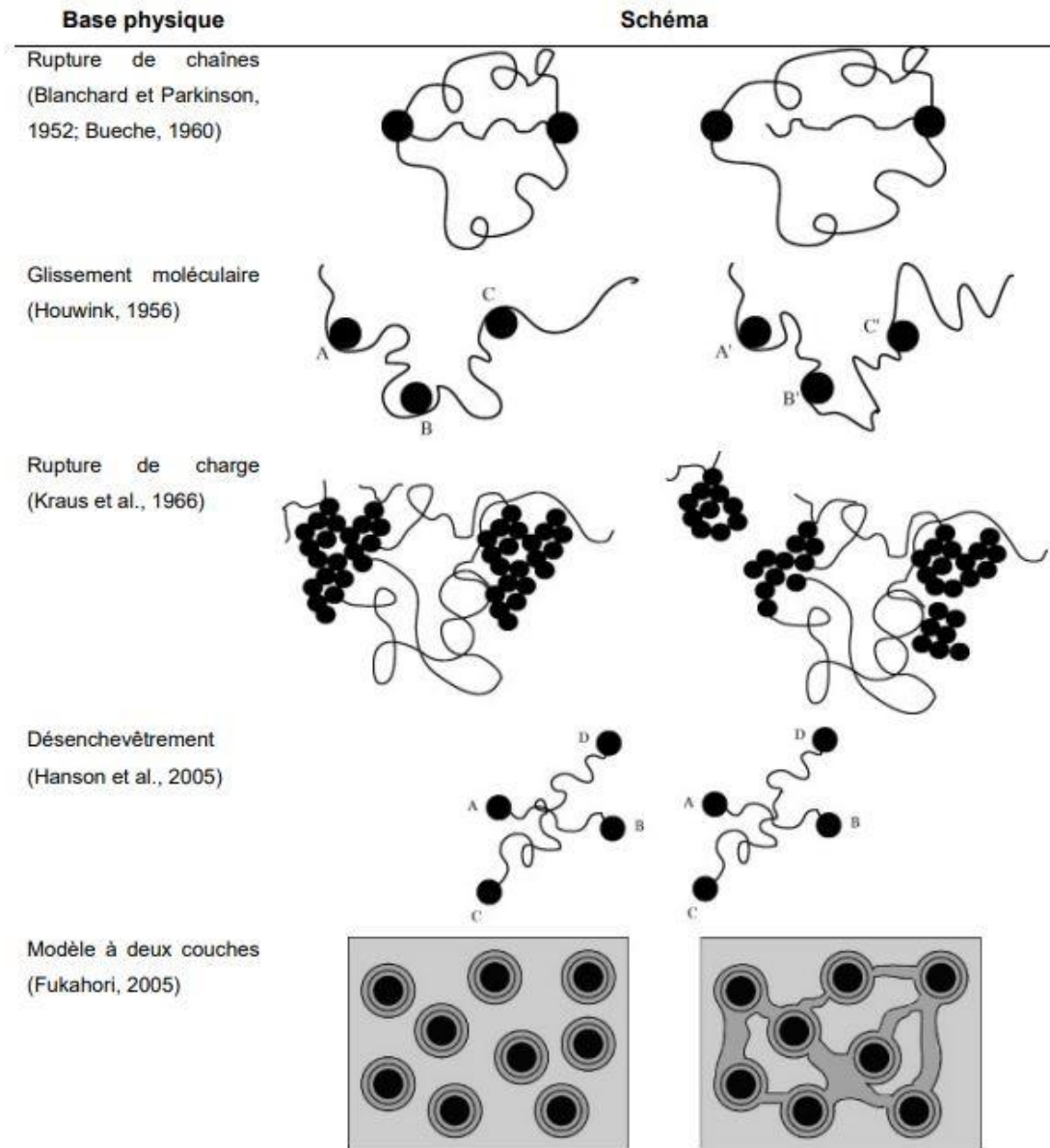


Fig.I.11 : Explications physiques de l'effet Mullins

### I.2.5 Influence de la température

Le comportement mécanique des polymères est extrêmement dépendant de la température. La majorité des polymères ramollissent quand la température augmente et durcissent quand la température diminue. En dessous d'une certaine température, le polymère peut vitrifier et devenir dur et cassant comme du verre. On parle de transition vitreuse (Fig.I.12).

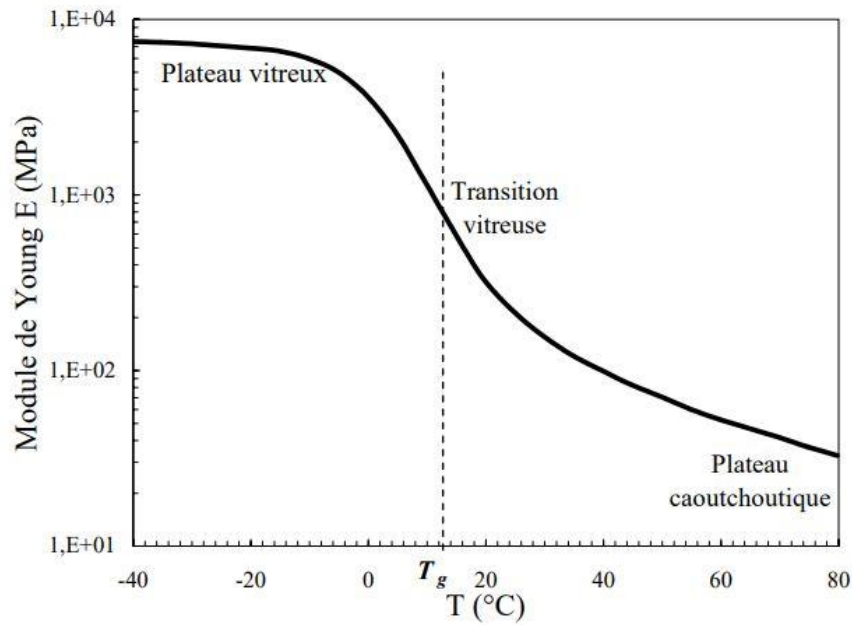


Fig.I.12 : Module d'Young vs. Température pour un polymère amorphe type

On notera que certains auteurs ont décelé un durcissement du matériau quand la température augmente (Lion, 1997; Rey, 2013). Ce phénomène est dû à une valeur seuil du coefficient de dilatation thermique  $\alpha$  (Ovalle Rodas, 2015). Pour des valeurs de  $\alpha < 10^{-3} \text{K}^{-1}$ , la module d'élasticité croît alors que pour des valeurs supérieures, il décroît (Fig.I.13).

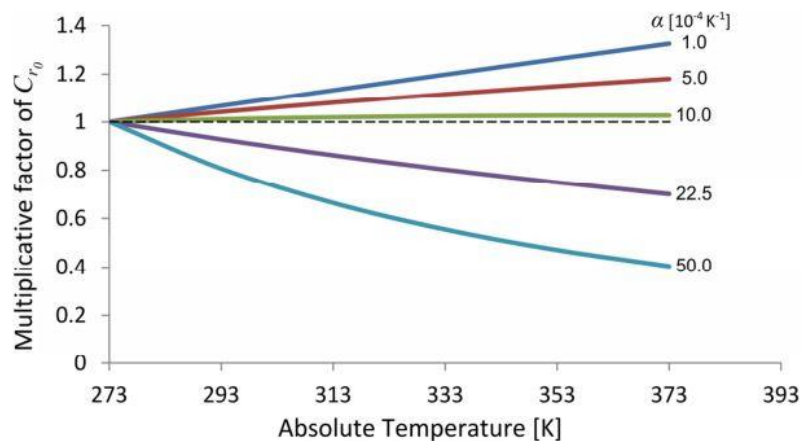


Fig.I.13 : Impact du coefficient de dilatation thermique sur le comportement mécanique (Ovalle Rodas, 2015)

Une autre manifestation remarquable de la thermoélasticité des élastomères est la variation de température obtenue par l'élongation du caoutchouc. John Gough est le premier à décrire ce phénomène en 1802. Lorsqu'il étire rapidement une bande de caoutchouc et la pose sur ses lèvres, il note une sensation de chaleur. Cette augmentation de température due à l'élongation est réversible puisqu'elle disparaît avec la rétractation. Cet effet thermique est étudié en détail par James Joule en 1859 avec une mesure de l'échauffement causé par l'élongation (Fig.I.14). L'auteur constate d'abord un très faible refroidissement de l'échantillon, puis une augmentation de la température. Dès lors, le phénomène appelé de manière générique « inversion thermoélastique » prit le nom d'effet Gough-Joule.

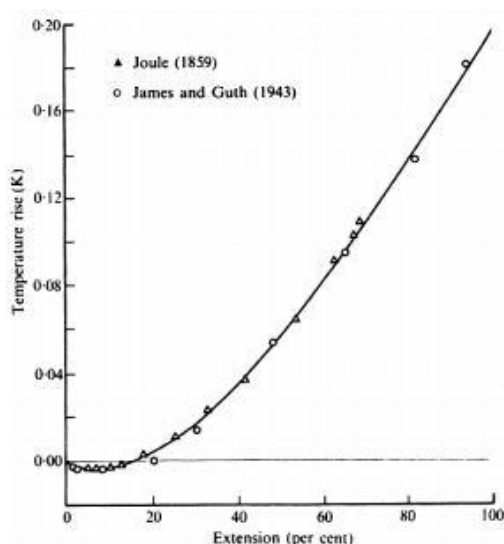


Fig.I.14: Manifestation de l'effet Gough-Joule, Joule (1859) et (James et Guth 1943)

On peut enfin noter que la température a un impact indirect mais non moins important sur le comportement mécanique par le biais de la cristallisation sous-tension et du vieillissement thermique. Nous développerons ces sujets dans les paragraphes dédiés (Voir paragraphe 1.2.6 et 1.2.9)

## I.2.6 Vieillessement thermique

Nous avons vu précédemment que le caoutchouc naturel, en présence de soufre et d'une source de chaleur, se transformait en un solide élastique par vulcanisation. La quantité de soufre et de catalyseur utilisés influencent la nature des points de réticulation (autrement appelés ponts mono-, di-, ou polysulfures). Ainsi, on différencie 3 types de vulcanisation (Tab.I.1) :

- La vulcanisation dite conventionnelle est obtenue en utilisant un fort taux de soufre. Dans ce cas, le réseau est principalement composé de ponts polysulfures et de quelques ponts di- et monosulfures.
- L'utilisation d'un système semi-efficace conduit à une proportion égale de ponts poly- et monosulfures.
- Les systèmes de vulcanisation efficaces présentent un faible pourcentage de soufre et un pourcentage élevé en catalyseur. Ils conduisent à des réseaux composés principalement de ponts monosulfures.

Type de vulcanisation	Conventionnel	Semi-efficace	Efficace
Ponts poly- et disulfures (% massique)	95	50	20
Ponts monosulfures (% massique)	5	50	80
Résistance au vieillissement thermique	--	+/-	++

Tab.I.1 : Proportion de ponts sulfures dans un élastomère réticulé (Hassine 2013)

Le vieillissement thermique est défini comme la modification des propriétés mécaniques d'un matériau après son exposition plus ou moins longue à une température plus ou moins élevée. En raison de l'apport d'énergie thermique, les ponts inter-chaînes sont susceptibles de se dissocier. L'énergie nécessaire à la dissociation d'une liaison varie en fonction des atomes formant cette liaison, les ponts monosulfures  $C - S - C$  étant les plus résistants et les polysulfures  $C - S_x - C$  les plus fragiles (Fig.I.15). Notons que les ponts  $C - C$  présents au sein même des macromolécules sont les plus résistants. Par conséquent, les ponts inter-chaînes vont se rompre avant les liaisons  $C - C$  du squelette de la chaîne principale. Ils pourront ensuite

se reformer à un autre endroit du réseau macromoléculaire pour s'accommoder des contraintes. Ce mécanisme confère au matériau vulcanisé de bonnes propriétés à la rupture associées à une grande capacité à relaxer les contraintes et à fluer. C'est le cas des matériaux obtenus par vulcanisation conventionnelle qui sont capables de relaxer les contraintes internes par destruction des ponts polysulfures. Le gain en stabilité thermique se fait donc au détriment des performances mécaniques de ces matériaux.

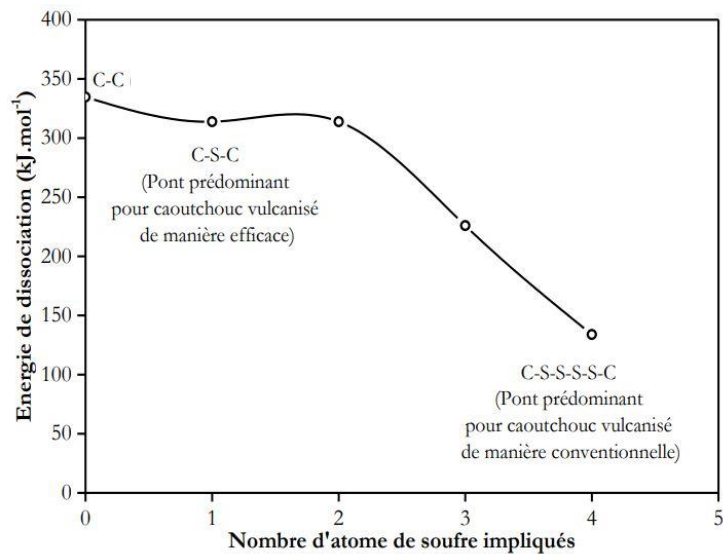


Fig.I.15 : Énergie de dissociation des ponts inter-chaînes (Dluzneski 2001)

Sous l'effet de la température, les ponts polysulfures de faible énergie se décomposent rapidement en ponts disulfures ou monosulfures. L'excès de soufre libéré est susceptible de créer de nouveaux ponts inter-chaînes. C'est le phénomène de post-réticulation. Par conséquent, la densité de réticulation augmente, rigidifiant de fait le matériau

Parallèlement, certains ponts disparaissent pour donner lieu à des structures soufrées cycliques ou des groupes soufrés pendants. Cet effet est à l'origine du phénomène de réversion appelée aussi dévulcanisation.

Finalement, l'apport d'oxygène mène au phénomène de thermo-oxydation dégradant les propriétés mécaniques du matériau par scissions de chaînes élastiquement actives, par ouverture des ponts sulfures ou par post-réticulation. L'oxydation a donc un impact fragilisant sur le matériau. La figure (Fig.I.16) illustre les 4 procédés de vieillissement thermo-oxydant.  $v$  et  $v_0$

sont les densités de réticulation à l'instant  $t$  et initial respectivement. De même,  $b$  et  $b_0$  sont les bouts de chaînes à l'instant  $t$  et initial respectivement

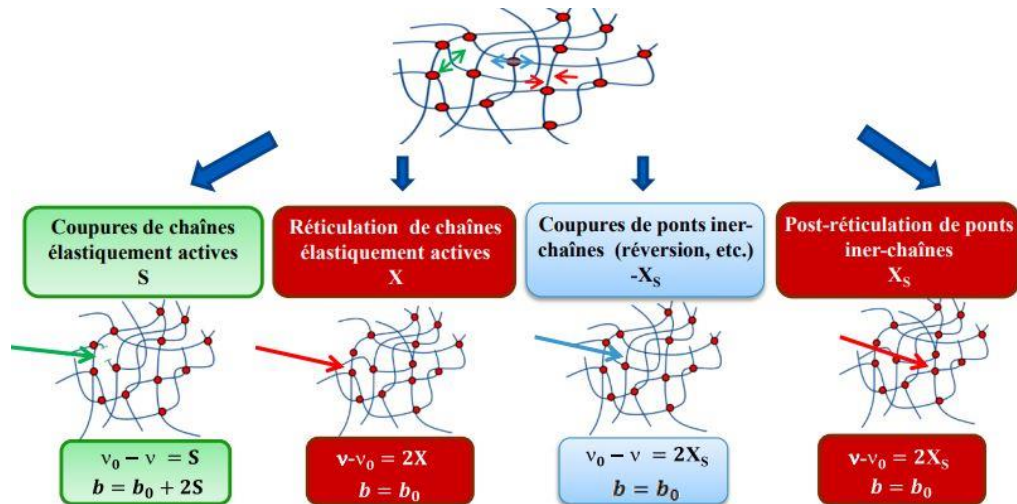


Fig.I.16: Mécanismes de vieillissement thermo-oxydant (Hassine 2013)

## I.2.7 Fatigue

### □ Définition et courbe de Wöhler

La fatigue est définie comme la dégradation des propriétés mécaniques et physiques d'un matériau en raison d'une sollicitation répétée. On doit les premiers travaux concernant la durée de vie des matériaux à Wilhelm Albert en 1829 qui travaillait sur les chaînes de puits de mine. Ce n'est qu'en 1839 que le terme « fatigue » fut utilisé pour la première fois. En 1842, la rupture en fatigue d'un essieu de train provoqua la catastrophe ferroviaire de Meudon ce qui motiva August Wöhler, ingénieur dans le ferroviaire et soutenu par le ministère du commerce prussien, à travailler sur la rupture d'axes d'essieux de trains. A l'exposition universelle de 1867 à Paris, Wöhler exposa ses travaux sur la fatigue des métaux, notamment la courbe baptisée de son nom et qui est encore utilisée de nos jours : la courbe de Wöhler (Fig.I.17). Ce diagramme représentant la contrainte en fonction du nombre de cycle (d'où son abréviation *Courbe S-N en anglais*) permet de déterminer la durée de vie d'un matériau en fonction du chargement appliqué. Cette courbe permet également, de déterminer la limite d'endurance, c'est-à-dire la

contrainte en deçà de laquelle aucun endommagement ne se produit et la durée de vie est supposée illimitée.

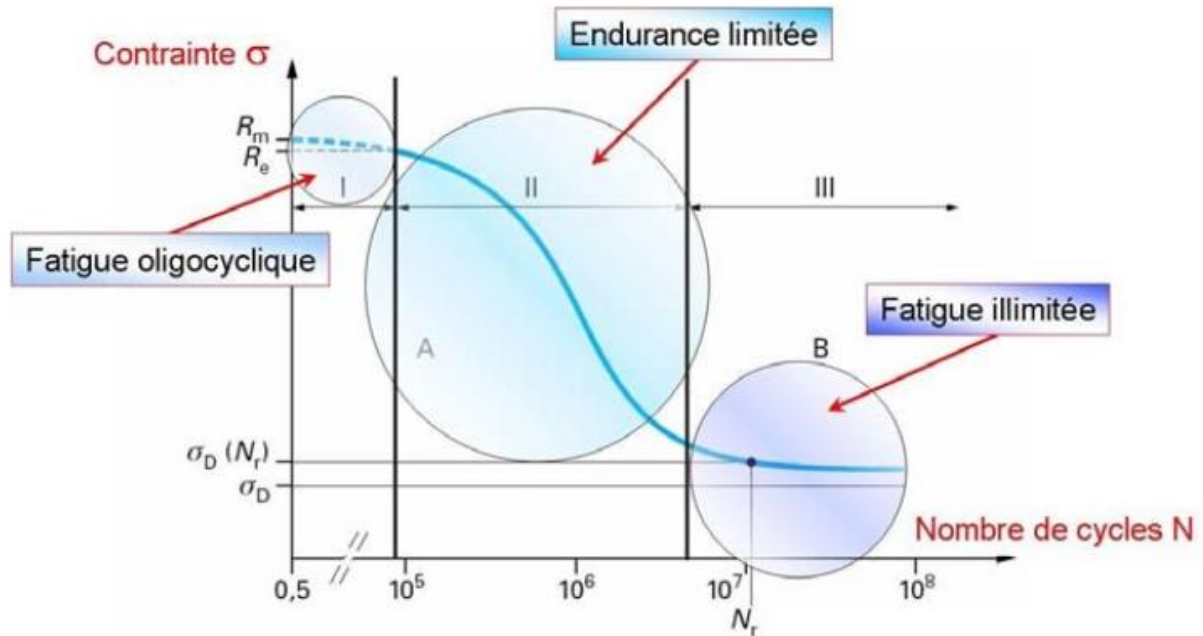


Fig.1.17 : Exemple type de courbe de Wöhler (Courbe S-N)

#### □ Fatigue des élastomères

Comme tout matériau, les élastomères sont sujets au phénomène de fatigue lorsque la sollicitation est répétée un certain nombre de fois. La fatigue, attribuée à l'endommagement du matériau, elle peut prendre des formes diverses :

- Rupture des points de réticulation
- Rupture des chaînes
- Désenchevêtrement des chaînes : Des chaînes courtes coincées entre deux chaînes enchevêtrées gardent leur intégrité après les premiers cycles. En cyclant, les chaînes se désenchevêtrent, transférant ainsi les contraintes aux plus petites chaînes, encore intègres, qui viennent à se briser.
- Décohésion charges-matrice (Le Cam et al. 2004)

Toutes ces modifications microstructurales mènent à l'initiation de microfissures apparaissant çà et là dans la matrice élastomère au cours de sa durée de vie, impactant peu le comportement

global du matériau. Lorsque ces microfissures coalescent et atteignent une taille critique, on parle de macrofissures. La rigidité apparente du matériau décroît à mesure que la macrofissure se propage. Il est généralement admis que le matériau arrive en fin de vie lorsque la fissure atteint une longueur mesurable d'environ 1mm.

□ Rapport de charge et diagramme de Haigh

Le rapport de charge est défini comme le rapport entre le chargement minimal et le chargement maximal durant un essai cyclique. On peut le définir en termes d'élongation :

$$R_\lambda = \frac{\lambda_{mini} - 1}{\lambda_{maxi} - 1} = \frac{\lambda_{moy} - \lambda_a - 1}{\lambda_{moy} + \lambda_a - 1} \quad (I.7)$$

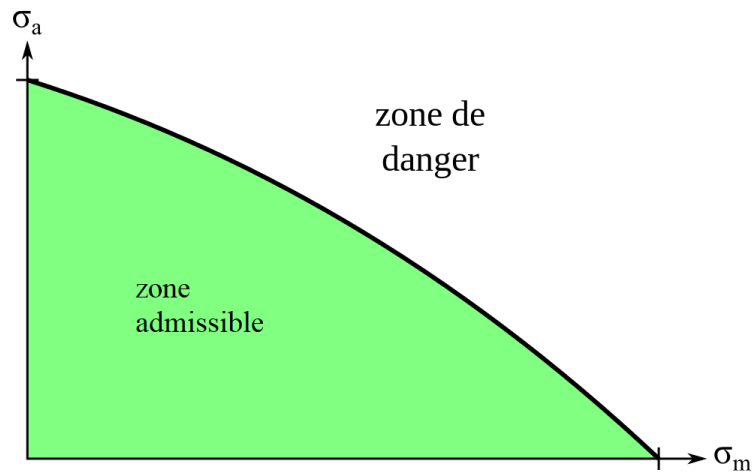
Ou en termes de contrainte :

$$R_\sigma = \frac{\sigma_{mini}}{\sigma_{maxi}} = \frac{\sigma_{moy} - \sigma_a}{\sigma_{moy} + \sigma_a} \quad (I.8)$$

où l'indice *mini* signifie minimal, *maxi* signifie maximal, *moy* signifie moyen et *a* signifie amplitude.

Ces notions permettent d'introduire le diagramme de Haigh (Fig.I.18) qui représente l'admissibilité d'un chargement pour un matériau donné en fonction de la contrainte moyenne et de l'amplitude. Contrairement à la courbe de Wöhler, le diagramme de Haigh ne permet pas de déterminer la durée de vie pour un chargement donné. Il est davantage utilisé pour un dimensionnement grossier de structure que pour l'étude fine du comportement en fatigue.





*Fig.I.18 : Diagramme de Haigh type*

Dans le cas des élastomères, (Le Cam, Huneau, et Verron 2013) a introduit un pseudo-diagramme de Haigh montrant l'orientation et la position des macrofissures en fonction du rapport de charge imposé au matériau (Fig.I.19). Pour un chargement en traction-compression ( $R < 0$ ), les fissures ont tendance à se déclarer au milieu de l'éprouvette et dans les directions transversales. Il en va de même pour les chargements en traction relaxants ( $R = 0$ ). Pour les essais de traction-traction ( $0 < R < 1$ ), la macrofissure apparaissent là où un défaut était déjà présent dans le matériau et bifurque dans des directions aléatoires en raison de la coalescence des microfissures.

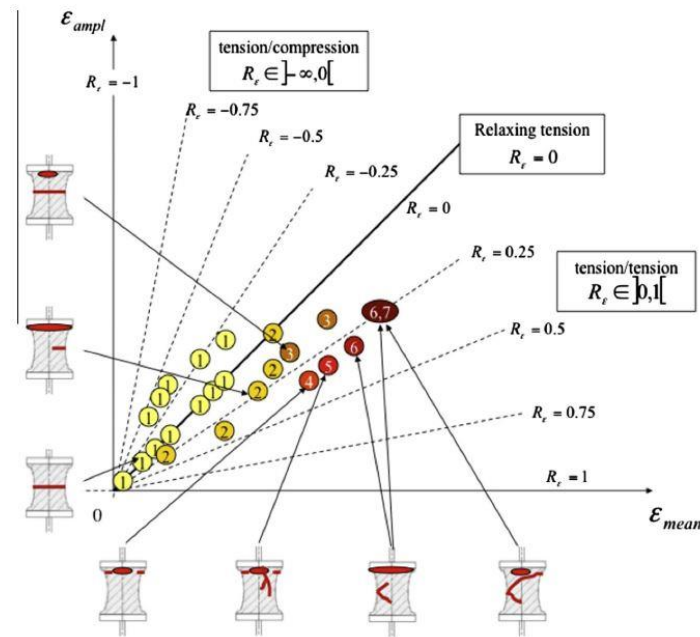


Fig.I.19 : Pseudo-diagramme de Haigh et cartographie de l'endommagement en fatigue (Le Cam et al., 2013)

### I.2.8 Auto-échauffement

Les frottements, qu'ils se produisent entre solides ou au sein même d'un matériau visqueux, sont par essence dissipatifs et il est admis que cette dissipation se fait sous forme de chaleur. Ce faisant, lors de sollicitations répétées, les élastomères génèrent beaucoup de chaleur du fait de leur propriété visqueuse (paragraphe 1.2.3). Ayant une conductivité thermique relativement faible, ils ont dû mal à évacuer cette chaleur et ont tendance à chauffer. On parle d'auto-échauffement. Les élévations de températures peuvent atteindre plusieurs dizaines de degrés pour les pièces les plus épaisses. Comme nous l'avons vu dans le paragraphe 1.2.5, la température a une forte influence sur les propriétés d'un élastomère. De plus, dans le paragraphe 1.2.6, il est mentionné que la température a aussi un impact sur la microstructure d'un élastomère réticulé par l'intermédiaire du vieillissement thermique. Finalement, la cristallisation sous-tension est inhibée par la température. L'étude de l'auto-échauffement s'avère alors essentiel pour la compréhension des mécanismes de dégradation des propriétés mécaniques lors de chargements cycliques.

Une manière de se représenter l'auto-échauffement est le considérer comme la compétition de deux phénomènes menant le matériau à un état stable correspondant à l'équilibre des deux

effets. Le premier est la génération de chaleur par viscosité et le second est l'évacuation de la chaleur par transfert thermique vers le milieu extérieur. L'état stable est atteint quand la quantité de chaleur générée est égale à la quantité de chaleur évacuée. A ce moment-là, la température n'évolue plus et la courbe d'auto-échauffement opposant la Température au Temps forme un plateau (Fig.I.20). Notons que, par effet Gough-Joule (paragraphe 1.2.5), cette courbe présente de légères variations sinusoïdales qui sont en général négligées dans l'étude de ce phénomène.

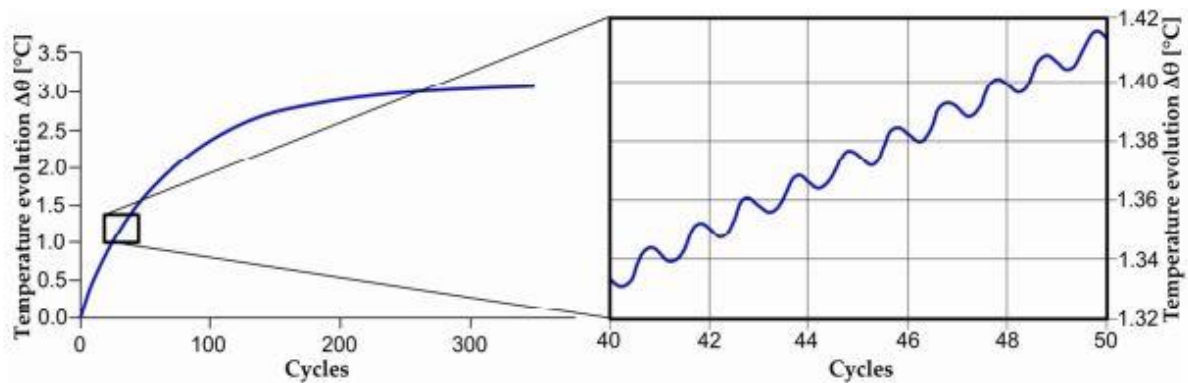


Fig.I.20 : Allure d'une courbe d'auto-échauffement (Ovalle Rodas 2014)

### I.2.9 Cristallisation sous-tension

La cristallisation sous-tension, notée CST (ou *SIC* : *Strain-Induced Crystallization* en anglais), est un phénomène naturel qui survient lorsqu'un polymère subit d'importantes déformations. Localement, ses chaînes sont suffisamment ordonnées pour que des liaisons fortes dites « coopératives » se développent et forment un réseau cristallin raidissant de fait le matériau (Fig.I.21). Précisons que tous les élastomères ne sont pas cristallisables. A titre d'exemple, le NR et le CR le sont alors que le SBR (Styrène Butadiène Rubber) ne l'est pas. Il est fréquent d'entendre le terme cristallisation sous-contrainte (*Stress-induced Crystallization* en anglais) Cette formule est incorrecte dans le sens où la cristallisation intervient lorsque le matériau arrive à un certain niveau de déformation et non de contrainte. Dans le cas du caoutchouc naturel et à température ambiante, l'élongation seuil d'apparition des cristallites est  $\lambda_c \cong 4$  (Guo et Zaïri 2020)

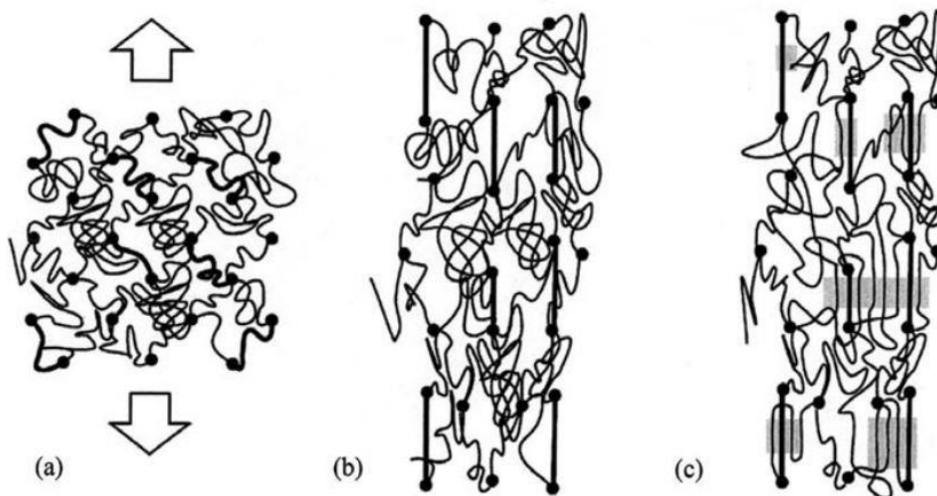


Fig.I.21 : Schéma de la CST (a) matériau au repos, (b) matériau sous tension avant l'élongation seuil, (c) matériau sous tensions après l'élongation seuil (Masatoshi Tosaka, 2007)

A la décharge, les cristallites ne disparaissent pas de la même manière qu'elles sont apparues. On parle alors d'élongation seuil de fusion qui est  $\lambda_f \cong 2.5$  pour le NR à température ambiante (Guo et Zaïri 2020). Cette cinétique différente à la charge et la décharge est responsable d'une boucle d'hystérésis sur la courbe contrainte-déformation quand bien même aucune dissipation visqueuse ne se produit (Samaca Martinez et al. 2013) (Fig.I.22).

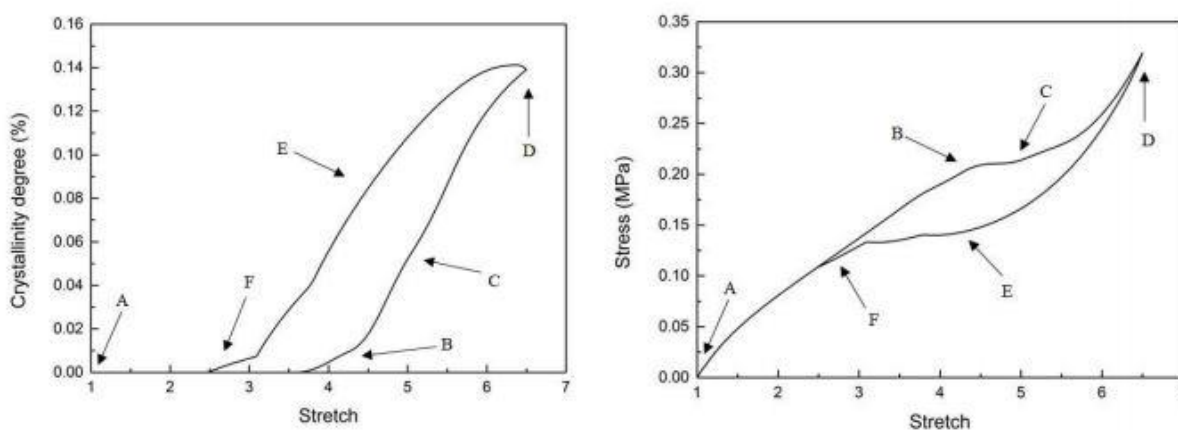


Fig.I.22 : Hystérésis de cristallisation lors d'un cycle charge-décharge. Gauche : Cristallinité vs. Élongation, Droite : Contrainte vs. Élongation (Guo et Zaïri 2020)

La CST dépend de beaucoup de paramètres tels que la température, la densité de réticulation et l'endommagement.

□ Influence de la température sur la cristallisation sous-tension

Lorsque la température augmente depuis la température ambiante, l'étirement seuil d'apparition des premières cristallites augmente alors que la taille des cristallites qui apparaissent en premier diminue (Fig.I.23). Lorsque la température diminue depuis la température ambiante, le phénomène inverse est observable. Il est possible de faire cristalliser certains polymères sans aucune action mécanique, en maintenant le matériau à une température inférieure à l'ambiante mais supérieure à sa température de transition vitreuse  $T_g$  pendant un certain temps. On parle alors de cristallisation thermique. Dans le cas du caoutchouc naturel réticulé, le pic de cristallisation se situe aux alentours de  $-25^{\circ}\text{C}$  (Wood et Bekkedahl 1946) ( $T_g = -73^{\circ}\text{C}$ ). Il est possible de comprendre ce phénomène par des considérations thermodynamiques. Une condition nécessaire à l'apparition de cristallites est l'organisation des chaînes. Or l'entropie mesurant le désordre d'un système est une fonction croissante de la température. Ainsi une élévation de température entravera la CST. Une élongation supérieure est nécessaire pour ordonner convenablement les chaînes. A l'inverse, une baisse de température diminue d'avantage l'entropie et favorise l'organisation des chaînes.

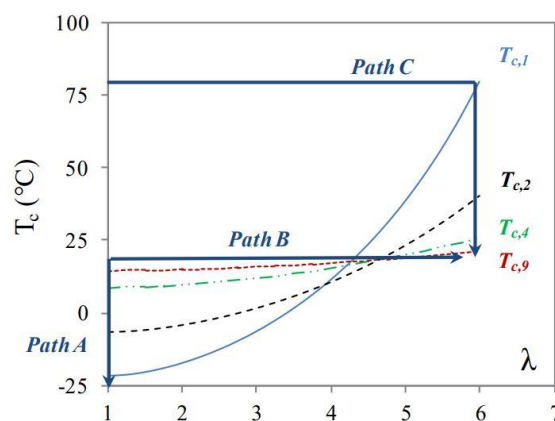


Fig.I.23 : Élongation seuil vs. Température pour différentes tailles de cristallites ( $T_{c,1} > \dots > T_{c,9}$ ) (Candau et al. 2015)

(Guo et Zaïri 2020) a montré qu'en omettant les diverses tailles de cristallites, il est possible de modéliser les élongations seuils de cristallisation et de fusion par des équations affines qui ont la propriété remarquable d'être parallèles. (Fig.I.24)

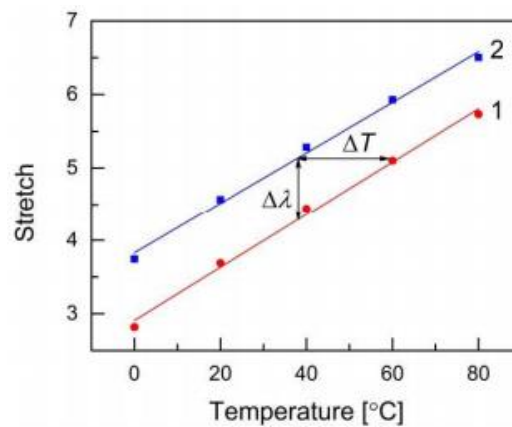


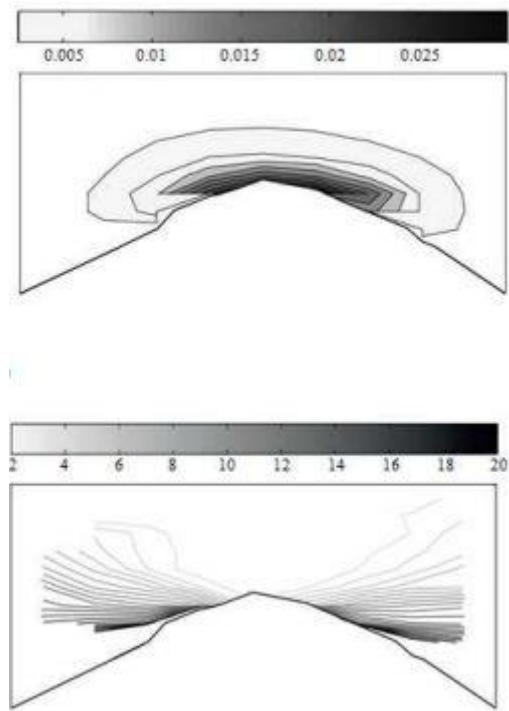
Fig.I.24 : Élongation seuil de cristallisation (2) et de fusion (1) en fonction de la température. (Guo 2019)

#### □ Influence de la densité de réticulation sur la cristallisation sous-tension

Les nœuds de réticulation limitant la mobilité relative des macromolécules facilitent la mise en tension des chaînes et par conséquent leur alignement avec la direction de chargement. Dès lors, la cristallisation se produirait surtout là où les segments sont les plus courts (Tosaka et al. 2004). De fait, la densité de réticulation impact aussi la taille des cristallites. Une densité plus faible conduit à des tailles de cristallites plus grandes et réciproquement. (Trabelsi, Albouy, et Rault 2003)

#### □ Influence de l'endommagement sur la cristallisation sous-tension

Les microfissures amplifient localement la déformation à l'instar d'un trou percé dans plaque métallique. Ainsi, même si la déformation globale du matériau ne permettrait pas la formation de cristallites, il est fréquent d'en observer au voisinage des fissures (Fig.I.25) raidissant significativement le front de fissure et limitant ainsi sa propagation. Les polymères cristallisables ont donc une tenue en fatigue bien supérieure à celle des polymères non-cristallisables.



*Fig.I.25 : Distribution (en haut) et orientation (en bas) des cristallites au voisinage d'une fissure (Rublon et al. 2014)*

### I.3 Bibliographie : État de l'art de la modélisation du comportement thermomécanique cyclique des élastomères

#### I.3.1 Rappel de mécanique des milieux continus

Soit un solide en mouvement passant d'une configuration initiale  $C_0$  à une configuration actuelle  $C_t$  (Fig.I.26). Ce mouvement est décrit par la fonction  $\vec{x} = \vec{x}(\vec{X}, t)$  donnant la position actuelle  $\vec{x}$  d'une particule  $M$  à l'instant  $t$  qui, avant déformation, occupait la position  $\vec{X}$ . A un instant  $t$  donné, cette fonction décrit la transformation du solide entre sa configuration de référence  $C_0$  et sa configuration actuelle  $C_t$ .

Ainsi, on peut définir le vecteur déplacement comme :

$$\vec{u}(\vec{X}, t) = \vec{x}(\vec{X}, t) - \vec{X} \quad (I.9)$$

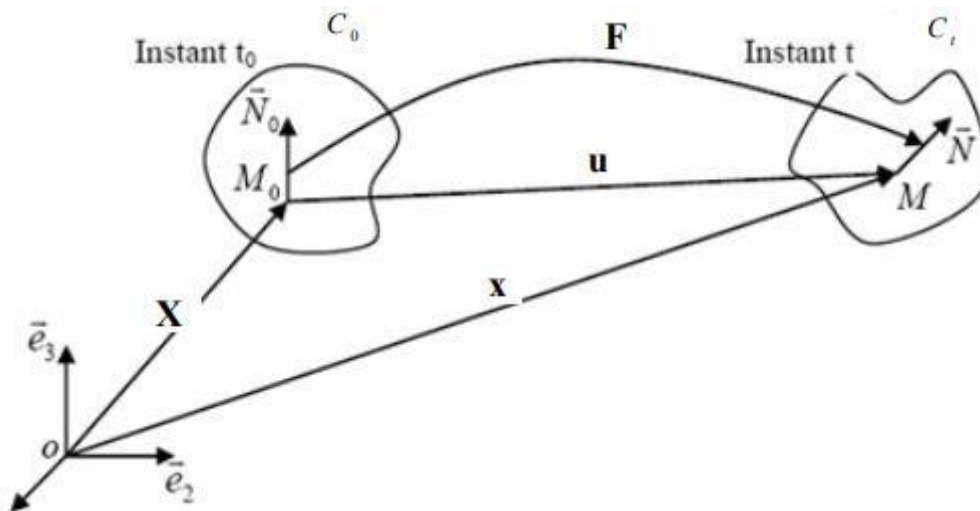


Fig.I.26 : Schéma des configurations initiale et actuelle

On définit le tenseur gradient de la transformation comme suit :

$$\mathbf{F} = \frac{\partial \vec{x}}{\partial \vec{X}} \quad (I.10)$$



Il est possible de décomposer  $\mathbf{F}$  en une composante de translation et une composante de rotation telles que :

$$\mathbf{F} = \mathbf{R}\mathbf{U} = \mathbf{V}\mathbf{R} \quad (I.11)$$

$\mathbf{R}$  est le tenseur orthogonal de rotation,  $\mathbf{U}$  le tenseur de translation gauche et  $\mathbf{V}$  le tenseur de translation droit.

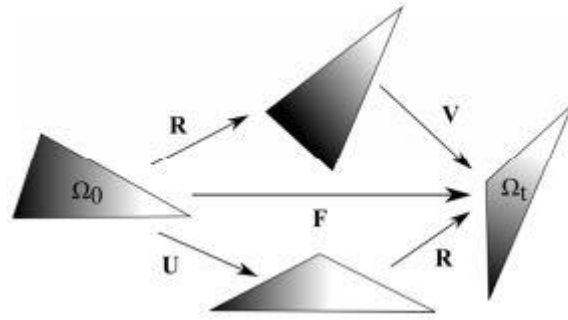


Fig.I.27 : Décomposition du tenseur gradient de transformation.

Le déterminant de  $\mathbf{F}$ , noté  $J$  (pour Jacobien), représente la variation de volume et est toujours positif en vertu du principe de non-interpénétration de la matière :

$$J = \det(\mathbf{F}) \quad (I.12)$$

On définit ensuite les tenseurs de dilations.  $\mathbf{C}$  est le tenseur de Cauchy-Green droit. Il décrit les variations de longueur et d'angle du système en prenant la configuration initiale comme référence. On parle donc de tenseur « lagrangien ». Il est défini comme :

$$\mathbf{C} = \mathbf{F}^t \mathbf{F} \quad (I.13)$$

$\mathbf{B}$ , le tenseur de Cauchy-Green gauche, autrement appelé le tenseur de Boussinesq, décrit les variations de longueur et d'angle du système vis-à-vis de la configuration actuelle. Il est donc « eulérien » et est défini comme :

$$\mathbf{B} = \mathbf{F}\mathbf{F}^t \quad (I.14)$$

$\mathbf{C}$  et  $\mathbf{B}$  possèdent les mêmes invariants, classiquement notés  $I_1$ ,  $I_2$  et  $I_3$  données par les expressions suivantes :

$$I_1 = \text{tr}(\mathbf{C}) = \lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 \quad (I.15.1)$$

$$I_2 = \frac{1}{2} [\text{tr}(\mathbf{C})^2 - \text{tr}(\mathbf{C}^2)] = \lambda_1^2 \lambda_2^2 + \lambda_2^2 \lambda_3^2 + \lambda_3^2 \lambda_1^2 \quad (I.15.2)$$

$$I_3 = \det(\mathbf{C}) = \lambda_1^2 \lambda_2^2 \lambda_3^2 \quad (I.15.3)$$

Où  $\lambda_i$  est l'élongation dans la direction  $i$

Ces deux tenseurs permettent de définir les tenseurs de déformation de Green-Lagrange  $\mathbf{E}$  et de Euler-Almansi  $\mathbf{A}$  comme suit :

$$\mathbf{E} = \frac{1}{2}(\mathbf{C} - \mathbf{I}) \quad (I.16.1)$$

$$\mathbf{A} = \frac{1}{2}(\mathbf{I} - \mathbf{B}^{-1}) \quad (I.16.2)$$

Où  $\mathbf{I}$  est le tenseur identité d'ordre 3.

Ces deux tenseurs de déformation sont symétriques et définis-positifs. Ils possèdent donc chacun 6 composantes indépendantes mais peuvent être diagonalisés et présenter 3 valeurs propres :

$$\mathbf{E} = \begin{pmatrix} E_I & 0 & 0 \\ 0 & E_{II} & 0 \\ 0 & 0 & E_{III} \end{pmatrix} \quad (I.17.1)$$

$$\mathbf{A} = \begin{pmatrix} A_I & 0 & 0 \\ 0 & A_{II} & 0 \\ 0 & 0 & A_{III} \end{pmatrix} \quad (I.17.2)$$

Notons que ces deux tenseurs de déformation ne sont ni égaux ni indépendants. Ils sont reliés par les relations suivantes :

$$\mathbf{E} = \mathbf{F}^t \mathbf{A} \mathbf{F} \Leftrightarrow \mathbf{A} = \mathbf{F}^{-t} \mathbf{E} \mathbf{F}^{-1} \quad (I.18)$$

Finalement, il est aussi possible de définir le tenseur gradient de vitesse de déformation  $\mathbf{L}$  tel que :

$$\mathbf{L} = \dot{\mathbf{F}} \mathbf{F}^{-1} = \mathbf{D} + \mathbf{W} \quad (I.19)$$

$\mathbf{D}$  est le tenseur taux de déformation est la partie symétrique de  $\mathbf{L}$  alors que  $\mathbf{W}$  est le tenseur taux de rotation est la partie antisymétrique de  $\mathbf{L}$ . Précisons que si la transformation est irrotationnelle,  $\mathbf{W}$  est nul.

### I.3.2 Hyperélasticité et modèles existants

Après avoir défini l'état de déformation du système, on peut déterminer son état de contrainte. On utilise une loi de comportement qui est une formule mathématique reliant, à chaque instant  $t$ , la contrainte à la déformation. Cette relation doit être objective, c'est-à-dire qu'elle ne dépend ni de la sollicitation ni du matériau. En élasticité linéaire, une formule explicite permet de déterminer le tenseur des contraintes en fonction du tenseur des déformations. Dans le cadre de l'hyperélasticité, on postule l'existence d'une densité d'énergie de déformation notée  $W$ . Physiquement, elle représente la quantité d'énergie élastique que le matériau emmagasine en fonction de l'étirement imposé. Les dérivées par rapport au tenseur de Cauchy-Green droit, au tenseur de Cauchy-Green gauche et au tenseur gradient de transformation donnent la moitié de la contrainte dans la configuration actuelle, dans la configuration initiale et dans la configuration mixte respectivement. Mathématiquement, on écrira :

$$\boldsymbol{\sigma} = 2 \frac{\partial W}{\partial \mathbf{B}} \quad (I. 20.1)$$

Dans la configuration actuelle avec  $\boldsymbol{\sigma}$  le tenseur des contraintes de Cauchy.

$$\mathbf{S} = 2 \frac{\partial W}{\partial \mathbf{C}} \quad (I. 20.2)$$

Dans la configuration initiale avec  $\mathbf{S}$  le second tenseur des contraintes de Piola-Kirchhoff (abrégé en PK2).

$$\boldsymbol{\pi} = 2 \frac{\partial W}{\partial \mathbf{F}} \quad (I. 20.3)$$

Dans la configuration mixte avec  $\boldsymbol{\pi}$  le premier tenseur de Piola-Kirchhoff (abrégé en PK1).

On passe d'un tenseur à l'autre à l'aide de la relation suivante :

$$J \boldsymbol{\sigma} = \boldsymbol{\pi} \mathbf{F}^t = \mathbf{F} \mathbf{S} \mathbf{F}^t \quad (I. 21)$$

Si le matériau est isotrope, il est possible de développer les lois de comportement grâce aux invariants des tenseurs de dilatation :

$$\boldsymbol{\sigma} = \frac{2}{J} \left[ \left( \frac{\partial W}{\partial I_1} + I_1 \frac{\partial W}{\partial I_2} \right) \mathbf{B} - 2 \frac{\partial W}{\partial I_2} \mathbf{B}^2 + \frac{\partial W}{\partial I_3} I_3 \mathbf{I} \right] \quad (I. 22.1)$$

$$\mathbf{S} = 2 \left( \left[ \frac{\partial W}{\partial I_1} + I_1 \frac{\partial W}{\partial I_2} \right] \mathbf{I} - \frac{\partial W}{\partial I_2} \mathbf{C} + \frac{\partial W}{\partial I_3} I_3 \mathbf{C}^{-1} \right) \quad (I.22.2)$$

$$\boldsymbol{\pi} = 2 \left( \left[ \frac{\partial W}{\partial I_1} + I_1 \frac{\partial W}{\partial I_2} \right] \mathbf{F} - \frac{\partial W}{\partial I_2} \mathbf{F} \mathbf{C} + \frac{\partial W}{\partial I_3} I_3 \mathbf{F}^{-t} \right) \quad (I.22.3)$$

Si, de plus, le matériau est incompressible ( $I_3 = 1$ ), il est possible de réécrire ces équations en introduisant le multiplicateur de Lagrange noté  $p$ , assimilable à la pression hydrostatique, tel que :

$$\boldsymbol{\sigma} = \frac{2}{J} \left[ \left( \frac{\partial W}{\partial I_1} + I_1 \frac{\partial W}{\partial I_2} \right) \mathbf{B} - 2 \frac{\partial W}{\partial I_2} \mathbf{B}^2 + p \mathbf{I} \right] \quad (I.23.1)$$

$$\mathbf{S} = 2 \left( \left[ \frac{\partial W}{\partial I_1} + I_1 \frac{\partial W}{\partial I_2} \right] \mathbf{I} - \frac{\partial W}{\partial I_2} \mathbf{C} + p \mathbf{C}^{-1} \right) \quad (I.23.2)$$

$$\boldsymbol{\pi} = 2 \left( \left[ \frac{\partial W}{\partial I_1} + I_1 \frac{\partial W}{\partial I_2} \right] \mathbf{F} - \frac{\partial W}{\partial I_2} \mathbf{F} \mathbf{C} + p \mathbf{F}^{-t} \right) \quad (I.23.3)$$

Il reste à choisir l'expression de la densité d'énergie de déformation pour la dériver et déterminer l'état de contrainte du matériau. Parmi les modèles existants, nous pouvons différencier les modèles phénoménologiques (macroscopiques) et les modèles statistiques (macromoléculaires).

#### □ Modèles phénoménologiques

Dans l'approche dite « phénoménologique », on cherche à décrire le comportement macroscopique d'un matériau sans nécessairement en comprendre les raisons physiques. (Mooney 1940) fut le premier à proposer explicitement un potentiel d'énergie de déformation à partir des invariants du tenseur des dilatations de Cauchy-Green. (Rivlin, 1948) en a donné une expression simplifiée donnant le modèle « néo-hookéen » puis une forme généralisée grâce à la décomposition en série de Taylor. Plusieurs autres auteurs ont apporté des modèles phénoménologiques de plus en plus complexes et précis ces dernières années. Le tableau (Tab.I.2) donne les expressions des plus couramment utilisés. Rappelons qu'il est nécessaire de soustraire 3 à chaque invariant afin d'assurer que la densité d'énergie de déformation soit nulle lorsque le matériau n'est pas sollicité, i.e. lorsque les invariants sont égaux à 3.

Néo-hookéen (Treloar 1943)	$W(I_1) = C_0(I_1 - 3)$
Mooney-Rivlin (Rivlin, 1948)	$W(I_1, I_2) = C_1(I_1 - 3) + C_2(I_2 - 3)$
Rivlin généralisé (Rivlin, 1948)	$W(I_1, I_2) = \sum_{i,j}^N C_{ij}(I_1 - 3)^i(I_2 - 3)^j$
(Gent 1996)	$W(I_1) = -\frac{C_0}{6}(I_m - 3)\ln\left(1 - \frac{I_1 - 3}{I_m - 3}\right)$
(Ogden 1972)	$W(\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3) = \sum_{i=1}^N \frac{\alpha_i}{\mu_i} (\lambda_1^{\alpha_i} + \lambda_2^{\alpha_i} + \lambda_3^{\alpha_i} - 3)$
(Yeoh 1993)	$W(I_1, I_2) = C_{10}(I_1 - 3) + C_{20}(I_2 - 3)^2 + C_{30}(I_1 - 3)^3$

Tab.I.2 : Densité d'énergie de déformation des quelques modèles phénoménologiques

#### □ Modèles statistiques

Dans l'approche statistique, il est question de reproduire de comportement mécanique macroscopique par des considérations microstructurales physiquement fondées. On distingue les modèles gaussiens et non-gaussiens. (Treloar 1943) fut le premier à proposer un modèle statistique pour décrire le comportement des polymères en utilisant une répartition gaussienne des chaînes c'est-à-dire que la longueur des chaînes est supposée suivre une loi normale. Il a considéré que l'entropie du réseau est la somme des entropies élémentaires des chaînes constitutives, que la longueur de chaque chaîne varie dans le même rapport que les dimensions du milieu macroscopique et que la déformation est isochore. En prenant en considération toutes ces hypothèses, une densité d'énergie de déformation a été définie en fonction des trois élongations principales :

$$W = \frac{nkT}{2} (\lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 - 3) \quad (I.24)$$

Où  $n$  est le nombre de chaînes par unité de volume ou densité de chaîne,  $k$  la constante de Boltzmann et  $T$  la température absolue.

On remarquera premièrement qu'en posant  $C = \frac{nkT}{2}$  et en remplaçant la somme des carrés des élongations principales par le premier invariant du tenseur des dilations, on retrouve le modèle néo-hookéen. Le modèle de Treloar s'avère précis pour les petites déformations. Cependant, la répartition gaussienne suppose que la chaîne moléculaire puisse atteindre une longueur infinie, ce qui est physiquement impossible. C'est la raison pour laquelle la théorie statistique à répartitions non-gaussienne a vu le jour. Cette théorie améliore les prédictions pour une large gamme de déformations. Le premier modèle non-gaussien a été introduit par (Kuhn et Grün 1942) décrivant l'élasticité d'une chaîne isolée composée de  $N$  monomères, tous de longueur  $l$ . La longueur initiale d'une chaîne  $r_0 = l\sqrt{N}$  est déterminée statistiquement, ainsi que sa longueur maximale  $r = lN$ . L'expression de la densité d'énergie d'une chaîne isolée est formulée comme suit :

$$W = nkT \left[ \frac{\lambda}{\sqrt{N}} \beta + \ln \left( \frac{\beta}{\sinh(\beta)} \right) \right] \quad (I.25)$$

Où  $\beta = \mathcal{L}^{-1} \left( \frac{\lambda}{\sqrt{N}} \right)$ ,  $\lambda = \frac{r}{r_0}$ , et  $\mathcal{L}^{-1}$  désigne l'inverse de la fonction de Langevin  $\mathcal{L}(x) = \coth(x) - \frac{1}{x}$ .

Il est possible d'utiliser l'approximation de Padé pour définir l'inverse de la fonction de Langevin (Cohen 1991) :  $\mathcal{L}^{-1}(u) = \frac{u(3-u^2)}{1-u^2}$

Par conséquent, on peut calculer la contrainte de Cauchy dans une chaîne isolée :

$$\sigma = \lambda \frac{\partial W}{\partial \lambda} = \lambda kT \sqrt{N} \mathcal{L}^{-1} \left( \frac{\lambda}{\sqrt{N}} \right) \quad (I.26)$$

En général, tous les modèles statistiques non-gaussiens sont fondés sur la théorie de (Jernigan et Flory 1969) qui propose une forme modifiée de la distribution de (Kuhn et Grün 1942) permettant de prendre en compte la notion de limite d'extensibilité des chaînes : Les modèles à  $p$  chaînes. Ces modèles statistiquement caractérisés considèrent la configuration moléculaire de chaînes orientées dans  $p$  directions privilégiées en supposant l'existence de  $n/p$  chaînes par unité de volume, orientées dans chacune de ces directions. La densité d'énergie de déformation sur un réseau de chaîne est calculée en additionnant les efforts des  $n/p$  chaînes dans chaque direction.

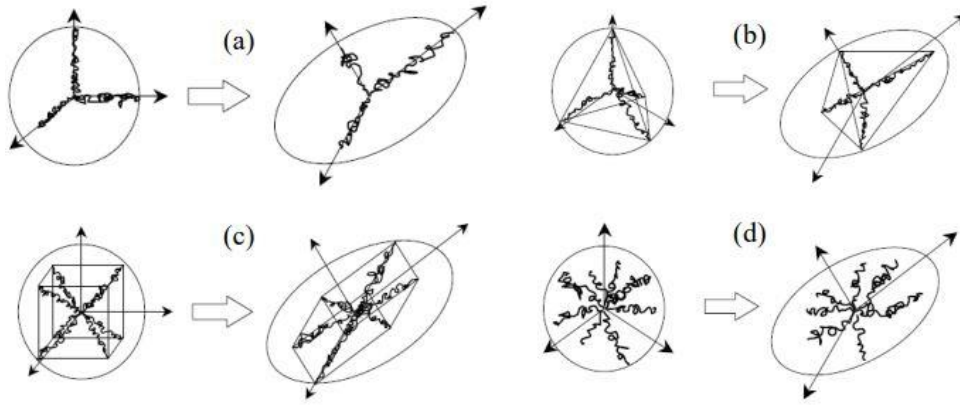


Fig.I.28 : Modèles non-gaussiens de la littérature : (a) 3 chaînes – (James et Guth 1943), (b) 4 chaînes – (Treloar 1943), (c) 8 chaînes – (Arruda et Boyce 1993), (d) réseau complet – (Wu et Giessen 1993)

Parmi ces modèles, on peut citer par exemple le modèle à trois chaînes de (James et Guth 1943) (Fig.I.28a):

$$W = \frac{nkT}{3} \sqrt{N} \sum_{i=1}^3 \left[ \lambda_i \beta_i + \sqrt{N} \ln \left( \frac{\beta_i}{\sinh(\beta_i)} \right) \right] \quad (I.27)$$

Où  $\beta_i = \mathcal{L}^{-1} \left( \frac{\lambda_i}{\sqrt{N}} \right)$

Menant à la contrainte de Cauchy suivante :

$$\sigma_i = \frac{nkT \lambda_i^2}{3\lambda} \sqrt{N} \mathcal{L}^{-1} \left( \frac{\lambda}{\sqrt{N}} \right) - p \quad (I.28)$$

Où  $p$  est la pression hydrostatique

(Treloar 1943) a proposé un modèle à 4 chaînes, construit d'une façon similaire. Le centre d'une sphère unitaire et les quatre sommets d'un tétraèdre inscrit dans cette dernière définissent les directions privilégiées (Fig.I.28b) La détermination de la relation contrainte-déformation n'est pas aisée et les résultats de ce modèle sont similaires à ceux du modèle à 3 chaînes. Ces deux arguments font que ce modèle n'est pas fréquemment utilisé.

Toujours en considérant la même approche, (Arruda et Boyce 1993) ont développé le modèle à 8 chaînes. Les demi-diagonales d'un cube définissent les 8 directions privilégiées. Du fait de la symétrie du modèle par rapport aux trois directions principales du tenseur de déformation, les 8 chaînes se déforment toutes de la même quantité  $\lambda$  :

$$W = \frac{nkT}{3} \sqrt{N} \left[ \beta_{ch} \lambda_{ch} + \sqrt{N} \ln \left( \frac{\beta_{ch}}{\sinh(\beta_{ch})} \right) \right] \quad (I.29)$$

$$\text{Où } \lambda_{ch} = \sqrt{\frac{I_1}{3}} = \sqrt{\frac{\lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2}{3}} \text{ et } \beta_{ch} = \mathcal{L}^{-1} \left( \frac{\lambda_{ch}}{\sqrt{N}} \right)$$

La contrainte de Cauchy s'écrit alors :

$$\sigma_i = \frac{nkT \lambda_i^2}{3\lambda} \sqrt{N} \mathcal{L}^{-1} \left( \frac{\lambda}{\sqrt{N}} \right) - p \quad (I.30)$$

Finalement, (Wu et Giessen 1993) ont développé le modèle d'un réseau complet qui est relativement plus rigoureux. Dans ce modèle les directions privilégiées des chaînes sont définies d'une façon aléatoire à partir du centre d'une sphère unitaire. Pour obtenir la réponse contrainte-déformation, une intégration numérique suivant toutes les directions de l'espace du domaine sphérique est nécessaire. Les contraintes principales de Cauchy se calculent comme suit :

$$\sigma_i = \frac{nkT \sqrt{N}}{4\pi} \int_0^\pi \int_0^{2\pi} \mathcal{L}^{-1} \left( \frac{\lambda}{\sqrt{N}} \right) \lambda^4 m_i^2 \sin(\theta) d\theta d\phi - p \quad (I.31)$$

Avec  $m_1 = \sin(\theta) \cos(\phi)$ ,  $m_2 = \sin(\theta) \sin(\phi)$ ,  $m_3 = \cos(\theta)$

Où  $\theta$  et  $\phi$  sont les deux angles d'orientation des chaînes dans une configuration déformée et  $\lambda$  la déformation de chaque chaîne telle que :

$$\lambda^{-2} = \sum_{i=1}^3 \frac{m_i^2}{\lambda_i^2} \quad (I.32)$$

La figure (Fig.I.29) compare quelques-uns des modèles cités. Il est clairement montré que les modèles Neo-hookéen et de Mooney-Rivlin sont précis pour les petites déformations mais que la répartition gaussienne des chaînes ne permet pas de reproduire le durcissement aux grandes déformations. Les modèles de Yeoh, de Gent et d'Arruda-Boyce, en revanche, reproduisent beaucoup mieux ce phénomène.



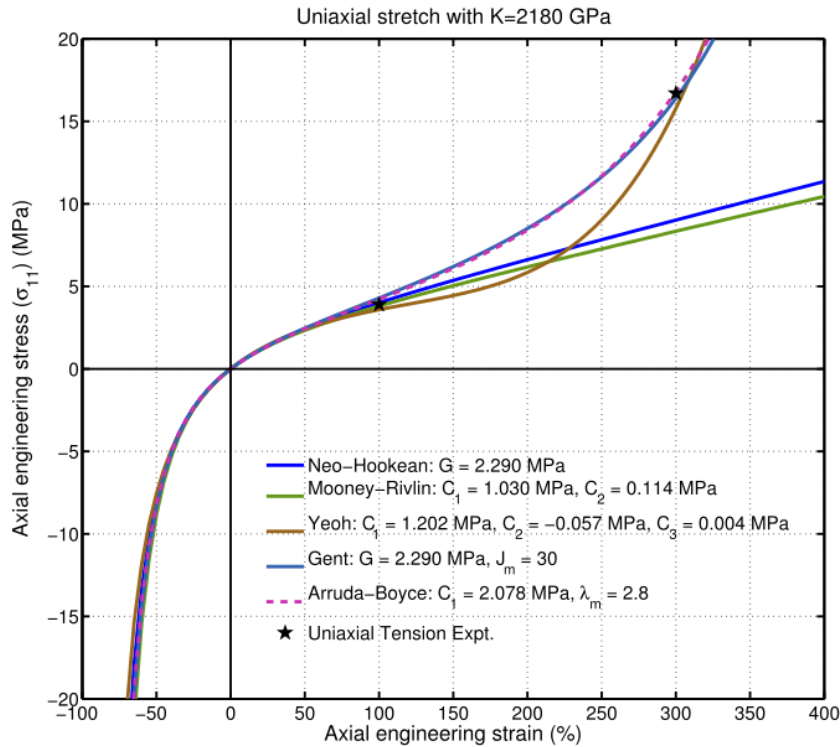


Figure I.29 : Comparaison des modèles hyperélastiques usuels

### I.3.3 Viscoélasticité et modèles existants

Dans ce paragraphe, la modélisation du comportement viscoélastique des polymères par modèle rhéologique est présentée, la rhéologie étant l'étude des écoulements (*rheo* « couler » et *logos* « étude » en grec). Ces modèles utilisent des éléments mécaniques qui décrivent chacun un comportement type du matériau.

- Le ressort (Fig.I.30a) décrit le comportement réversible, élastique ou hyperélastique. Mathématiquement, il sera modélisé soit par la loi de Hooke  $\sigma = E\varepsilon$ , où  $E$  est le module d'Young et  $\varepsilon$  la déformation, soit par une densité d'énergie de déformation.
- L'amortisseur linéaire (Fig.I.30b) ou non-linéaire (Fig.I.30c) décrivent le comportement visqueux. Pour tenir compte de la dépendance au temps, leur formulation mathématique intègre la vitesse de déformation comme, par exemples,  $\sigma = \eta\dot{\varepsilon}$  pour un amortisseur linéaire ou  $\sigma = \eta\dot{\varepsilon}^{\frac{1}{N}}$  pour un amortisseur non-linéaire ; avec  $\eta$  la viscosité,  $\dot{\varepsilon}$  la vitesse de déformation et  $N$  un exposant de non-linéarité.

- Finalement, le patin (Fig.I.30d) modélise le comportement plastique. Il définit une borne inférieure et une borne supérieure au-delà desquelles la contrainte sera constante. Nous n'entrerons pas plus dans les détails de cet élément rhéologique étant donné que la plasticité n'est pas le sujet de cette thèse.

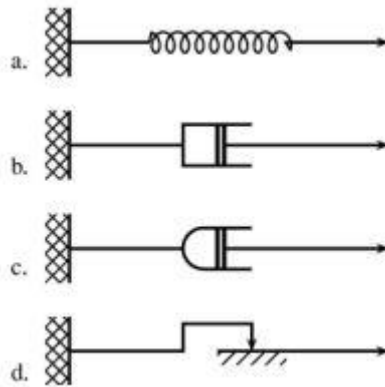


Fig.I.305: Briques élémentaires d'un modèle rhéologique  
 (a) ressort, (b) amortisseur linéaire, (c) amortisseur non-linéaire, (d) patin

L'assemblage en parallèle et/ou en série de ces briques élémentaires permet la formulation de modèle décrivant un ou plusieurs comportements :

□ Modèle de Maxwell

Le modèle de Maxwell est l'assemblage en série d'un ressort et d'un amortisseur. Il est le modèle le plus simple décrivant la relaxation des contraintes cependant il ne permet pas de décrire le fluage.

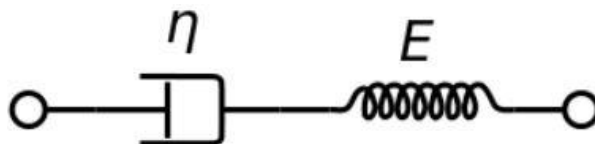


Fig.I.31 : Modèle rhéologique de Maxwell

□ Modèle de Kelvin-Voigt

Le modèle de Kelvin-Voigt (ou modèle de Voigt) est l'assemblage en parallèle d'un ressort et d'un amortisseur. A l'inverse du modèle de Maxwell, il décrit correctement le fluage mais pas la relaxation des contraintes.

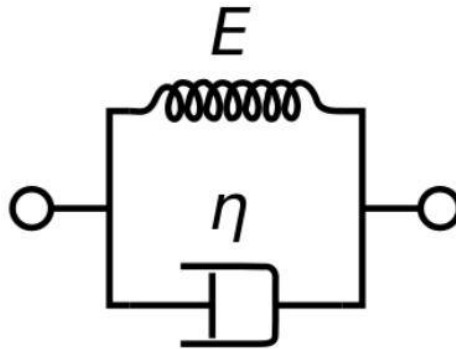


Fig.I.32 : Modèle rhéologique de Kelvin-Voigt

□ Modèle de Zener

Le modèle du Solide Linéaire Standard est composé de deux ressorts et d'un amortisseur. Il peut être représenté sous deux formes : la représentation de Zener (Fig.I.33a) ou de Poynting-Thomson (Fig.I.33b) qui sont parfaitement équivalentes. Il est le modèle le plus simple prédisant à la fois le fluage et la relaxation. Il est très souvent utilisé pour simuler le comportement des polymères en associant une loi hyperélastique au ressort  $E_1$  et  $E_2$  avec un amortisseur linéaire ou non.

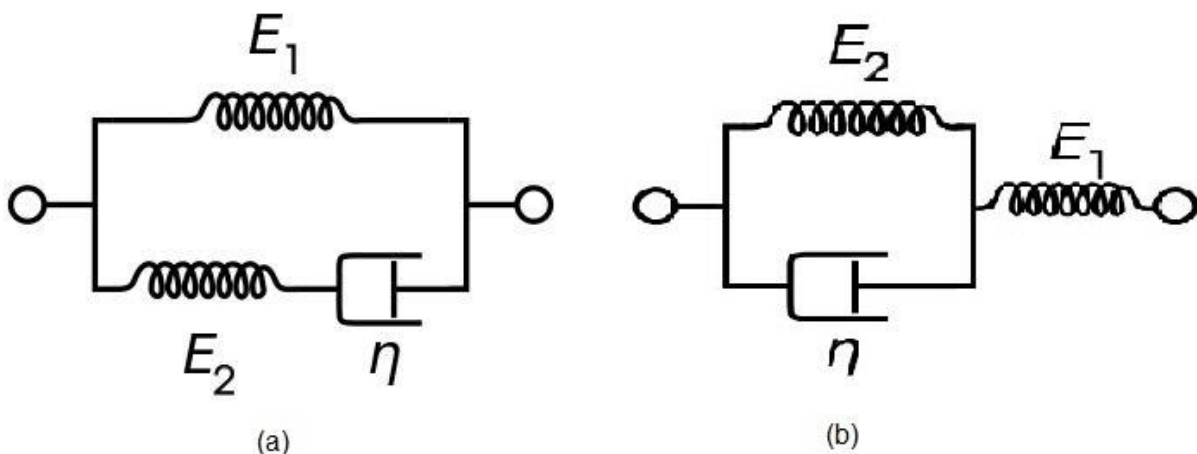


Fig.I.33 : Modèle rhéologique du Solide Linéaire Standard

Citons par exemple, le modèle de Bergström-Boyce (Bergström et Boyce 1998) qui utilise un modèle rhéologique de Zener (Fig.I.33a).

Puisqu'il s'agit d'un montage en parallèle, il faut distinguer la résistance purement hyperélastique du réseau de chaînes (Branche A composée du ressort  $E_1$ ) et la résistance visqueuse inter-chaînes (Branche B composée du ressort  $E_2$  et de l'amortisseur  $\eta$ ). Le gradient de déformation de chaque branche  $F_A$  et  $F_B$  est égal au gradient de déformation total  $F$  et la contrainte totale est la somme des contraintes ressenties par chaque branche :

$$F = F_A = F_B$$

$$\sigma = \sigma_A + \sigma_B$$

Le gradient de déformation du réseau B est décomposé en une composante d'équilibre  $F_B^e$  et une composante visqueuse  $F_B^v$ :

$$F_B = F_B^v F_B^e$$

Le gradient de déformation visqueuse  $F_B^v$  représente la configuration obtenue durant une décharge virtuelle spontanée du réseau B vers un état libre de contrainte.

La vitesse de déformation du réseau B s'écrit :

$$L_B = \dot{F}_B F_B^{-1}$$

En introduisant une partie élastique et une partie visqueuse au tenseur  $L_B$ , on obtient :

$$L_B = L_B^e + L_B^v = \dot{F}_B^e F_B^{e-1} + F_B^e \dot{F}_B^v F_B^{v-1} F_B^{e-1}$$

On rappelle que :

$$L_B^v = D_B^v + W_B^v$$

Où  $D_B^v$  la vitesse de déformation en translationnel et  $W_B^v$  est la vitesse de déformation rotationnelle.

Dans le modèle de Bergström-Boyce, la vitesse de déformation translationnelle est supposée prendre la forme suivante :

$$D_B^v = \dot{\gamma}_B N_B$$

Où  $N_B = \frac{1}{\sqrt{2\tau_B}} \sigma'_B$  est la partie déviatorique normalisée du tenseur des contraintes agissant sur le réseau B et  $\tau_B = \sqrt{\frac{1}{2} \text{trace}(\sigma'_B \sigma'_B)}$ .

Selon (Bergström et Boyce 2000) la vitesse d'écoulement visqueux  $\dot{\gamma}$  peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\dot{\gamma} = \dot{\gamma}_0 (\lambda_B^v - 1)^{c_2} (N_B)^{c_3} \quad (I.32)$$

Où  $\lambda_B^v = \sqrt{\frac{1}{3} \text{trace}(F_B^v F_B^{vT})}$  est l'élongation ressentie par la branche B.

Dans les logiciels de simulation par éléments finis, la vitesse d'écoulement visqueux est généralement écrite en fonction de la partie déviatorique du tenseur des contraintes  $\sigma'_B$ . Ainsi, l'expression (Eq.I.32) prend la forme :

$$\dot{\gamma} = c_1 (\lambda_B^v - 1)^{c_2} |\sigma'_B|^{c_3} \quad (I.32.1)$$

Où le nouveau paramètre  $c_1$  s'écrit :

$$c_1 = \frac{\dot{\gamma}_0}{(\sqrt{2}\tau_B)^{c_3}}$$

Par conséquent, le modèle de Bergström-Boyce nécessite l'identification de 3 paramètres ( $c_1, c_2$  et  $c_3$ ) pour modéliser l'amortisseur  $\eta$  du modèle de rhéologique de Zener (Fig.I.33a).

#### □ Modèle de Zener généralisé

Tous ces modèles sont bien souvent suffisants pour décrire le comportement de la plupart des matériaux viscoélastiques. Cependant, pour des comportements plus complexes (polymères pour des températures proches de la transition vitreuse, matériaux composites multi-échelles, biomatériaux, etc.), il est parfois nécessaire d'utiliser des formulations plus élaborées. Les 3 modèles précédents ont l'inconvénient de ne posséder qu'un nombre limité de ressort et d'amortisseur, ne permettant de modéliser qu'un seul temps caractéristique et qu'une seule

raideur. Pour palier ceci, des modèles dit « généralisés » ont vu le jour. Il s'agit d'assembler en parallèle  $n$  modèles de Maxwell ou de Kelvin-Voigt afin de modéliser autant de temps caractéristiques et de raideurs.

Le modèle de Zener généralisé en est un cas particulier. Un ressort monté en parallèle avec  $n$  modèles de Maxwell. La première branche assure une recouvrance totale, i.e., le comportement solide, tandis que les  $n$  autres branches introduisent  $n$  temps caractéristiques différents et autant de raideurs pour décrire toute la complexité du comportement visqueux.

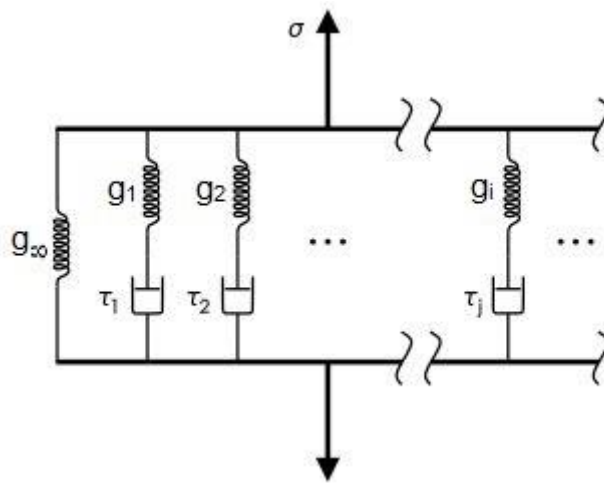


Fig.I.34 : Modèle rhéologique de Zener généralisé

Mathématiquement, ce modèle peut s'écrire :

$$\sigma(\lambda, t) = \sigma_0(\lambda)g(t) \quad (I.33)$$

$\sigma$  est la contrainte de Cauchy pour une elongation  $\lambda$  et un temps  $t$ .  $g$  représente la dépendance au temps et prend la forme d'une série de Prony, c'est-à-dire une somme de fonction exponentielle décroissante :

$$g(t) = g_\infty + \sum_{i=1}^N g_i \exp\left(-\frac{t}{\tau_i}\right) \quad (I.34)$$

Où  $\tau_i$  est le temps caractéristique de l'amortisseur  $i$ ,  $g_i$  la raideur du ressort  $i$ , et  $g_\infty$  le module d'élasticité du ressort seul tel que  $g(0) = g_\infty + \sum_{i=1}^N g_i = 1$ . Ainsi, à l'instant initial,  $\sigma(\lambda, 0) =$

$\sigma_0$ . On déduit donc que  $\sigma_0$  représente la réponse instantanée du matériau. D'autre part,  $\sigma(\lambda, t \rightarrow \infty) = \sigma_0(\lambda)g_\infty = \sigma_\infty$  représente la réponse du matériau relaxé, la réponse à l'équilibre.

### **I.3.4 Fatigue et outils de prédiction de durée de vie**

Dans ce chapitre, nous allons donner quelques exemples de la littérature concernant la modélisation de l'endommagement par fatigue ainsi que la prédiction de durée de vie.

La durée de vie d'un composant en élastomère se décompose en un temps de nucléation de fissures et un temps de propagation des fissures jusqu'à rupture du matériau. De fait, les études de fatigue se divisent en deux groupes, l'étude de la nucléation et l'étude de la propagation. D'autre part, à l'instar des modèles hyperélastiques pour lesquels on différencie 2 méthodologies (phénoménologique et statistique), on retrouve pour l'étude de la fatigue une dualité entre approche analytique et approche microstructurale. L'approche analytique se concentre sur l'aspect théorique de la fatigue en introduisant des notions tels que l'énergie de fissuration ou des potentiels thermodynamiques d'endommagement. L'approche microstructurale, quant à elle, détermine la dégradation des propriétés du matériau en décrivant des phénomènes intervenant à l'échelle microscopique tels que des réarrangements microstructuraux, des scissions de macromolécules, la destruction de ponts sulfures, etc. Cette méthode nécessite, en général, une observation de la microstructure avant, pendant et/ou après des essais de fatigue. Bien que lourde, cette procédure apporte des résultats remarquables.

#### □ Modèle par propagation de fissure

Dans ce type de formulation, la durée de vie est définie comme le nombre de cycle de chargement nécessaire à une fissure préexistante pour croître jusqu'à la rupture. Le taux d'énergie de déformation libéré  $T$  initialement introduit par Griffith (1920) pour un matériau fragile, et étendu par (Ronald S. Rivlin et Thomas 1953) à la rupture des caoutchoucs, est généralement utilisé comme paramètre pour décrire la propagation des fissures et construire des lois empiriques (comme celle développée par Paris pour les métaux). La quantité  $T$  est l'énergie de déchirement qui représente l'énergie mise en jeu pour accroître une fissure d'une longueur

donnée. Quelques géométries d'échantillons simples à mettre en œuvre ont été utilisées pour mesurer l'énergie de déchirement et en déduire des relations simples à calculer.

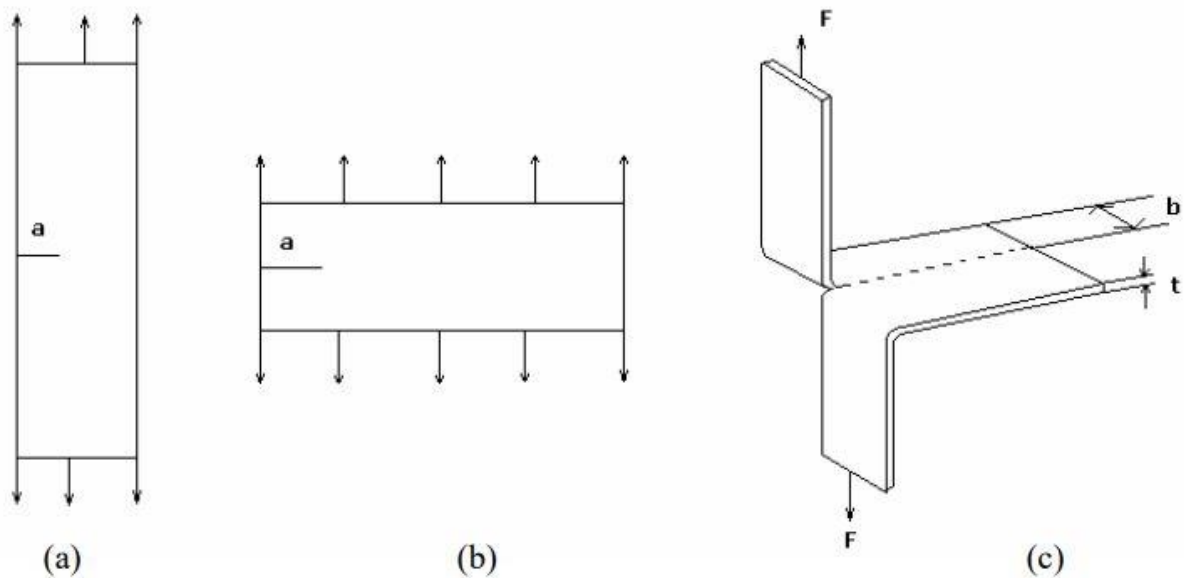


Fig.1.35 : Géométrie des éprouvettes pré-fissurées les plus utilisées : (a) éprouvette SENT, (b) éprouvette de cisaillement pur, (c) éprouvette pantalon

La valeur critique de l'énergie de déchirement est alors considérée comme une propriété intrinsèque du matériau indépendamment de la taille de la fissure et de la géométrie de l'échantillon.

Type d'éprouvettes	Expression de $T$	Expression de $T_c$
SENT	$T = 2k(\lambda)W_0a$	$T = 2k(\lambda_c)W_{0c}a$
Cisaillement pur	$T = W_0h$	$T = W_{0c}h$
Pantalon	$T = \frac{2F\lambda}{t} - W_0b$	$T = \frac{2F_c\lambda_c}{t} - W_{0c}b$

Le terme  $W_0$  représente la densité d'énergie de déformation calculée loin de la fissure et  $k$  un facteur de proportionnalité qui dépend de l'élongation  $\lambda$ .

L'approche par propagation de fissures a été ensuite étendue aux cas des chargements dynamiques par Thomas (1958) qui a trouvé que le maximum d'énergie de déchirement atteint



au cours d'un cycle de fatigue régit la vitesse de propagation des fissures. Pour les chargements cycliques, le processus de croissance d'un défaut peut être observé pour des valeurs de  $T$  très inférieur à  $T_c$ , tandis que pour des chargements monotones, la propagation a lieu lorsque le paramètre  $T$  est supérieur à  $T_c$ . Cette propagation se fait néanmoins de manière stable. C'est le phénomène de fissure par fatigue. La figure (Fig.I.36) montre l'évolution de la vitesse de propagation des fissures en fonction de l'énergie de déchirement  $T$  pour deux élastomères non chargés (le NR et le SBR) sous une sollicitation cyclique de traction uni-axiale à rapport de charge nul. Sur ce graphique, (Lake et Lindley 1965a; 1965b) ont mis en évidence quatre zones distinctes :

- $T < T_0$  : pas de propagation hormis par attaque chimique (ozone)

$$\frac{da}{dN} = r \quad (I.35)$$

- $T_0 < T < T_1$  : la vitesse est directement proportionnelle à  $T$

$$\frac{da}{dN} = A(T - T_0) + r \quad (I.36)$$

- $T_1 < T < T_c$  : la vitesse suit une loi de puissance

$$\frac{da}{dN} = BT^c \quad (I.37)$$

- $T > T_c$  : La rupture a lieu au premier cycle à cause d'une propagation instable. Les paramètres  $A$  et  $B$  ainsi que l'exposant  $C$  dépendent de la nature du matériau. Ainsi, la prévision de la propagation de la fissure, exprimée en fonction de  $T$ , est indépendante de la forme et des dimensions de l'éprouvette. La relation entre le taux de croissance de la fissure et l'énergie de déchirement est alors une propriété intrinsèque de l'élastomère.

$$\frac{da}{dN} = r \quad (I.38)$$

Si on considère qu'une fissure doit obligatoirement passer par ces étapes pour que le matériau rompe, il est possible de calculer le nombre de cycle pour faire progresser la fissure jusqu'à la taille critique  $a_f$  à partir du moment où l'on connaît la taille initiale de la fissure  $a_0$ , en intégrant l'expression de la zone 3 :

$$N_f = \int_{a_0}^{a_c} \frac{da}{B(2kW_0a)^c} = \frac{1}{C-1} \frac{1}{B(2kW_0)^c} \left[ \frac{1}{a_0^{C-1}} - \frac{1}{a_f^{C-1}} \right] \quad (I.39)$$

Pour un échantillon ne contenant pas de fissure artificielle, l'amorçage se produit à partir d'un défaut intrinsèque. Celui-ci étant petit devant la longueur finale de la fissure, la relation se simplifie comme suit :

$$N_f = \int_{a_0}^{a_c} \frac{da}{B(2kW_0a)^c} = \frac{1}{C-1} \frac{1}{B(2kW_0)^c} \frac{1}{a_0^{C-1}} \quad (I.40)$$

Si la longueur initiale des défauts dans les élastomères est considérée comme une propriété intrinsèque du matériau, l'équation précédente se réécrit :

$$N_f = DW_0^{-C} \quad (I.41)$$

Où  $D = \frac{1}{C-1} \frac{1}{B(2k)^c} \frac{1}{a_0^{C-1}}$  est une constante propre au matériau qui est à déterminer.

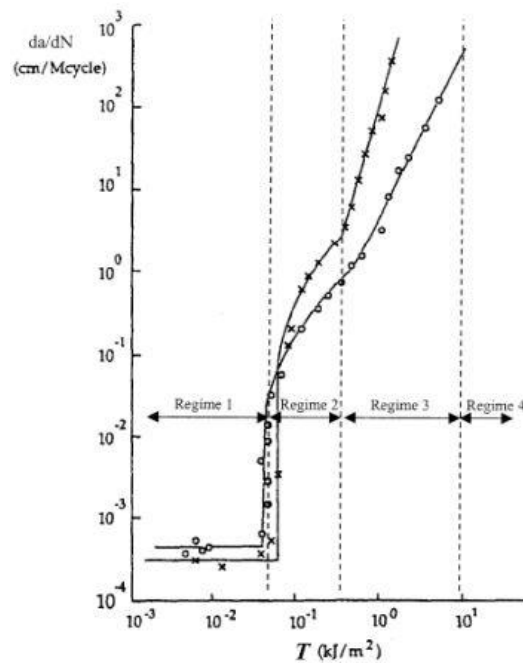


Fig.I.36 : Vitesse de propagation d'une fissure dans un élastomère en fonction de l'énergie de déchirement (Lake et Lindley 1965)

□ Modélisation du comportement mécanique lors d'essais de fatigue.

D'autre part, dans ses travaux de thèse, (Ayoub 2010) a proposé de modéliser l'endommagement par une augmentation exponentielle de la longueur des chaînes symbolisant

la destruction des ponts sulfures inter-chaînes et des enchevêtrements au sein de l'élastomère (Fig.I.37) Mathématiquement, cela prend la forme suivante :

$$N = \begin{cases} N_0 + \alpha(1 - \exp(-\beta D)) & \text{si } 0 > D > D_c \\ N_0 + \alpha(1 - \exp(-\beta D)) + \gamma \exp(\delta D) & \text{si } D_c > D > 1 \end{cases}$$

Où  $N$  est le nombre de monomères moyen par chaîne,  $N_0$  est le nombre moyen de monomère par chaîne à l'état initial,  $D$  est la variable d'endommagement variant de 0 à 1,  $D_c$  est la valeur critique d'endommagement et  $\alpha, \beta, \gamma, \delta$  sont des paramètres matériaux à déterminer. Nous verrons dans un prochain paragraphe comment sont définies  $D$  et  $D_c$

En posant  $n$  la densité de chaîne par unité de volume et  $N$  le nombre de monomère par chaîne, comme le nombre total de monomères à l'intérieur du matériau doit rester constant en vertu de la conservation de la masse (Boyce, 1986; Arruda *et al.*, 1995; Zaïri *et al.*, 2010), on peut écrire :

$$n_0 N_0 = nN = \text{constante} \quad (I.42)$$

Finalement, le module d'élasticité  $C_r = nk\theta = n_0 k\theta \frac{N_0}{N}$  décroît exponentiellement à partir d'une valeur critique  $D_c$  de la variable d'endommagement reproduisant l'adoucissement cyclique observé expérimentalement.

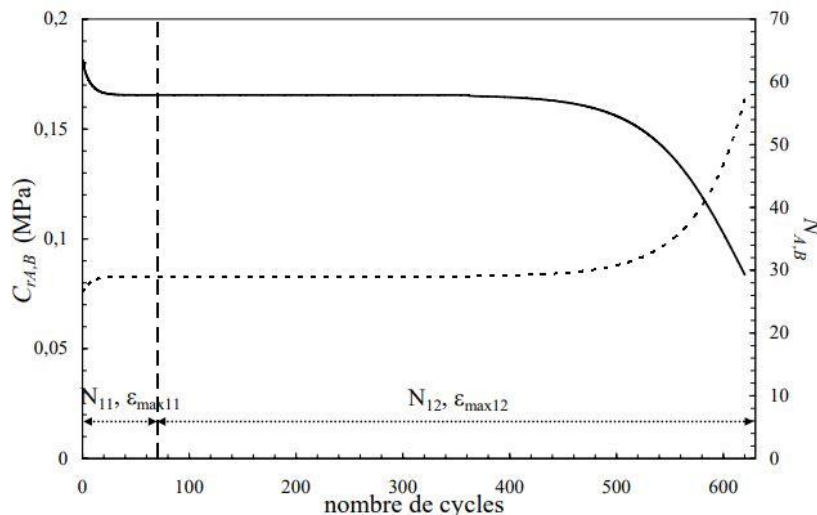


Fig.I.37 : Illustration du modèle en fatigue de (Ayoub 2010)

□ Prédiction de la durée de vie : Loi de cumul de dommage

Pour des amplitudes variables ou pour des chargements espacés dans le temps, il est nécessaire d'utiliser une loi de cumul de dommage. La loi de (Miner 1945) en est le plus simple exemple du fait de sa linéarité. Cette loi prédit la rupture lorsque la somme du nombre de cycles appliqués  $N_i$  divisé par le nombre de cycle à rupture  $N_{fi}$  (pour une amplitude donnée ou pour un chargement donné) est égale à 1 :

$$\sum_i \frac{N_i}{N_{fi}} = \frac{N_1}{N_{f1}} + \frac{N_2}{N_{f2}} + \dots = 1 \quad (I.43)$$

(Harbour, Fatemi, et Mars 2007) ont constaté que la loi de Miner prédisait correctement la durée de vie du NR mais n'est pas en mesure de le faire pour le SBR dans les mêmes conditions de chargement.

La linéarité de la loi de Miner est donc un avantage en raison de sa simplicité mais un inconvénient dans le sens où l'ordre dans lequel sont appliqués les chargements n'est pas pris en compte.

□ Théorie de l'endommagement continu

Une autre voie consiste à calculer le cumul de dommage cycle par cycle en utilisant le concept de la mécanique de l'endommagement continue associé à un paramètre prédictif de la fatigue. Cette théorie a été développée par (Rabotnov *et al.*, 1969) et (Kachanov, 1986) pour expliquer le processus de détérioration continue d'un matériau soumis à un essai de fluage. Le succès de cette modélisation pour le fluage a motivé son extension à l'endommagement par fatigue. L'hypothèse principale est que la section nette contribuant au transfert de charge dans le matériau diminue en raison de la nucléation de microfissures. L'introduction d'une variable interne dans le modèle de comportement, définissant l'évolution de l'endommagement au niveau local, permet de décrire le processus de dégradation des propriétés des matériaux. Le tenseur des contraintes effectives  $\tilde{\sigma}$  est lié au tenseur des contraintes de Cauchy  $\sigma$  en utilisant le concept de la contrainte effective introduite par (Lemaître et Chaboche 1990) :

$$\sigma = (1 - D)\tilde{\sigma} \quad (I.44)$$

Où  $D$  est un scalaire définissant l'endommagement isotrope.  $D$  est nul à l'état initial (matériau vierge) et égal à 1 lors de la rupture.

(Wang, Lu, et Kim 2002) ont prouvé l'efficacité de l'endommagement continu pour prédire la durée de vie des élastomères sous chargement cyclique uniaxial puis (Ayoub 2010) a étendu les travaux de (Wang, Lu, et Kim 2002) à des chargements multiaxiaux et non-relaxants. Dans son modèle, l'élastomère est supposé isotrope, homogène, incompressible et hyperélastique. La base de son raisonnement est l'hypothèse d'endommagement isotrope de (Lemaître et Chaboche 1990) qui permet d'écrire l'évolution de la variable d'endommagement comme suit :

$$\dot{D} = -\frac{\partial \varphi^*}{\partial y} \quad (I.45)$$

Où  $\varphi^*$  est le potentiel de dissipation, que l'on peut écrire sous la forme d'une loi de puissance pour conserver un caractère général ( $A$  et  $a$  étant des paramètres à déterminer) :

$$\varphi^* = -\frac{A}{a+1} \left(\frac{y}{A}\right)^{a+1} \quad (I.46)$$

et  $y$  est la force thermodynamique associée à l'endommagement :

$$-y = \frac{\partial W}{\partial D} = \frac{\partial W}{\partial \lambda_i} \frac{\partial \lambda_i}{\partial D} \quad (I.47)$$

Après quelques développements, G. Ayoub donne l'expression de la cinétique de la variable d'endommagement dans le cas d'un chargement à amplitude constante où  $S_{eq}$  est une quantité équivalente à une contrainte calculée à partir de la densité d'énergie de déformation (Fig.I.38):

$$\frac{\partial D}{\partial N} = \left(\frac{S_{eq}}{A(1-D)}\right)^a \quad (I.48)$$

L'intégration entre l'état vierge ( $D = 0 ; N = 0$ ) et la rupture ( $D = 1 ; N = N_f$ ) permet d'exprimer le nombre de cycle à rupture :

$$D = 1 - \left[1 - (1+a) \left(\frac{S_{eq}}{A}\right)^a N\right]^{\frac{1}{1+a}} \Leftrightarrow N_f = \frac{A^a}{1+a} S_{eq}^{-a} \quad (I.49)$$

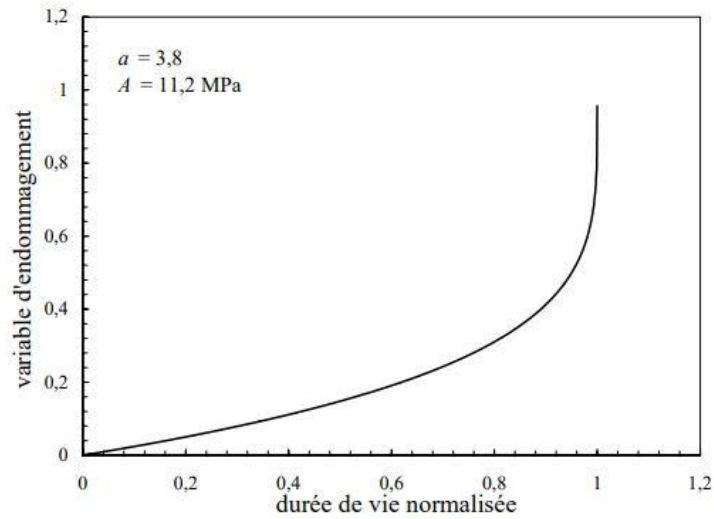


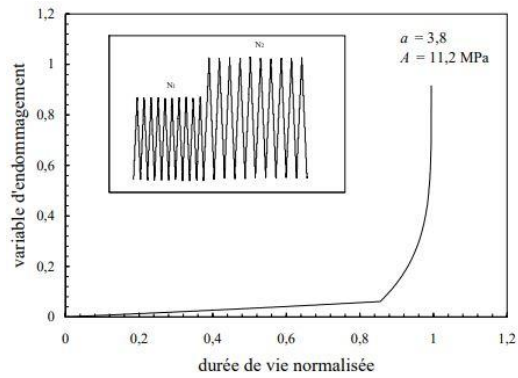
Fig.I.38 : Illustration du critère de durée de vie pour un chargement à amplitude constante (Ayoub 2010)

Pour des chargements à amplitudes variables « par blocs », la variable d'endommagement s'écrit, pour un bloc  $i$  donné, de la manière suivante :

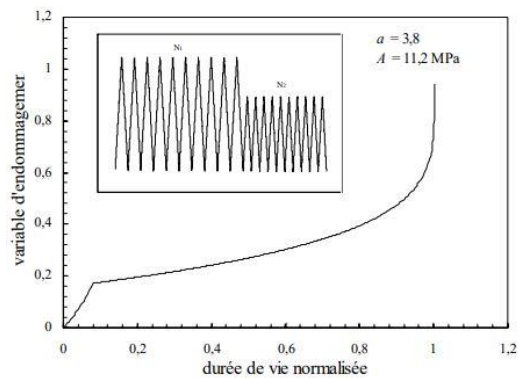
$$D_i = 1 - \left[ (1 - D_i)^{1+a} - (1 + a) \left( \frac{S_{eq}}{A} \right)^a N_i \right]^{\frac{1}{1+a}} \quad (I.50)$$

Le critère se calcule alors comme une somme d'intégrales représentant l'évolution de la variable d'endommagement pour chaque bloc

$$\int_0^1 (1 - D)^a dD = \sum_0^{n-1} \int_{N_i}^{N_{i+1}} \left( \frac{S_{eq,i+1}}{A} \right)^a dN \quad (I.51)$$



(a)



(b)

Fig.I.39 Illustration du critère de durée de vie (a) Chargement bas-haut, (b) chargement haut-bas. (Ayoub 2010)

La durée de vie normalisée en abscisse permet d'apprécier l'influence de l'ordre d'application des chargements indépendamment de l'influence sur la durée de vie elle-même. Les évolutions différenciées observées sur les courbes (a) et (b), mettent bien en évidence l'effet sur l'évolution de l'endommagement.

Cependant, ce critère n'arrive pas à unifier les données expérimentales de fatigue en traction et en torsion. Pour palier ceci et prendre en compte le fait que toutes les composantes du tenseur des contraintes ne participent pas de manière identique aux mécanismes d'endommagement, l'expression de la force thermodynamique est modifiée pour prendre en compte uniquement la composante principale d'élongation. Ainsi, l'auteur définit la force thermodynamique réduite :

$$-y_{red} = \frac{\partial W}{\partial \lambda_1} \frac{\partial \lambda_1}{\partial D} \quad (I.52)$$

Notons que la contrainte équivalente s'en trouve aussi modifiée. Grâce à ces deux modifications, les données de traction et de torsion peuvent être unifiées et le critère de durée de vie a pu être validé.

Enfin, le modèle a été ensuite perfectionné en introduisant deux paramètres :

- La limite d'endurance, valeur de la contrainte en deçà de laquelle aucun n'endommagement ne se produit.
- La contrainte moyenne qui permet de prendre en compte les essais dits « non-relaxant » (paragraphe 1.2.7 *Fatigue*)

La formulation du modèle perfectionné est la même que le modèle basique à l'exception de la force thermodynamique qui prend la forme suivante :

$$-y = -y_{maxi} + y_{th} + f(R, y_{moy}) \quad (I.53)$$

Où  $y_{th}$  est la force thermodynamique seuil représentant limite d'endurance  $f(R, \lambda_{moy}) = cR^b y_{moy}$  est une fonction du rapport de charge R et de la force thermodynamique moyenne

$y_{moy} = \frac{y_{maxi} + y_{mini}}{2}$  est la force thermodynamique moyenne

$y_{maxi/mini}$  est la force thermodynamique calculée avec  $\lambda_{maxi/mini}$

Le critère de durée de vie final s'écrit donc :

$$N_f = \frac{A^a}{1+a} (S_{eq,maxi} - S_{th} - cR^b S_{eq,moy})^{-a} (1 - cR^b)^{-1} \quad (I.54)$$

L'intérêt de ce critère de durée de vie réside dans la prise en compte de (1) des amplitudes variables, (2) de la multi-axialité, (3) de la limite d'endurance et (4) de la contrainte moyenne. Aussi, rappelons que ce critère en plus d'être prédictif est une loi non-linéaire de cumul de dommage grâce à sa formulation basée sur l'endommagement continu. Il nécessite l'identification de 5 paramètres mais un seul type d'essai est nécessaire. A et a sont déterminés par régression linéaire sur des essais de fatigue en traction,  $S_{th}$  est estimé expérimentalement sous les mêmes conditions de chargement et b et c sont identifiés par ajustement sur les résultats



de ces mêmes essais. Ce critère est donc relativement simple à mettre en œuvre et possède un pouvoir prédictif élevé comme nous le montre la figure (Fig.I.40).

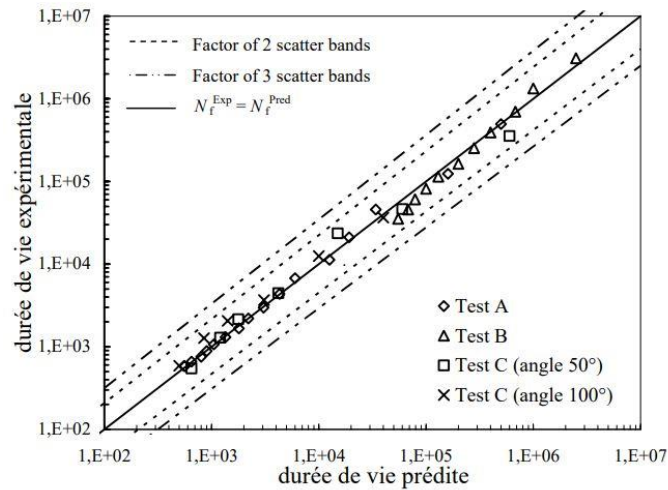


Fig.I.40 : Durée de vie expérimentale vs. Durée de vie prédite. (Test A) Traction relaxante, (Test B) Torsion relaxante, (Test C) Traction-torsion (50°), (Test D) Traction-torsion (100°) (Ayoub 2010)

## I.4 Conclusion de l'étude bibliographique

L'étude de la littérature concernant le comportement thermomécanique cyclique des élastomères ainsi que sa modélisation a permis de poser les bases des travaux de recherches présentés dans la suite de ce manuscrit.

D'une part, les études expérimentales existantes ont permis de comprendre la complexité du comportement des élastomères. La réponse mécanique de ces matériaux dépend de multiples facteurs tels que la nature du chargement, le trajet de chargement, la température, la vitesse de sollicitation et l'environnement d'utilisation pouvant impacter la microstructure. Parce que ces matériaux sont couramment utilisés dans des applications industrielles impliquant des chargements thermomécaniques complexes, des modèles permettant la prédiction de leur comportement ont été développés par de nombreux auteurs ces dernières décennies. Sans être exhaustif, un rappel de quelques-uns de ces modèles a été fait révélant la nécessité d'utiliser des outils mathématiques suffisamment sophistiqués pour décrire la complexité du comportement de ces matériaux qui réservent encore des secrets.

Malgré les nombreuses études évoquées, le manque d'outil prédictif prenant en compte les effets de la température et du vieillissement thermo-oxydant sur le comportement en fatigue se fait ressentir. De plus, les critères de durée de vie existants sont rarement liés à des considérations microstructurales impactant, de fait, leur pouvoir prédictif. Pour pallier ce manque, ce manuscrit propose plusieurs modèles permettant, d'une part, la prédiction de durée de vie des élastomères sous chargement multiaxial en prenant en compte du vieillissement thermo-oxydant et, d'autre part, la prédiction de l'auto-échauffement des élastomères sous sollicitation multiaxiale. Un modèle global est finalement développé en réunissant les deux modèles précédemment cités. Dans chaque chapitre, une revue de la littérature spécifique au sujet est proposée afin de compléter l'étude bibliographique précédente.

## II. Prédiction de la durée de vie d'élastomères sous chargement multiaxial et prise en compte du rapport de charge

### II.1 Introduction

Dans certaines conditions de fonctionnement, les composants en élastomères peuvent être soumis à des sollicitations mécaniques cycliques et multiaxiales. Ce chargement de fatigue induit des dommages mécaniques qui font chuter leurs propriétés mécaniques après un certain nombre de cycles du fait de la nucléation des fissures dans un premier temps et de la propagation des fissures dans un second temps. Au cours de la première étape, des microfissures se forment sous l'effet du chargement mécanique et coalescent jusqu'à l'apparition d'une macrofissure. Jusque-là, les propriétés du matériau sont très peu affectées à l'échelle macroscopique, même si à l'échelle microscopique, le matériau peut être dégradé. Au cours de la deuxième étape, la macrofissure se développe et se propage jusqu'à la rupture complète. Pour éviter la rupture brutale et assurer la fiabilité et l'intégrité des composants en caoutchouc lors de leur fonctionnement, ils doivent être conçus en tenant compte du chargement en fatigue. Par ailleurs, le processus de conception doit s'appuyer, d'une part, sur une connaissance précise des propriétés en fatigue du matériau considéré, et, d'autre part, sur des outils mathématiques capables d'aider le concepteur dans le dimensionnement de ces pièces. Disposer d'un critère robuste pour estimer la durée de vie des composants en caoutchouc soumis à la fatigue multiaxiale est donc un enjeu clé. Ce sujet est devenu un axe de recherche important ces dernières décennies et, pour répondre à cette problématique, plusieurs critères ont été proposés dans la littérature. Sans être exhaustifs, les principaux critères pertinents qui ont retenu notre attention sont rappelés ci-dessous :

- *Élongation principale maximale  $\lambda_1$*

Ce critère de durée de vie a été mis en évidence dans les travaux pionniers de (Cadwell et al. 1940) qui a étudié l'effet de l'amplitude de déplacement à un déplacement minimum fixe et l'effet du déplacement minimum à une amplitude de déplacement fixe, pour des essais pilotés en déplacement sur des échantillons cylindriques. Cette étude a mis en évidence l'effet du chargement moyen et a montré que l'allongement principal maximal n'est pas en mesure de

rendre compte d'un tel phénomène. Ainsi, ce critère a été abandonné. De plus, certains auteurs ont montré que l'allongement principal maximal n'est pas en mesure d'unifier les données de durée de vie en fatigue en cas de chargements multiaxiaux. (Ayoub *et al.*, 2014; Chung and Kim, 2016)

- *Contrainte principale maximale  $\sigma_1$*

La contrainte principale maximale a été principalement utilisée pour étudier l'impact du chargement moyen sur la durée de vie en fatigue lors de chargements non relaxants (Andre, Cailletaud and Piques, 1999; Saintier, 2001; Abraham *et al.*, 2005). Quant à la prédiction de la durée de vie en fatigue, la contrainte principale maximale est souvent préférée à l'élongation principale maximale car elle tient compte à la fois de l'effet Mullins et de l'adoucissement des contraintes qui se produit lors des chargements cycliques. La plupart des auteurs l'ont trouvée appropriée pour prédire la durée de vie en fatigue sous chargements multiaxiaux (*e.g.* Saintier, 2001; Raoult, 2010; Ayoub *et al.*, 2014).

- *Contrainte équivalente  $\sigma_{eq}$*

Certains auteurs ont introduit des grandeurs mécaniques dont la dimension est celle d'une contrainte mais dont l'interprétation physique est légèrement différente. On les appelle contraintes équivalentes et elles sont censées rendre compte des chargements multiaxiaux complexes (Saintier, 2001; Bennani, 2006; Ayoub *et al.*, 2014; Chung and Kim, 2016). Par exemple, (Ayoub *et al.*, 2014) a développé une contrainte équivalente qui correspond à la fraction de la contrainte totale qui est effectivement active dans le processus d'endommagement. Cette contrainte équivalente est développée parallèlement à la théorie de l'endommagement continu qui est détaillée plus loin (Eq.II.3).

- *Densité d'énergie de déformation  $W$*

La densité d'énergie de déformation (SED : abréviation anglaise pour *Strain Energy Density*) apparaît à première vue comme un indicateur prometteur de la durée de vie en fatigue car elle tient compte de la multiaxialité et peut être liée à la quantité d'énergie que le matériau peut endurer avant sa rupture. Ainsi cet indicateur a été utilisé avec succès pour prédire la durée de vie d'un caoutchouc naturel (NR) chargé (Lu, 1991) ainsi que d'un Éthylène-Propylène-diène monomère (EPDM) et d'un Styène-Butadiène (SBR) également chargés (Abraham *et al.*, 2005) sous chargements uniaxiaux relaxants et non-relaxants. Cependant, elle pêche par son

incapacité à unifier les données de durée de vie en fatigue multiaxiale pour les mêmes matériaux dans 2 autres études (Roach and Gent, 1982; Ayoub *et al.*, 2014).

(Roach et Gent 1982) expliquent ce résultat par le fait que seule une fraction de la densité d'énergie totale est disponible pour l'ouverture de la fissure sous des chargements multiaxiaux alors que dans des conditions uniaxiales, la fissure est exactement perpendiculaire à la direction du chargement. Cette explication a conduit (Mars 2002) à construire le concept de Densité d'Énergie de Fissuration (CED : abréviation anglaise pour *Cracking Energy Density*)

- *Densité d'énergie de fissuration  $dW_c$*

Une telle quantité représente la fraction de densité d'énergie de déformation dissipée par l'amorçage d'une fissure.  $dW_c$  est définie comme le produit du tenseur des contraintes de Cauchy  $\sigma$  et de l'incrément de déformation  $d\varepsilon$  dans une même direction donnée  $\vec{r} = (\cos(\theta); \sin(\theta); 0)$  (Eq.II.1). Selon (Mars, 2002), la fissure se développe dans le plan dans lequel l'énergie de fissuration maximale est libérée. Pour trouver ce plan et donc la valeur maximale de  $dW_c$ , il est nécessaire de tester toutes les valeurs possibles de  $\theta \in [0; 180]$ . La fissure est supposée apparaître dans le plan orthogonal à  $\vec{r}$  correspondant à la valeur maximale de la *CED*

$$dW_c = \vec{r}^t \cdot \sigma \cdot d\varepsilon \cdot \vec{r} \quad (II.1)$$

La *CED* s'est avérée efficace pour prédire la fin de vie et l'orientation des fissures pour des chargements multiaxiaux sous amplitude constante pour des élastomères de type NR (Harbour, Fatemi, et Mars 2007; 2008a; 2008b) et des SBR (Harbour, Fatemi, et Mars 2007; 2008a; 2008b; Ayoub, Naït-Abdelaziz, et Zaïri 2014)

- *Théorie de l'Endommagement Continu*

D'abord introduite par (Rabotnov, 1969) et (Kachanov, 1986) pour décrire le comportement en fluage des matériaux viscoélastiques, la mécanique de l'endommagement continu (*CDM* : abréviation anglaise pour *Continuum Damage Mechanics*) est un moyen de quantifier l'endommagement mécanique cumulé à l'intérieur d'un matériau en introduisant une variable d'endommagement  $D$ . Cette théorie a ensuite été développée par (Lemaitre et Chaboche, 1990) pour décrire le comportement en fatigue d'alliages métalliques, ensuite appliquée aux

élastomères sous chargement uniaxial par (Wang, Lu, et Kim 2002) et enfin étendue aux élastomères sous chargements multiaxiaux et multiblocs par (Ayoub et al. 2012). Pour l'étude de la fatigue, l'évolution de la variable d'endommagement  $D$  dépend de manière non linéaire du chargement mécanique et du nombre de cycles  $N$ . L'intégration de cette loi de comportement du matériau à l'état initial ( $D = 0, N = 0$ ) jusqu'à l'amorçage de la fissure, correspondant à l'état final ( $D = 1, N = N_f$ ) permet de prédire la durée de vie  $N_f$  du matériau quel que soit le chemin de chargement (Eq.II.2) (Ayoub et al. 2012) :

$$N_f = \frac{1}{1+a} \left( \frac{A}{S_{eq}} \right)^a \quad (II.2)$$

Où  $a$  et  $A$  sont des paramètres matériau à identifier et  $S_{eq}$  est une contrainte équivalente donnée par l'(Eq.II.3) :

$$S_{eq} = \frac{\tilde{S}_I \frac{\partial W}{\partial \lambda_I}}{\frac{\partial \tilde{S}_I}{\partial \lambda_I}} \quad (II.3)$$

Où  $\lambda_I$  est l'allongement principal maximal,  $W$  une fonction de densité d'énergie de déformation arbitraire,  $\tilde{S}_I$  est la contrainte maximale principale effective de Piola-Kirchoff 2, définie comme  $S_I = (1 - D)\tilde{S}_I$  et  $D$  est la variable d'endommagement isotrope.

Afin de tenir compte de la limite d'endurance, les auteurs ont ajouté une valeur seuil de la contrainte équivalente, notée  $S_{th}$  en dessous de laquelle aucun n'endommagement n'est supposé se produire. De plus, le chargement moyen est pris en compte en ajoutant une fonction de puissance du rapport de charge  $R$  dans le modèle, conduisant à l'expression suivante du nombre de cycles à la rupture :

$$N_f = \frac{1}{1+a} \left( \frac{A}{S_{eq} - S_{th} - cR^b \cdot S_{eq,moy}} \right)^a (1 - cR^b)^{-1} \quad (II.4)$$

Un très bon accord a été trouvé par l'auteur lors de la comparaison des estimations du modèle et des résultats expérimentaux (Ayoub et al. 2012).

Néanmoins, les paramètres du modèle sont empiriques et ne sont pas liés à l'évolution de la microstructure, ce qui est clairement une faiblesse de cette approche. C'est pourquoi, dans le travail qui suit, nous portons une attention particulière à dériver une expression explicite d'une

nouvelle contrainte équivalente tenant compte de l'évolution des paramètres de la microstructure. Cette contrainte équivalente, qui dépend aussi des élongations principales, décroît rapidement jusqu'à zéro lorsqu'on diminue le chargement de sorte qu'aucun paramètre supplémentaire tenant compte de la limite d'endurance n'est nécessaire pour prédire précisément les durées de vie les plus longues. Cependant, l'absence de paramètre ne permet pas de prédire des durées de vie infinie. Cette méthode reste applicable dans le cadre de l'endurance limitée. Enfin, le rapport de charge est pris en compte en n'utilisant que la différence entre la valeur minimale et la valeur maximale de cette contrainte équivalente notée  $\Delta\sigma_{eq} = \sigma_{eq}(\lambda_{max}) - \sigma_{eq}(\lambda_{min})$  de sorte qu'aucun autre paramètre n'est requis non plus. En revanche, le chargement moyen qui a lui aussi un impact sur la durée de vie n'est pas pris en compte par cette amplitude de contrainte équivalente.

Ce premier chapitre est organisé de la manière suivante :

Dans la section 1, on décrit la procédure expérimentale, y compris les matériaux, les échantillons et les conditions d'essai.

Dans la section 2, le choix d'une fonction de densité d'énergie de déformation permettant de modéliser le comportement mécanique des matériaux est discuté et la procédure d'identification des paramètres est donnée.

Dans la section 3, sur la base des différents résultats expérimentaux obtenus en fatigue multiaxiale, une comparaison de différents indicateurs de fatigue multiaxiale est réalisée, conduisant à sélectionner l'un d'entre eux pour le développement ultérieur de la contrainte équivalente.

Dans la section 4, le développement d'une nouvelle contrainte équivalente couplée à la mécanique de l'endommagement continu est proposé et ses capacités prédictives en termes de durée de vie en fatigue multiaxiale sont discutées.

Dans la section 5, cette approche attractive est enrichie en incluant les effets du chargement moyen.

Enfin, quelques remarques conclusives sont données et des perspectives sont esquissées.

## II.2 Procédure expérimentale

Dans un premier temps, des essais de fatigue multiaxiaux impliquant différents types de sollicitations cycliques (traction, torsion et traction/torsion combinée) ont été réalisés sur différentes géométries d'éprouvettes illustrées sur la (Fig.II.1). Notons que les éprouvettes haltères présentent un rayon de raccordement de 170 mm permettant d'assurer la localisation de la déformation dans la partie centrale sans affecter la triaxialité qui reste celle d'un essai de traction uniaxiale.

Le signal périodique utilisé pour le chargement cyclique est triangulaire. Les essais sont pilotés en déplacement et en angle de rotation. Les détails de chargement sont résumés dans le (Tab.II.1a).

Les expériences ont été réalisées sur un dispositif de fatigue multiaxiale Instron 8874® dont une photographie est donnée en Annexe 2. Le matériau étudié est un caoutchouc naturel réticulé chargé de noir de carbone (20 phr). Le fournisseur n'a pas souhaité donner les détails précis de la formulation chimique. Le critère expérimental de fin de vie était l'apparition d'une microfissure de 1mm.

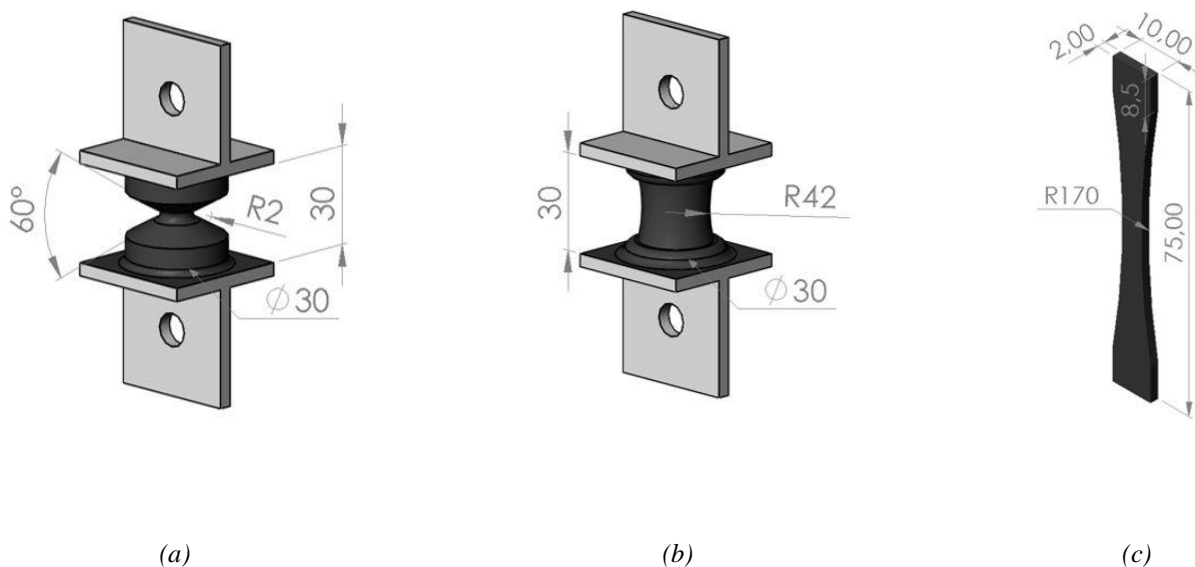


Fig.II.1: Éprouvettes utilisées pour les essais de fatigue multiaxiale (a) AE2, (b) AE42 and (c) Haltère.

(dimensions en mm)



Éprouvette	Déplacement maximal (mm)	Angle de torsion (°)	Fréquence (Hz)
Haltère	58	0	2
Haltère	46.4	0	2.5
Haltère	34.8	0	3.333
Haltère	23.2	0	5
Haltère	11.6	0	10
AE2	12.5	0	1.6
AE2	10	0	2
AE2	7.5	0	2.667
AE2	5	0	4
AE2	2.5	0	8
AE2	1.25	0	16
AE2	0	150	1.6
AE2	0	120	2
AE2	0	90	2.667
AE2	0	60	4
AE2	0	30	8
AE2	2.5	150	1.6
AE2	2.5	120	2
AE2	2.5	90	2.667
AE2	2.5	60	4
AE2	2.5	30	8
AE42	30	0	2
AE42	24	0	2.5
AE42	18	0	3.333
AE42	12	0	5
AE42	0	180	1.6
AE42	0	150	2
AE42	0	120	2.5

AE42	0	90	3.333
AE42	6	150	2
AE42	6	120	2.667
AE42	6	90	3.333
AE42	6	60	5

*Tab.II.1a: Paramètres des essais multiaxiaux*

D'autre part, des essais de traction et de torsion monotones ont été réalisés après avoir annulé l'effet Mullins afin d'identifier les paramètres de la loi de comportement du matériau. Les détails de ces essais sont résumés dans le tableau (Tab.II.1b). Ces essais monotones ont été réalisés sur un dispositif d'essais mécaniques multiaxiaux Instron 8874®. Notons que chaque essai a été répété 3 fois au total pour s'assurer de la reproductibilité des résultats.

Éprouvettes	Déplacement maximal (mm)	Angle de torsion maximal (°)	Vitesse de sollicitation
Haltère	Jusqu'à rupture $\approx 210mm$		0.1 mm/s
AE2	16		0.1 mm/s
AE2		180	1 °/s
AE42	50		0.1 mm/s
AE42		180	1 °/s

*Tab.II.1b: Paramètres des essais multiaxiaux*

## II.3 Modélisation du comportement mécanique

### II.3.1 Rappels de l'état de l'art

Le comportement mécanique des élastomères est habituellement décrit à l'aide du formalisme de l'hyperélasticité qui postule l'existence d'une fonction de densité d'énergie de déformation (SEDF), notée  $W$ . La relation contrainte-déformation peut être dérivée de cette fonction. Pour les matériaux isotropes, ces SEDF peuvent s'écrire alternativement en fonction des trois invariants du tenseur de déformation de Cauchy-Green (Rivlin, 1948). Plusieurs lois hyperélastiques ont été proposées par des auteurs ces dernières années dont les trois plus pertinents pour cette thèse sont rappelés ci-dessous :

Le modèle de (Treloar, 1943), mieux connu sous le nom de modèle Néo-Hookéen est le plus simple et le plus connu. La SEDF est exprimée en fonction de la densité de chaîne de la matrice élastomère  $n$  et des élongations principales  $\lambda_i$ , ce qui le fait appartenir à la famille des modèles physiquement fondés.

$$W(\lambda) = \frac{nkT}{2} (\lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 - 3) \quad (II.5)$$

Où  $k$  est la constante de Boltzmann et  $T$  est la température absolue en Kelvin.

Basé sur une statistique gaussienne, le modèle Néo-Hookéen permet de modéliser le comportement mécanique des élastomères pour des déformations allant jusqu'à 200% (Marckmann et Verron 2006). En revanche, il ne permet pas de reproduire le durcissement observé aux grandes déformations ce qui a amené les chercheurs à s'appuyer sur une statistique non gaussienne.

Parmi ces derniers, un modèle particulièrement utilisé, physiquement fondé et capable de reproduire le durcissement aux grandes déformations est le modèle dit à 8-chaînes proposé par E. Arruda et M.C. Boyce (Arruda et Boyce 1993). L'expression de la densité d'énergie de déformation fait apparaître deux paramètres structuraux que sont la densité de chaîne  $n$  et le nombre moyen de monomère par chaîne  $N$  :

$$W(I_1) = \frac{nkT}{3} \sqrt{N} \left( \lambda_{ch} \beta_{ch} + \sqrt{N} \ln \left( \frac{\beta_{ch}}{\sinh(\beta_{ch})} \right) \right) \quad (II.6)$$

Où  $\lambda_{ch} = \sqrt{\frac{I_1}{3}}$  et  $\beta_{ch} = \mathcal{L}^{-1}\left(\frac{\lambda_{ch}}{\sqrt{N}}\right)$ ,  $\mathcal{L}$  étant la fonction de Langevin.

Finalement, le modèle proposé par (Gent 1996) est très intéressant car il ne nécessite l'identification que de 2 paramètres et reproduit très bien le durcissement aux grandes déformations. La SEDF prend la forme suivante :

$$W(I_1) = -\mu J_m \cdot \ln\left(1 - \frac{I_1 - 3}{J_m}\right) \quad (II.7)$$

Où  $\mu$  et  $J_m$  sont les 2 paramètres à identifier.

Le côté phénoménologique de ce modèle a été une faiblesse durant les premières années de sa parution dans la littérature scientifique. Cependant, (Horgan et Saccomandi 2002) ont trouvé une relation entre les paramètres  $(\mu, J_m)$  du modèle de Gent et les paramètres matériaux  $(n, N)$  du modèle à 8-chaînes :

$$\mu = nkT \quad (II.8.1)$$

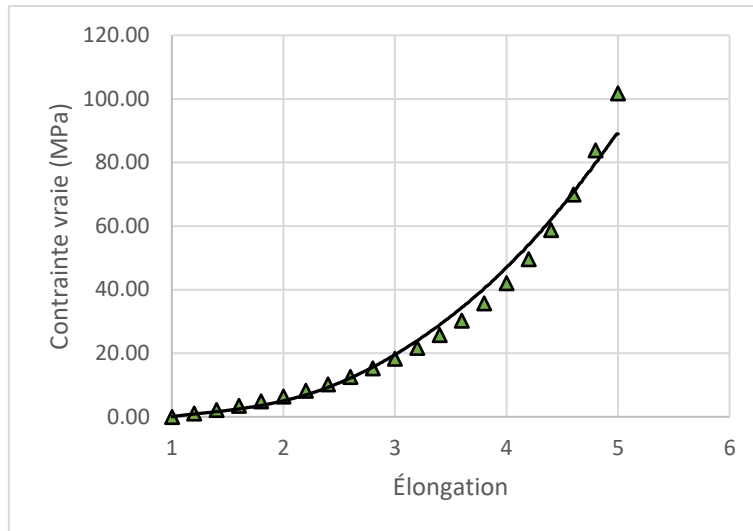
$$J_m = 3(N - 1) \quad (II.8.2)$$

En conclusion, le modèle de Gent est un outil puissant pour décrire le comportement mécanique des élastomères puisque, premièrement, il est capable de reproduire le durcissement aux grandes déformations, deuxièmement, il est directement relié à la microstructure du matériau et, finalement, son expression mathématique est plus simple à manipuler que le modèle à 8-chaînes puisqu'il ne fait pas appel à la fonction de Langevin. Ce modèle a donc été choisi pour décrire le comportement de notre matériau d'étude.

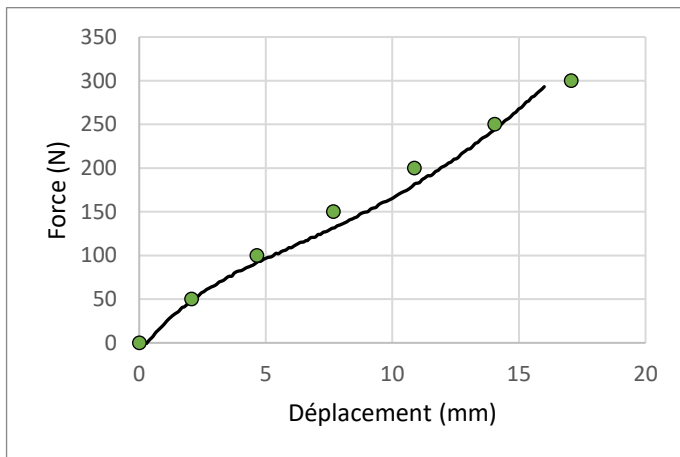
### II.3.2 Identification des paramètres

Les paramètres ont d'abord été identifiés sur des essais de traction uniaxiale sur des éprouvettes haltères afin d'assurer l'uniaxialité du champ de contrainte. La vidéo-extensométrie permet d'obtenir la déformation locale pour ajuster au mieux les paramètres du modèle. Ensuite, pour décrire correctement le comportement multiaxial, les paramètres ont été optimisés sur les réponses mécaniques de traction et de torsion des éprouvettes AE2 et AE42 en termes de force-déplacement ou couple-angle à l'aide du logiciel COMSOL Multiphysics. La (Fig.II.2) illustre

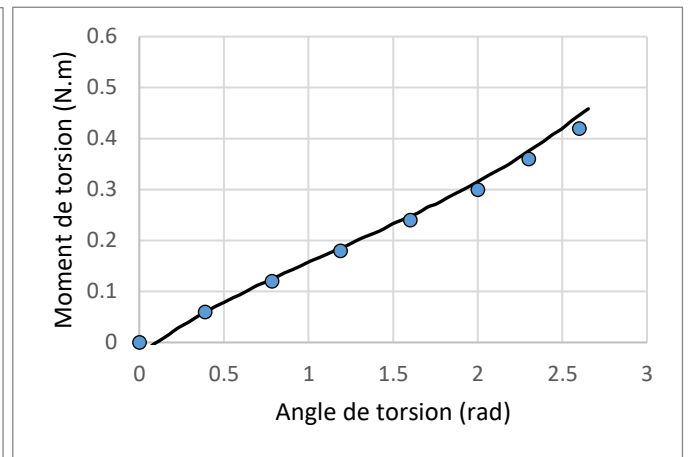




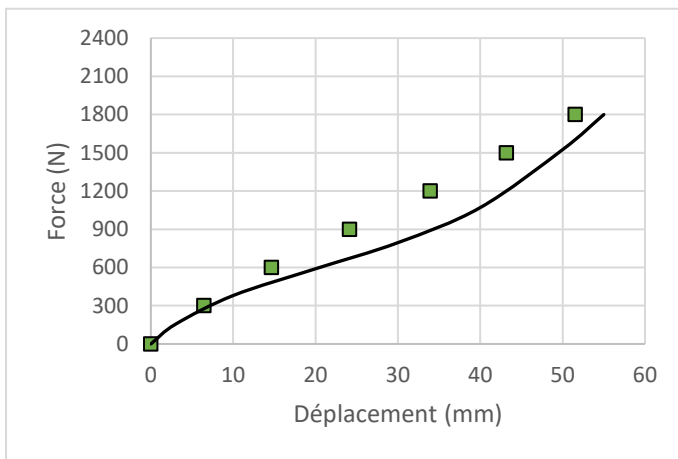
(a)



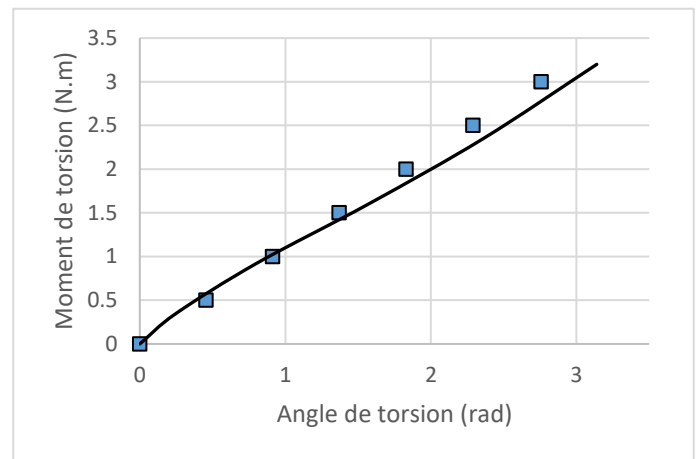
(b)



(c)



(d)



(e)

*Fig.II.3: Comportement mécanique du caoutchouc naturel étudié*

*(marqueurs : simulations, traits pleins : données expérimentales)*

*(a) Haltère traction, (b) AE2 traction, (c) AE2 torsion, (d) AE42 traction, (e) AE42 torsion*

### II.3.3 Critère de durée de vie multiaxiale

Les simulations par éléments finis permettent de calculer diverses grandeurs mécaniques telles que l'élongation principale maximale, la contrainte principale maximale, la densité d'énergie de déformation (SED) et la densité d'énergie de fissuration (CED). Toutes ces grandeurs mécaniques sont ensuite testées comme potentiels indicateurs de la durée de vie du matériau en fatigue multiaxiale.

Les figures (Fig.II.4) à (Fig.II.7) montrent que tous les indicateurs unifient de manière inégale les données de durée de vie en fatigue multiaxiale. En effet, hormis pour la densité d'énergie de fissuration, les autres indicateurs donnent des valeurs légèrement plus faibles dans le cas des éprouvettes AE42. La courbe de tendance est tracée pour mettre en évidence ce phénomène (lignes discontinues pour les géométries AE2 et Haltère et lignes pointillées pour l'AE42). (Ayoub et al. 2012) ont obtenu des résultats similaires pour un matériau SBR et a incriminé l'auto-échauffement qui est significativement plus élevé pour des éprouvettes épaisses comme l'AE42. En effet, le volume apparent de la géométrie AE42 combiné à la faible conductivité des élastomères conduit à un auto-échauffement plus important pour cette géométrie (Voir chapitre

IV). Ainsi, pour un même chargement, les éprouvettes AE42 et AE2 ont des auto-échauffements différents et par conséquent des comportements en fatigue différents. Il convient de noter que la densité d'énergie de fissuration est capable d'unifier la durée de vie en fatigue expérimentale quelle que soit la géométrie de l'échantillon.

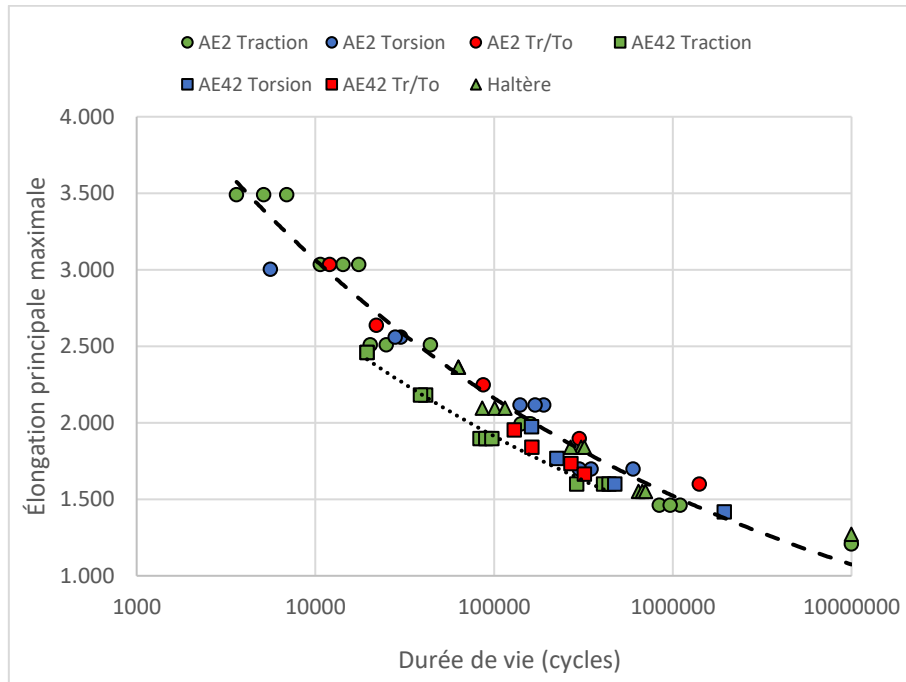


Fig.II.4: Courbe de Wöhler obtenue en utilisant l'Élongation principale maximale  $\lambda_1$



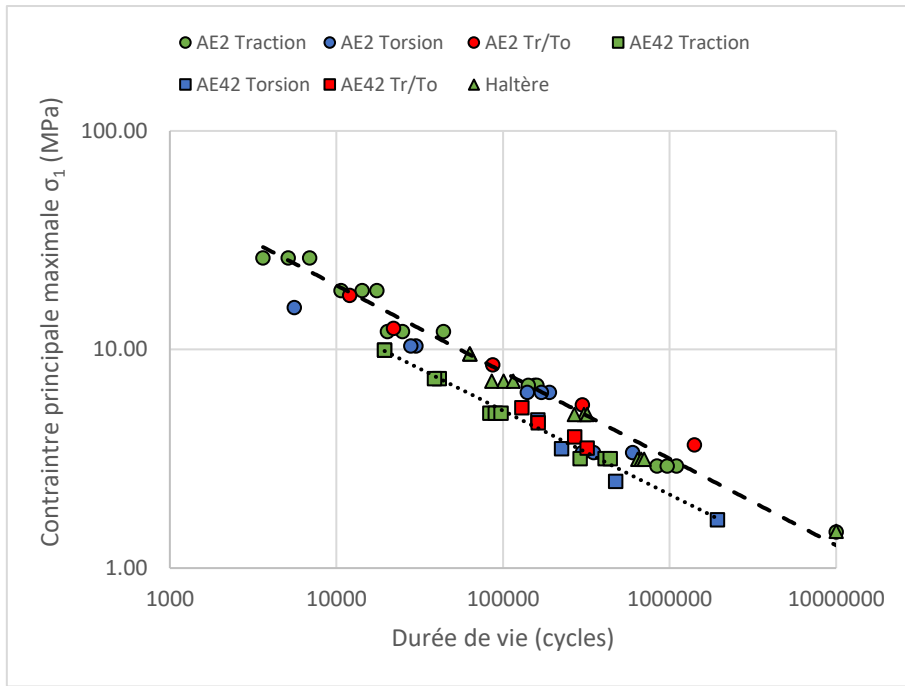


Fig.II.5: Courbe de Wöhler obtenue en utilisant la Contrainte principale maximale de Cauchy  $\sigma_1$  (MPa)

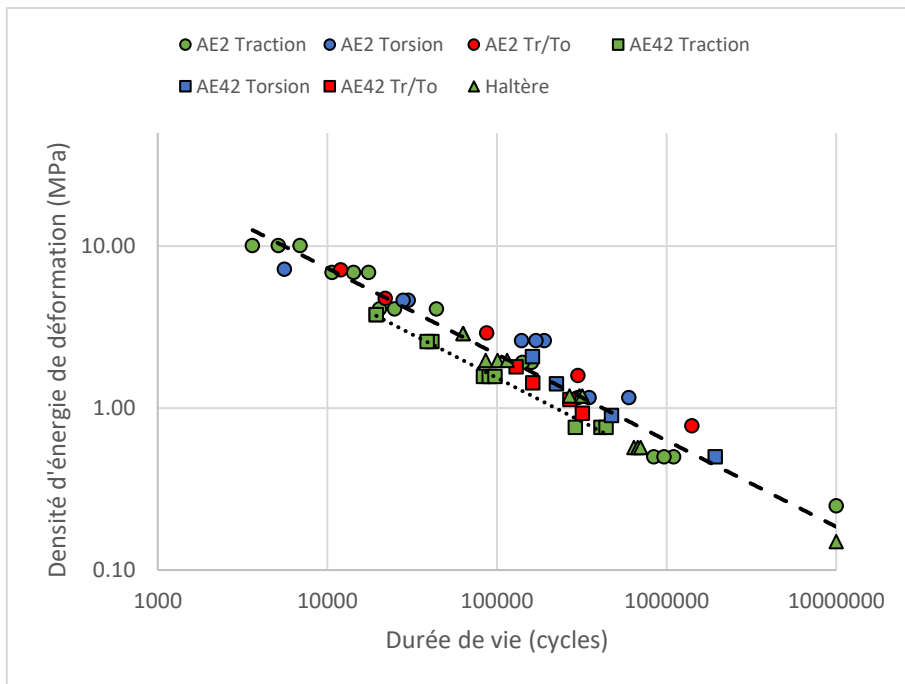


Fig.II.6: Courbe de Wöhler obtenue en utilisant la Densité d'énergie de déformation  $dW$  (MPa)

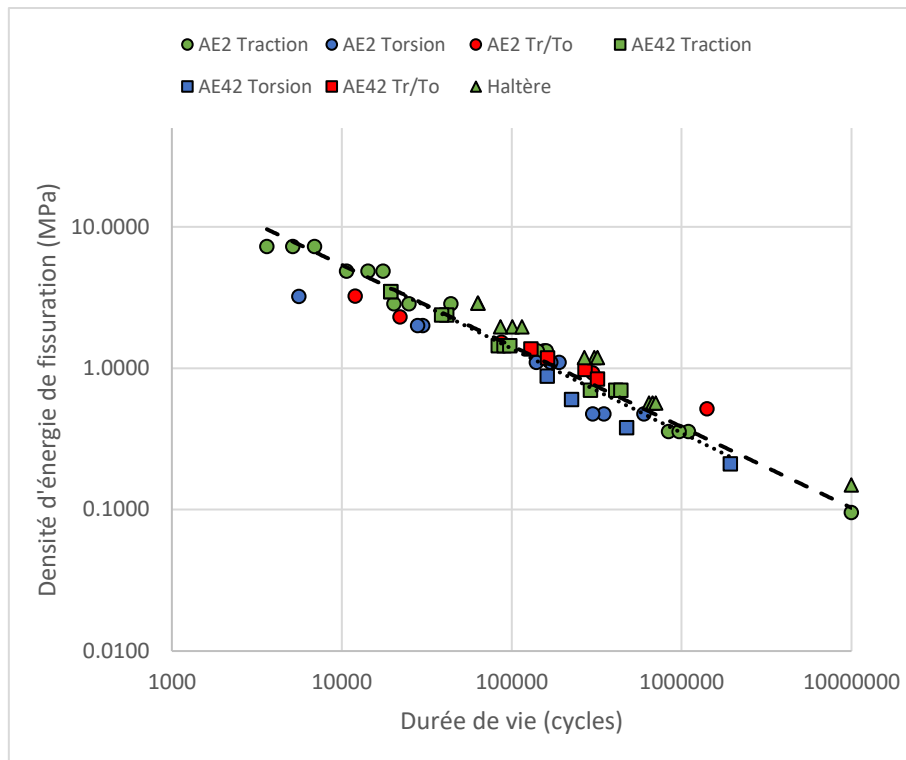


Fig.II.7: Courbe de Wöhler obtenue en utilisant la Densité d'énergie de fissuration  $dW_c$  (MPa)

### II.3.4 Développement d'une contrainte équivalente basée sur la Théorie de l'endommagement continu

Bien que les critères listés dans le paragraphe précédent soient capables d'unifier les durées de vie obtenue en fatigue multiaxiale, il ne s'agit que d'indicateurs. Pour pouvoir estimer la durée de vie d'un matériau à partir de ces indicateurs, il est nécessaire que le chargement soit constant. Pour des chargements variables, il est nécessaire d'introduire le concept d'endommagement. Pour cette raison, nous proposons, dans le paragraphe qui suit, de développer une contrainte équivalente basée sur le cumul de dommage et faisant apparaître les paramètres microstructuraux du matériau.

Le matériau est supposé isotrope, homogène, incompressible et hyperélastique. Le modèle développé est basé sur la théorie de l'endommagement continu appliqué à l'hyperélasticité.

Au cours du processus de fatigue, l'initiation et la propagation des microfissures se produisent par une évolution continue de l'endommagement. Dans la théorie de l'endommagement continu,

l'hypothèse principale est que, du fait de ces microfissures, la section nette contribuant au transfert de charge dans un matériau diminue avec l'endommagement (Lemaitre et Chaboche, 1990). En utilisant le concept de contrainte effective en termes de contraintes principales de Cauchy, c'est-à-dire la contrainte réelle subie par le matériau, les contraintes principales effectives  $\tilde{\sigma}_i$  sont liées à la contrainte principale apparente  $\sigma_i$  par l'(Eq.II.5) :

$$\sigma_i = (1 - D)\tilde{\sigma}_i \quad i = 1; 2; 3 \quad (II.5)$$

Où  $D$  est un scalaire représentant l'évolution isotrope de l'endommagement et pouvant être lié à l'évolution de la section nette. La variable d'endommagement  $D$  évolue de zéro à l'état initial (matériau vierge) à 1 en fin de vie (lorsqu'une fissure macroscopique s'amorce).

Si on utilise le cadre de la thermodynamique des processus irréversibles, dans le cas d'un endommagement isotrope (Lemaitre et Chaboche, 1990), la cinétique d'endommagement s'exprime par :

$$\dot{D} = -\frac{d\phi^*}{dy} \quad (II.6)$$

Où  $y$  est la force thermodynamique liée à l'endommagement et  $\phi^*$  est le potentiel de dissipation qui peut prendre la forme générale suivante (Lemaitre et Chaboche, 1990) :

$$\phi^* = \frac{1}{A} \frac{(-y)^{a+1}}{a+1} \quad (II.7)$$

Où  $a$  et  $A$  sont des paramètres matériau.

La force thermodynamique, c'est-à-dire la variable duale, lié à l'endommagement est définie comme :

$$-y = \frac{\partial W}{\partial D} = \sum_{i=1}^3 \frac{\partial W}{\partial \lambda_i} \frac{\partial \lambda_i}{\partial D} \quad (II.8)$$

Où  $W$  est une fonction de densité d'énergie de déformation du matériau dépendant à la fois des elongations principales et de la variable d'endommagement.

La contrainte principale maximale est un indicateur approprié pour prédire la durée de vie en fatigue sous chargements multiaxiaux selon plusieurs auteurs, e.g., (Saintier 2001; Raoult 2010; Ayoub, Naït-Abdelaziz, et Zaïri 2014). Il est donc généralement admis que l'endommagement

dû à la contrainte principale maximale est prédominant dans le processus de fatigue. L'(Eq.II.8) peut donc être simplifié en utilisant uniquement la première direction principale comme proposé par (Ayoub et al. 2011). Pour simplifier les formulations dans les calculs suivants, l'indice correspondant à la première direction principale sera supprimé.  $\lambda_1$  s'écrira  $\lambda$ ,  $\sigma_1$  s'écrira  $\sigma$  et  $\tilde{\sigma}_1$  s'écrira  $\tilde{\sigma}$ .

$$-y = \frac{\partial W}{\partial \lambda} \frac{\partial \lambda}{\partial D} \quad (II.8.1)$$

Le terme  $\frac{\partial \lambda}{\partial D}$  est obtenu par différentiation de l'équation (Eq.II.5) par rapport à la variable d'endommagement  $D$  :

$$\begin{aligned} \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial D} &= \frac{\partial \left[ \frac{\sigma}{(1-D)} \right]}{\partial D} \\ \Leftrightarrow \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial \lambda} \frac{\partial \lambda}{\partial D} &= \frac{\sigma}{(1-D)^2} \\ \Leftrightarrow \frac{\partial \lambda}{\partial D} &= \frac{\sigma}{(1-D)^2} \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial \lambda} \end{aligned} \quad (II.9)$$

En combinant les équations (Eq.II.8.1) et (Eq.II.9), on obtient :

$$-y = \frac{\partial W}{\partial \lambda} \frac{\sigma}{(1-D)^2} \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial \lambda} \quad (II.10)$$

Cette expression peut être simplifiée en utilisant l'équation (Eq.II.5) et en introduisant une contrainte équivalente :

$$\begin{aligned} -y &= \frac{\partial W}{\partial \lambda} \frac{\tilde{\sigma}}{(1-D)} \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial \lambda} \\ \Leftrightarrow -y &= \frac{\sigma_{eq}}{(1-D)} \end{aligned} \quad (II.10.1)$$

Avec,

$$\sigma_{eq} = \tilde{\sigma} \frac{\frac{\partial W}{\partial \lambda}}{\frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial \lambda}} \quad (II.11)$$

Cette expression est semblable à l'équation (Eq.II.3) mais écrite en termes de contrainte de Cauchy. Afin d'obtenir une forme explicite de la contrainte équivalente, il est nécessaire de développer les termes  $\tilde{\sigma}$ ,  $\frac{\partial W}{\partial \lambda}$  et  $\frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial \lambda}$  en introduisant une fonction densité d'énergie de déformation. Par souci de simplicité, la densité d'énergie de déformation choisie sera celle de (Treloar 1943), mieux connue sous le nom de modèle Néo-Hookéen. Ce choix n'est pas arbitraire puisque ce modèle est équivalent à celui de Gent pour des petites déformations. La preuve en est donnée en Annexe 1. Ce choix s'explique également par le fait que les déformations imposées en fatigue restent modérées.

Le modèle Néo-Hookéen pour un matériau isotrope s'écrit :

$$W = W_{iso} + W_{vol} = \frac{nkT}{2}(I_1 - 3) + \frac{K}{2}(J - 1)^2 \quad (II.12)$$

Où  $W_{iso}$  représente la partie isochore de l'énergie de déformation,  $W_{vol}$  sa partie volumique,  $n$  est la densité de chaîne par unité de volume,  $k$  la constante de Boltzmann,  $T$  la température absolue,  $K$  le module de compressibilité et  $J$  le jacobien de la transformation.

Pour un matériau isotrope, l'état de contrainte dérive de l'équation (Eq.II.12) par l'intermédiaire du tenseur des dilatations grâce à la formule suivante :

$$\boldsymbol{\sigma} = \frac{2}{J} \left[ \left( \frac{\partial W}{\partial I_1^*} + I_1^* \frac{\partial W}{\partial I_2^*} \right) \mathbf{dev}(\mathbf{B}^*) - 2 \frac{\partial W}{\partial I_2^*} \mathbf{dev}(\mathbf{B}^*)^2 + \frac{\partial W}{\partial J} \mathbf{I} \right]$$

Où  $\mathbf{dev}(\mathbf{B}^*) = J^{-\frac{2}{3}} \mathbf{B} - \frac{I_1}{3} \mathbf{I}$ ,  $I_1^* = J^{-\frac{2}{3}} I_1$  et  $I_2^* = J^{-\frac{2}{3}} I_2$

Rappelons que la densité d'énergie de déformation ne dépend pas de  $I_2$  :

$$\boldsymbol{\sigma} = \frac{2}{J} \left[ \frac{\partial W}{\partial I_1^*} \mathbf{dev}(\mathbf{B}^*) + \frac{\partial W}{\partial J} \mathbf{I} \right] \quad (II.13)$$

L'hypothèse des déformations équivalentes (Lemaitre et Chaboche, 1990) indique que la densité d'énergie de déformation d'un matériau vierge, i.e.  $W_0(\lambda_i) = W(\lambda_i, D = 0)$ , peut être utilisée pour exprimer le tenseur de contrainte effective pour le matériau endommagé.

En injectant l'expression de la densité d'énergie de déformation (Eq.II.12) dans l'équation (Eq.II.13), on obtient :

$$\tilde{\sigma} = \frac{nkT}{J} \left( J^{-\frac{2}{3}} \mathbf{B} - \frac{I_1}{3} \mathbf{I} \right) + K(J - 1) \mathbf{I}$$

Dans ce qui suit, on considère que le matériau est incompressible ( $J = 1$ ). Dans ce cas il est d'usage d'introduire un paramètre  $p$ , appelé multiplicateur de Lagrange, qui tient compte de la pression hydrostatique. C'est une inconnue du problème qu'il faut identifier. L'expression de la contrainte devient :

$$\tilde{\sigma} = nkT \left( \mathbf{B} - \frac{I_1}{3} \mathbf{I} \right) + p \mathbf{I}$$

L'identification du paramètre  $p$  nécessite l'utilisation des conditions limites. Hormis dans des cas simples notamment en conditions de traction uniaxiale ou de contraintes planes, il est nécessaire de faire appel à des simulations par éléments finis pour évaluer cette inconnue. En rappelant que notre objectif est de développer un outil analytique et pour se prémunir de cette identification numérique, nous ne considérons dans ce qui suit que la partie déviatorique du tenseur des contraintes. Dans l'annexe 3, nous présentons les différences entre cette composante déviatorique et la contrainte réelle prenant en compte la pression hydrostatique dans des cas simples de contraintes planes. L'expression de la contrainte déviatorique, noté  $\tilde{\sigma}_D$  prend donc la forme suivante :

$$\tilde{\sigma}_D = nkT \left( \mathbf{B} - \frac{I_1}{3} \mathbf{I} \right) \quad (II.14)$$

La contrainte équivalente qui est développée sur la base de la théorie de l'endommagement continue se fait donc à partir de cette contrainte déviatorique. Plus loin dans ce chapitre, la contrainte équivalente est comparée à la contrainte déviatorique (Eq.II.14) afin de vérifier que l'omission du terme de pression hydrostatique n'impacte pas la prise en compte de la multiaxialité du chargement.

Pour un matériau incompressible, on peut écrire le tenseur gradient de déformation dans les directions principales sous la forme suivante :

$$\mathbf{F} = \text{diag}(\lambda, \lambda^m, \lambda^{-(m+1)})$$

Où  $m$  est un paramètre de multiaxialité dépendant du chargement. Par exemple,  $m = -\frac{1}{2}$  dans le cas de la traction uniaxiale. Ce paramètre peut être déterminé par la formule suivante :

$$m = \frac{\ln(\lambda_2)}{\ln(\lambda_1)}$$

Ainsi, le tenseur des dilations de Cauchy-Green gauche, s'écrit :

$$\mathbf{B} = \mathbf{F}\mathbf{F}^T = \text{diag}(\lambda^2, \lambda^{2m}, \lambda^{-2(m+1)})$$

Avec pour premier invariant,

$$I_1 = \text{tr}(\mathbf{B}) = \lambda^2 + \lambda^{2m} + \lambda^{-2(m+1)}$$

Puisqu'on ne s'intéresse qu'à la première direction principale l'équation (Eq.II.14) devient finalement :

$$\begin{aligned} \widetilde{\sigma}_D &= nkT \left( \lambda^2 - \frac{I_1}{3} \right) \\ \widetilde{\sigma}_D &= \frac{nkT}{3} (2\lambda^2 - \lambda^{2m} - \lambda^{-2(m+1)}) \end{aligned} \quad (\text{II.15})$$

La différentiation de l'équation (Eq.II.15) par rapport à  $\lambda$  permet d'obtenir le terme  $\frac{\partial \widetilde{\sigma}}{\partial \lambda}$  :

$$\frac{\partial \widetilde{\sigma}_D}{\partial \lambda} = \frac{2}{3} nkT (2\lambda - m\lambda^{2m-1} + (m+1)\lambda^{-2m-3}) \quad (\text{II.16})$$

Finalement, le terme  $\frac{\partial W}{\partial \lambda}$  est calculé en dérivant l'équation (Eq.II.12) par rapport à  $\lambda$  en supposant que  $J = 1$  :

$$\frac{\partial W}{\partial \lambda} = nkT (\lambda + m\lambda^{2m-1} - (m+1)\lambda^{-2m-3}) \quad (\text{II.17})$$

Enfin, la combinaison des équations (Eq.II.11), (Eq.II.15), (Eq.II.16) et (Eq.II.17) mènent à la formulation explicite de la contrainte équivalente :

$$\sigma_{eq} = \frac{nkT}{2} \frac{(2\lambda^2 - \lambda^{2m} - \lambda^{-2(m+1)})(\lambda + m\lambda^{2m-1} - (m+1)\lambda^{-2m-3})}{(2\lambda - m\lambda^{2m-1} + (m+1)\lambda^{-2m-3})} \quad (\text{II.18})$$

Il apparait donc que cette contrainte équivalente peut être calculée analytiquement, nonobstant la connaissance du paramètre  $m$ . Dans le cas d'un chargement multiaxial, celui-ci se détermine

par éléments finis. On localise d'abord, pour ce chargement, la contrainte principale maximale. Une fois localisée, on extrait les valeurs de déformations dans les deux directions afin de calculer  $m$  par la relation  $m = \frac{\ln(\lambda_2)}{\ln(\lambda_1)}$ .

Pour tous les essais multiaxiaux effectués sur les 3 géométries d'éprouvettes, les valeurs de  $m$  sont comprises entre 0 pour les essais de torsion pure et  $-0.5$  pour les essais de traction uniaxiale sur les éprouvettes haltères. Le tableau (Tab.II.2) récapitule les valeurs de  $m$  calculées pour chaque éprouvette. La borne minimale correspond à un chargement quasiment nul  $\lambda_1 \simeq 1$  et la borne maximale correspond au chargement maximal appliqué. On rappelle que  $m = -\frac{1}{2}$  correspond à l'état de traction uniaxiale et  $m = 0$  correspond à un état de déformation plane dans le plan orthogonal à la seconde directions principales. Par conséquent, toutes les valeurs de  $m$  comprises entre 0 et  $-0.5$  correspondent à des états triaxiaux, des états hybrides entre la traction uniaxiale et la déformation plane. Notons que  $m = -1$  correspond également à un état de contrainte plane mais dans le plan orthogonal à la troisième direction principale.

	Haltère	AE2 Traction	AE2 Torsion	AE2 Tr/To	AE42 Traction	AE42 Torsion	AE42 Tr/To
$m$	$-\frac{1}{2}$	$[-0.26 ; -0.37]$	$[-0.01; -0.04]$	$[-0.21; -0.43]$	$[-0.46 ; -0.48]$	$[0; 0.03]$	$[-0.34; -0.46]$

Tab.II.2 : Valeurs de  $m$  calculées pour chaque éprouvette et chaque trajet de chargement. La valeur de  $m$  dépend de l'intensité de la sollicitation.

La contrainte équivalente peut également être écrite en termes de contrainte effective de Cauchy grâce à l'équation (Eq.II.15) :

$$\frac{\sigma_{eq}}{\widetilde{\sigma}_D} = \frac{3}{2} \frac{(\lambda + m\lambda^{2m-1} - (m+1)\lambda^{-2m-3})}{(2\lambda - m\lambda^{2m-1} + (m+1)\lambda^{-2m-3})} \quad (II.19)$$

L'équation (Eq.II.19) est tracée graphiquement sur la figure (Fig.II.8) pour différentes valeurs de  $m$ . Quelle que soit sa valeur, le rapport entre la contrainte équivalente et la contrainte effective tend rapidement vers 0 lorsque l'allongement tend vers 1. Cette dernière propriété



permet d'obtenir une bonne précision sur les prédictions faites pour les faibles chargements sans introduire de paramètre supplémentaire pour tenir compte de la limite d'endurance. En ce qui concerne les grandes déformations, deux comportements se distinguent. Pour  $m = 1$  (tension équi-biaxiale), le rapport tend rapidement vers 3. Pour toute autre valeur de  $m$ , le rapport tend vers  $\frac{3}{4}$ . De plus, plus la valeur de  $m$  est faible, plus cette limite supérieure est rapidement atteinte.

Enfin, pour des valeurs négatives de  $m$ , ce qui correspond aux chemins de chargement utilisés pour nos essais de fatigues (traction, torsion et traction-torsion combinées), toutes les courbes se recouvrent. Ce résultat suggère que cette contrainte équivalente peut unifier les durées de vie en fatigue multiaxiale comme le prouve la figure (Fig.II.9). Par conséquent, l'omission de la pression hydrostatique dans le tenseur des contraintes de Cauchy, ne semble pas avoir d'impact sur la prise en compte de la multiaxialité dans le cas des chargements utilisés lors de notre campagne expérimentale. Ce résultat ne signifie pas que la pression hydrostatique n'a aucune influence sur le comportement en fatigue mais que pour des chargements faiblement multiaxiaux ( $-\frac{1}{2} \leq m \leq 0$ ), son impact peut être négligé afin de se prémunir de l'identification du paramètre de pression et de simplifier l'expression de la contrainte équivalente.

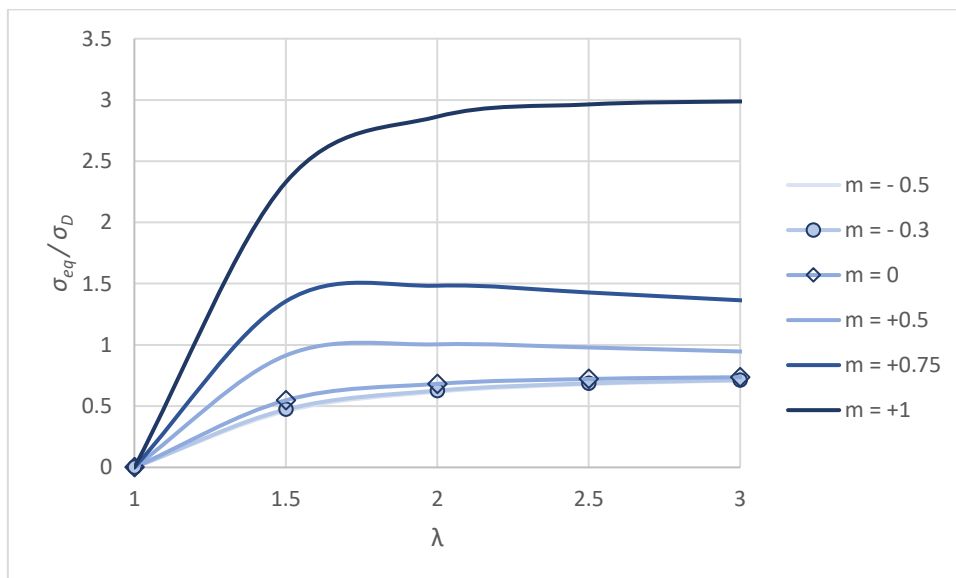


Fig.II.8 : (Eq.II.19) vs. Élongation principale maximale pour différentes valeurs de  $m$

La contrainte équivalente donnée par l'équation (Eq.II.18) est testée comme critère multiaxial de durée de vie sur la figure (Fig.II.9) avec une densité de chaînes  $n = 4.32 \times 10^{14} m^{-3}$ . Les résultats obtenus pour les trois géométries présentent une amélioration comparativement à la contrainte principale maximale (Fig.II.5). On remarque cependant un décalage entre la géométrie AE42 et les deux autres.

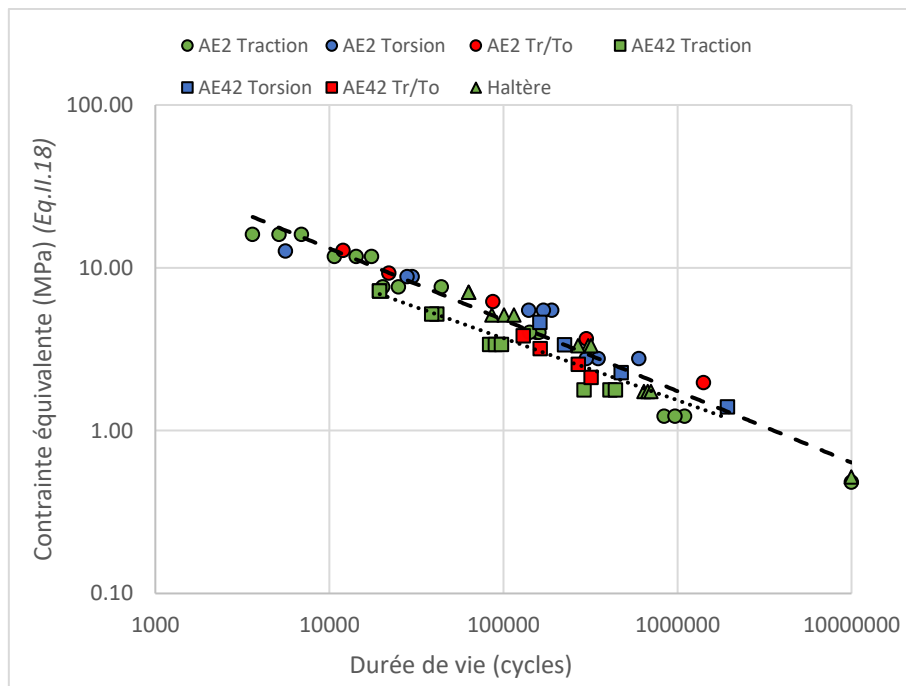


Figure II.9 : Courbe de Wöhler obtenue en utilisant la contrainte équivalente (MPa) (Eq.II.18)

Afin de disposer d'un outil permettant la prédiction de la durée de vie, la cinétique du processus d'endommagement doit être introduite. Elle s'exprime en combinant les équations (Eq.II.6), (Eq.II.7) et (Eq.II.10.1) :

$$\dot{D} = \frac{1}{A} \left( \frac{\sigma_{eq}}{(1-D)} \right)^a \quad (II.20)$$

L'évolution de la variable d'endommagement peut être vue comme sa variation par rapport au nombre de cycle de chargement :

$$\frac{\partial D}{\partial N} = \frac{1}{A} \left( \frac{\sigma_{eq}}{(1-D)} \right)^a \quad (II.20.1)$$

L'intégration de l'équation (Eq.II.20.1) entre le matériau vierge ( $D = 0, N = 0$ ) et une valeur donnée de la variable d'endommagement ( $0 < D < 1, 0 < N < N_f$ ) permet d'obtenir une expression explicite de la variable d'endommagement :

$$\int_{D=0}^D (1-D)^a dD = \int_{N=0}^N \frac{(\sigma_{eq})^a}{A} dN$$

$$D = 1 - \left[ 1 - (1+a) \frac{(\sigma_{eq})^a}{A} N \right]^{\frac{1}{1+a}} \quad (II.21)$$

La figure (Fig.II.10) montre l'évolution de la variable d'endommagement donnée par l'équation (Eq.II.21) en fonction de la durée de vie de l'éprouvette. Il est clairement mis en évidence que l'endommagement évolue linéaire durant la première moitié de la durée de vie du matériau, puis croît rapidement et non-linéairement jusqu'à atteindre la valeur critique  $D = 1$  correspondant à la fin de vie du matériau.

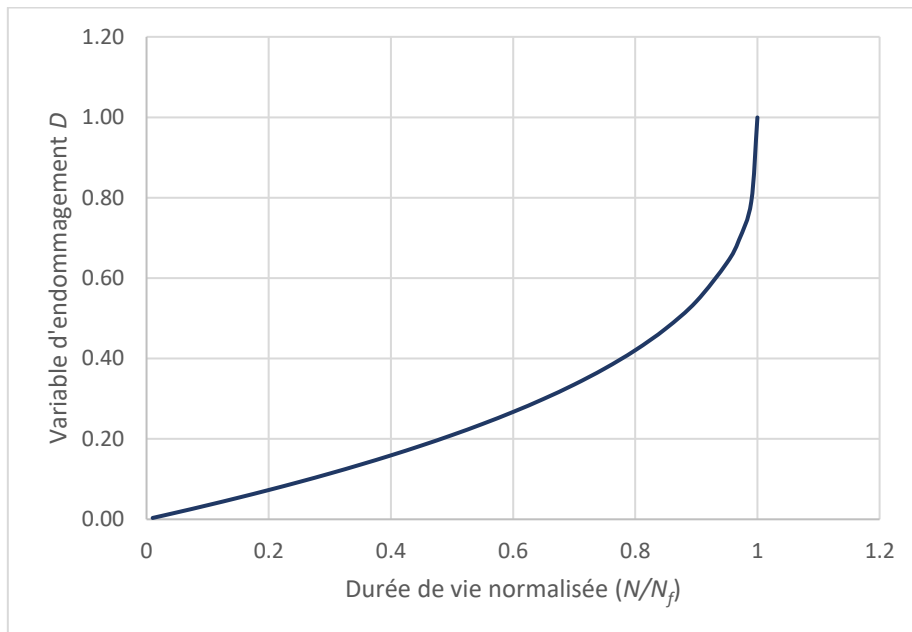


Fig.II.10 : Variable d'endommagement  $D$  vs. Durée de vie normalisée  
Éprouvette haltère (déplacement maximal : 23.2 mm)

La durée de vie du matériau correspond à un état totalement endommagé, i.e.,  $D = 1$  et  $N = N_f$ . Ainsi la durée de vie du matériau s'exprime par la formule suivante :

$$N_f = \frac{A}{1+a} (\sigma_{eq})^{-a} \quad (II.22)$$

Les paramètres  $A$  et  $a$  sont identifiés sur la courbe de Wöhler obtenue pour l'éprouvette haltère (Fig.II.11) et valent  $A = 8.0 \times 10^6 \text{ MPa}$  et  $a = 1.95$ . Les durées de vie prédites données par l'équation (Eq.II.22) sont comparées aux durées de vie expérimentales sur la figure (Fig.II.12). Un bon accord est trouvé pour les trois géométries avec une tolérance de  $\pm 100\%$ . Une légère surestimation est observée pour la géométrie AE42. Comme expliqué dans la section 3, l'auto-échauffement doit être pris en compte afin de corriger cette surestimation.

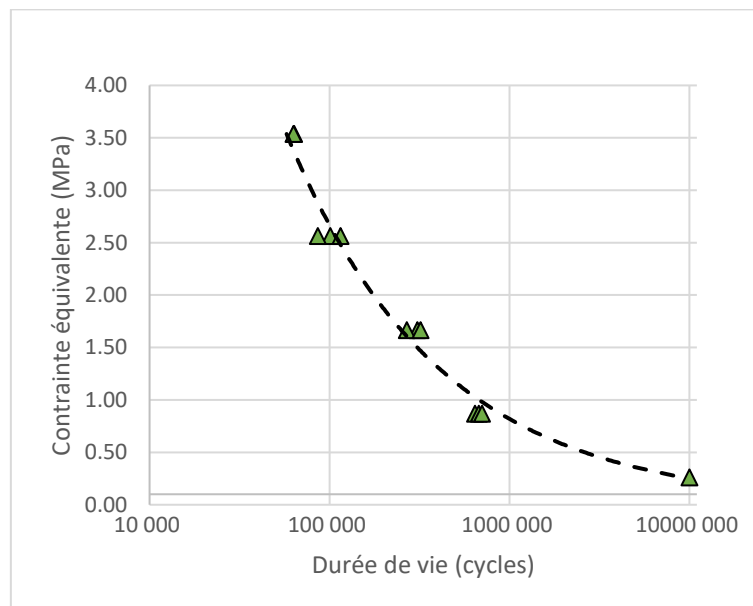


Fig.II.11 : Courbe de Wöhler de l'éprouvette haltère obtenue en utilisant la contrainte équivalente (marqueurs : Données expérimentales, ligne discontinue : prédiction (Eq.II.22))

$$A = 8.0 \times 10^6 \text{ MPa et } a = 1.95$$

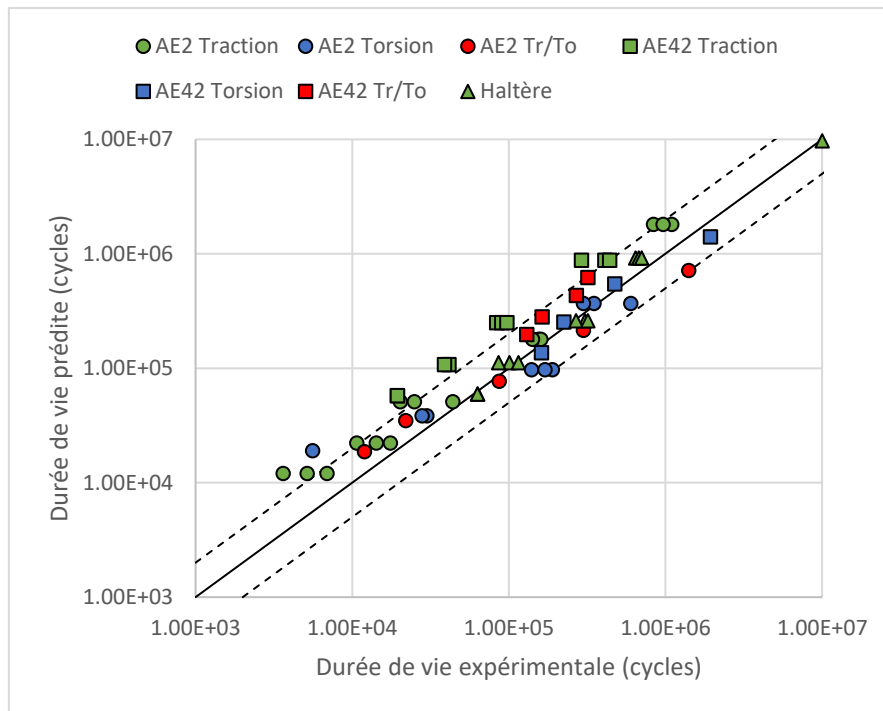


Fig.II.12 : Durée de vie prédite vs. Durée de vie expérimentale

$$A = 8.0 \times 10^6 \text{ MPa et } a = 1.95$$

### II.3.5 Prise en compte du rapport de charge

Le rapport de charge est généralement un paramètre dont il faut tenir compte lorsqu'on traite de la fatigue, car il affecte notablement le comportement en fatigue des matériaux. Par exemple, dans le cas d'un SBR, (Ayoub et al. 2012) a observé que pour un déplacement maximal donné, l'augmentation du déplacement minimal, c'est-à-dire l'augmentation du rapport de charge, se traduit par un allongement de la durée de vie comme le montre clairement la figure (Fig.II.13) issue de ses travaux pour les conditions d'essais indiquées dans le tableau (Tab.II.3).

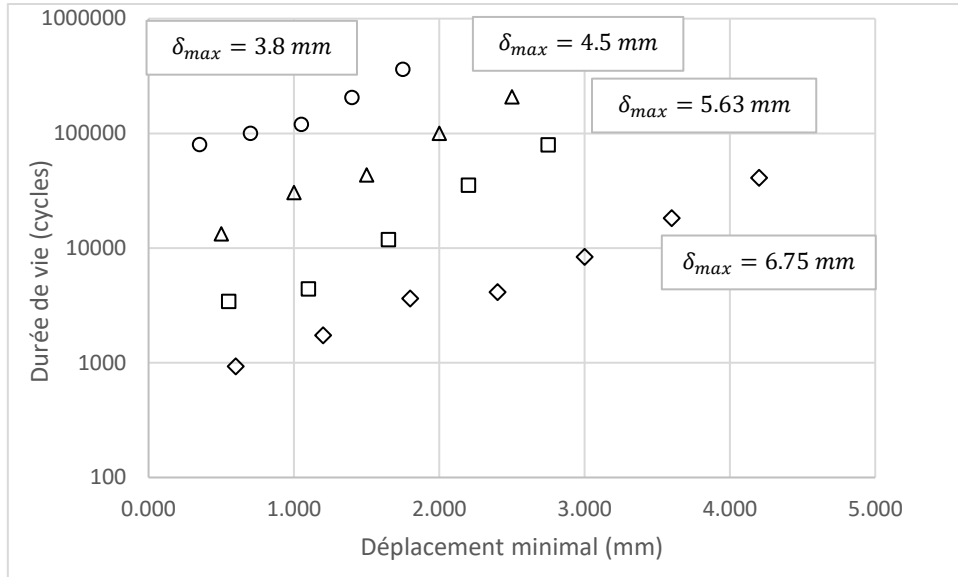


Fig.II.13 : Durée de vie expérimentale (cycles) vs. Déplacement minimal (mm)  
 (AE2 sous traction cyclique,  $\delta_{max}$  est le chargement maximal)  
 (Ayoub et al. 2012)

La figure (Fig.II.13) suggère donc que le chargement maximal n'est pas le seul paramètre qui affecte la durée de vie en fatigue et que le chargement minimal joue également un rôle important. Comme la durée de vie en fatigue augmente avec le chargement minimum, une idée simple consiste à remplacer dans l'équation (Eq.II.22) la valeur de contrainte équivalente maximale par son amplitude entre les chargements maximal et minimal.

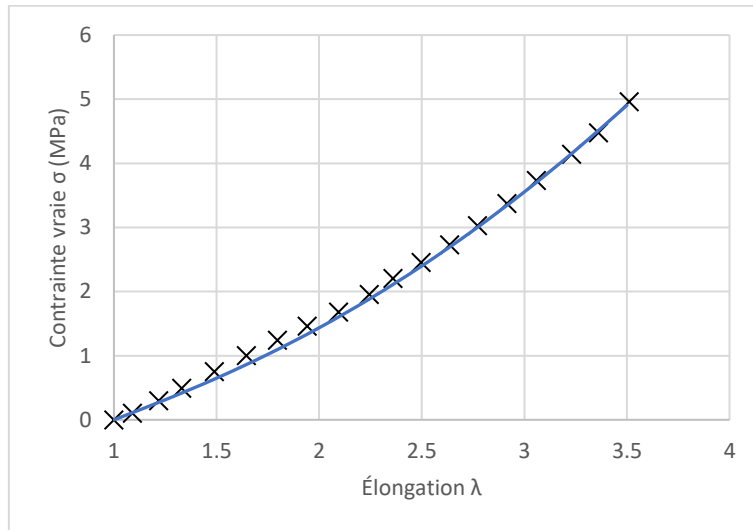
De cette manière, l'endommagement est fonction de la différence entre la contrainte équivalente maximale  $\sigma_{eq}(\lambda_{max})$  et la contrainte équivalente minimale  $\sigma_{eq}(\lambda_{min})$  (Eq .II.23) conduisant à une nouvelle expression de la durée de vie prédite (Eq.II.24). Notons que pour un chargement relaxant ( $\lambda_{min} = 1$ ), la variation de contrainte équivalente est égale à la contrainte équivalente maximale.

$$D = 1 - \left[ 1 - (1 + a) \frac{(\Delta\sigma_{eq})^a}{A} N \right]^{\frac{1}{1+a}} \quad (II.23)$$

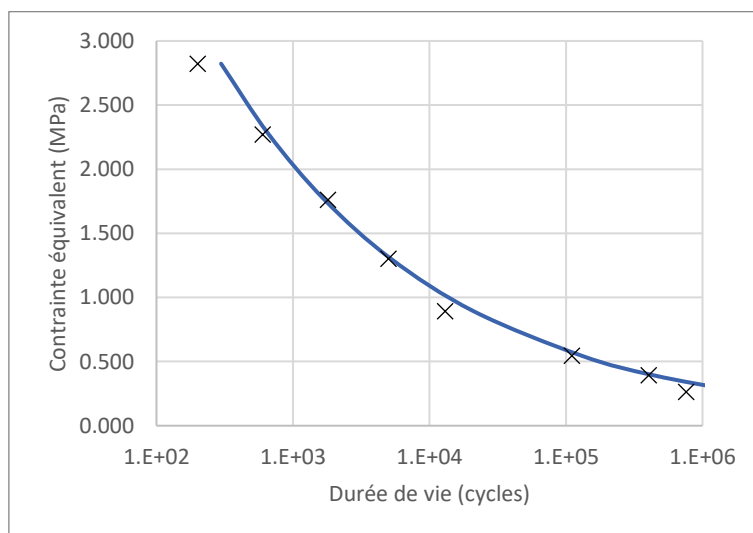
$$N_f = \frac{A}{1 + a} (\Delta\sigma_{eq})^{-a} \quad (II.24)$$

Où  $\Delta\sigma_{eq} = \sigma_{eq}(\lambda_{max}) - \sigma_{eq}(\lambda_{min})$

Afin d'évaluer la validité de cette hypothèse, les données fournies par (Ayoub et al. 2012) ont été utilisées. Tout d'abord, le comportement mécanique du matériau a été identifié à l'aide d'un modèle Néo-Hookéen, la densité de chaîne optimale étant  $n = 1.01 \times 10^{14} \text{mm}^{-3}$  (Fig.II.14a). Les paramètres  $A$  et  $a$  sont ensuite identifiés sur la courbe de Wöhler obtenue pour des chargements relaxants. Ils valent  $A = 6.5 \times 10^4 \text{MPa}$  et  $a = 3.7$  (Fig.II.14b)



*Fig.II.14a : Contrainte de Cauchy (MPa) vs. Élongation*  
 (marqueurs : données expérimentales (Ayoub et al. 2012), traits pleins : simulation)



*Fig.II.14a : Courbe de Wöhler obtenue pour les chargements relaxants*  
 (marqueurs : données expérimentales (Ayoub et al. 2012), traits pleins : (Eq.II.22))

En utilisant ces valeurs de paramètres, les estimations de durée de vie données par (Eq.II.24) sont comparées à leurs données expérimentales correspondantes. Comme clairement mis en évidence sur (Fig.II.15a) et (Fig.II.15b), l'utilisation de l'amplitude de contrainte équivalente  $\Delta\sigma_{eq}$  permet d'unifier les résultats expérimentaux obtenus avec différents rapports de charge autour de la courbe de Wöhler obtenue avec un rapport de charge nul.

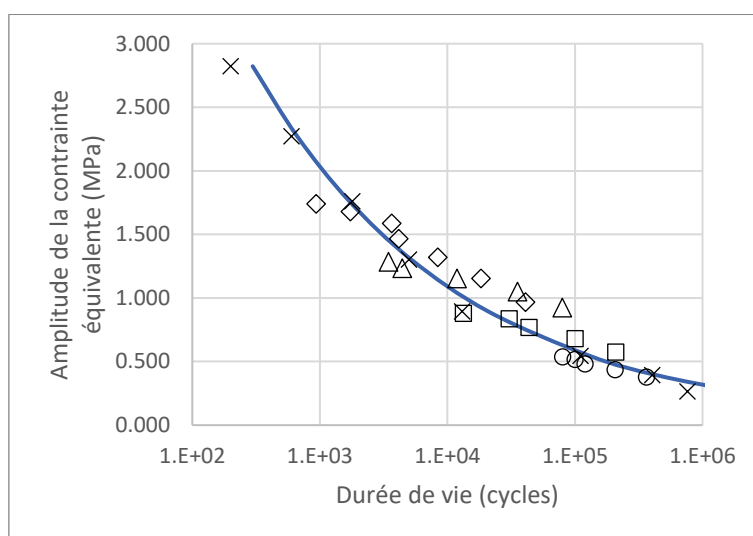


Fig.15a: Courbe de Wöhler obtenue pour les chargements relaxants et non relaxants (marqueurs : données expérimentales (Ayoub et al. 2012), traits pleins : (Eq.II.24))



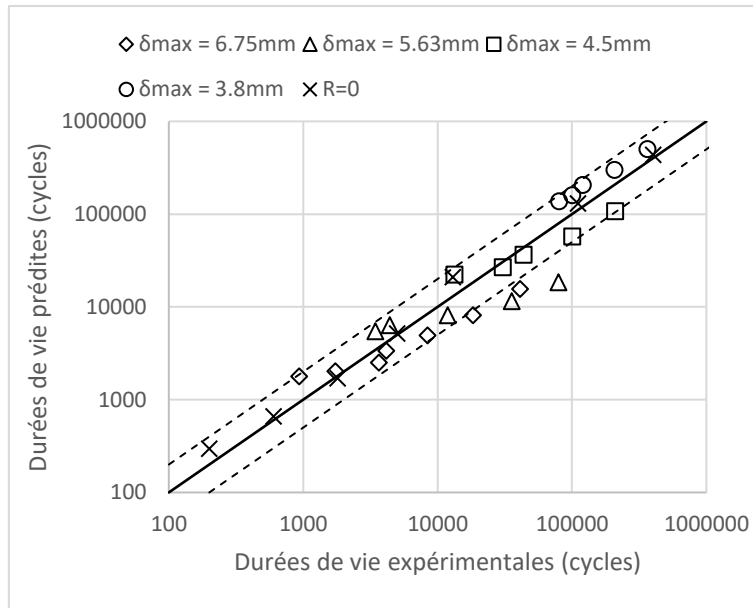


Fig.15b : Durées de vie prédites (Eq.II.24) vs. Durées de vie expérimentales (Ayoub et al. 2012)

Cependant, il est important de noter que cette méthode semble fonctionner pour des essais réalisés à chargement maximal constant en faisant varier uniquement le chargement minimal. Rien ne permet pour l’instant de prouver que cette méthode permet de prendre en compte le chargement moyen quel que soit le chargement maximal.

En effet, il est possible d’obtenir une amplitude de la contrainte équivalente identique pour deux essais mais avec des chargements maximaux différents. Dans les essais 4 et 21 (Tab.II.3), le chargement maximal est identique, les contraintes équivalentes sont très proches (respectivement 0.528 et 0.518 MPa), et les durées de vie sont également proches (respectivement 13.000 et 13.321 cycles). Cependant, dans les essais 4 et 20, bien que les contraintes équivalentes soient très proches (respectivement 0.528 et 0.535 MPa) les durées de vies, elles, sont totalement différentes (respectivement 13.000 et 79.455 cycles) car les chargements maximaux et minimaux sont eux aussi différents. On remarque également que l’essai 20 présente une amplitude de contrainte équivalente supérieure à l’essai 4 mais une durée de vie plus longue ce qui est un non-sens.

N° de l'essai	$\delta_{min}$ (mm)	$\delta_{max}$ (mm)	$\Delta\sigma_{eq}$ (MPa)	$R = \frac{\sigma_{min}}{\sigma_{max}}$	Durées de vie expérimentales
1	0	2.25	0.159	0	760000
2	0	2.81	0.236	0	402500
3	0	3.38	0.325	0	110500
4	0	4.5	0.528	0	13000
5	0	5.63	0.763	0	5000
6	0	6.75	1.021	0	1800
7	0	7.88	1.304	0	600
8	0	9.0	1.603	0	200
9	0.6	6.75	1.008	0.059	934
10	1.2	6.75	0.971	0.122	1735
11	1.8	6.75	0.915	0.191	3647
12	2.4	6.75	0.842	0.265	4141
13	3.0	6.75	0.756	0.346	8422
14	3.6	6.75	0.658	0.433	18284
15	4.2	6.75	0.551	0.527	40973
16	0.55	5.63	0.751	0.069	344
17	1.1	5.63	0.720	0.143	4414
18	1.65	5.63	0.672	0.222	11887
19	2.2	5.63	0.610	0.308	35484
20	2.75	5.63	0.535	0.400	79455
21	0.5	4.5	0.518	0.085	13321
22	1.0	4.5	0.492	0.174	30501
23	1.5	4.5	0.452	0.270	43626
24	2.0	4.5	0.399	0.372	100426
25	2.5	4.5	0.336	0.482	209037
26	0.35	3.8	0.393	0.073	80000
27	0.7	3.8	0.380	0.149	100200
28	1.05	3.8	3.359	0.228	120000
29	1.4	3.8	0.331	0.311	206713

30	1.75	3.8	0.297	0.398	363500
----	------	-----	-------	-------	--------

*Tab.II.3 : Données expérimentales issues de la littérature. (Ayoub et al. 2012)*

## II.4 Conclusion du chapitre II

L'objectif de ce chapitre était d'identifier un indicateur de durée de vie approprié tenant compte de la multiaxialité et du rapport de charge.

Dans un premier temps, en utilisant l'approche de la mécanique de l'endommagement continu, une expression explicite d'une contrainte équivalente faisant intervenir les paramètres structuraux du matériau a été développée. Cette quantité a pu prédire avec précision la durée de vie en fatigue des échantillons AE2 et AE42. Un paramètre du modèle, le coefficient  $A$  diffère entre les deux géométries comme déjà observé par (Ayoub et al. 2012) à cause de l'auto-échauffement qui est significativement plus élevé pour les éprouvettes AE42 plus épaisses. Le fait que seul ce coefficient change suggère qu'un simple décalage au moyen d'une équivalence temps-température pourrait rendre compte de l'impact de la température sur le comportement à la fatigue. D'autre part, cette contrainte équivalente est calculée à partir de la composante déviatorique du tenseur des contraintes. L'impact de la pression hydrostatique sur l'endommagement mécanique n'est donc pas pris en compte dans ce critère.

Dans un second temps, le rapport de charge a été pris en compte. Sur la base de l'hypothèse que le chemin de chargement a plus d'impact sur le processus d'endommagement que le chargement maximal lui-même, la différence de contrainte équivalente entre le chargement maximal et le chargement minimal  $\Delta\sigma_{eq}$  a été utilisée pour prédire la durée de vie d'une éprouvette AE2 en SBR sous divers rapports de charge. Un très bon accord est trouvé entre les résultats expérimentaux issus des travaux de (Ayoub et al. 2012) et les prédictions du modèle.

En conclusion, ce chapitre propose une formulation explicite et relativement simple de la contrainte équivalente nécessaire à la théorie de l'endommagement continu. Comme cette contrainte équivalente tend rapidement vers 0 pour les petites déformations, elle permet d'obtenir une bonne précision sur les prédictions faites pour les chargements les plus faibles, de sorte qu'aucun paramètre supplémentaire ne soit requis. En revanche, l'absence de paramètre

tenant compte de la limite d'endurance ne permet pas de prédire des durées de vie illimitée. De plus, ce travail a montré que la différence entre le chargement maximal et le chargement minimal est un critère permettant d'estimer la durée de vie des élastomères sous chargement non relaxant sans introduire de nouveau paramètre. Notons que cette méthode permet de prendre en compte le rapport de charge sans tenir compte de la contrainte moyenne ce qui mène, éventuellement, à des incohérences de prédictions lorsque plusieurs chargements présentent des amplitudes de contrainte équivalente identiques mais des chargements maximaux différents.

Cette approche s'avère donc être un outil intéressant ne nécessitant que 2 paramètres pour prédire la durée de vie en fatigue des élastomères sous chargements multiaxiaux relaxants et non-relaxants.

### III. Prédiction de la durée de vie d'élastomères vieillis par thermo-oxydation

#### III.1 Introduction

Le vieillissement thermo-oxydant des élastomères est une modification structurale au niveau macromoléculaire impliquant une superposition de post-réticulation et de scission de chaîne. Ces deux phénomènes peuvent être considérés comme un processus d'endommagement de la microstructure qui a un impact considérable sur le comportement en fatigue.

Quand un élastomère est exposé à des températures relativement élevées pendant de longues périodes en présence d'oxygène, il devient plus fragile, c'est-à-dire que ses propriétés mécaniques, notamment sa contrainte à rupture et sa déformation à rupture, diminuent à mesure que le temps d'exposition augmente. Plus la température est élevée, plus le matériau est fragilisé. Ce phénomène, connu sous le nom de vieillissement thermo-oxydatif (TOA : abréviation de l'anglais *thermo-oxidative ageing*), a été un sujet d'intérêt au cours des 20 dernières années. Une revue de la littérature concernant la modélisation de ce phénomène est donnée dans ce qui suit.

(Naït-Abdelaziz et al. 2012) et (Ben Hassine et al. 2014) ont proposé une approche originale basée sur la notion de défaut intrinsèque pour décrire le comportement à la rupture des élastomères sous sollicitations biaxiales et également pour prédire les contraintes et déformations ultimes en cas de vieillissement par thermo-oxydation.

Une autre approche micromécanique décrivant les effets du vieillissement induit par thermo-oxydation sur le comportement des élastomères vieillis a été développée par (Mohammadi et Dargazany 2019). Ce modèle se concentre sur les effets du vieillissement induit thermiquement sur la réponse mécanique quasi-statique des élastomères et satisfait l'inégalité de Clausius-Planck qui le rend physiquement cohérent. Cependant, les auteurs ne mentionnent pas la capacité de prédiction concernant les propriétés de rupture et de fatigue.

D'autre part, (Nait Abdelaziz et al. 2019) ont trouvé que, pour les élastomères présentant une post-réticulation induite par le vieillissement thermique, la contrainte à la rupture d'un matériau

vieilli évolue comme la masse molaire moyenne entre deux nœuds de réticulations consécutifs (Eq.III.1), et s'exprime par :

$$\frac{\sigma_r}{\sigma_{r_0}} = \frac{M_c - M_{cy}}{M_{c_0} - M_{cy}} \quad (III.1)$$

Où  $\sigma_r$  et  $\sigma_{r_0}$  sont les contraintes à rupture du matériau vieilli et non vieilli respectivement,  $M_c$  et  $M_{c_0}$  sont les masses molaires moyennes entre deux réticulations consécutives du matériau vieilli et non vieilli respectivement et  $M_{cy}$  est une valeur seuil de masse molaire en deçà de laquelle le matériau est considéré entièrement dégradé.

La masse molaire moyenne est déterminée expérimentalement à l'aide d'une technique de gonflement. De plus, une équivalence temps-température utilisant la formule de William-Landel-Ferry est appliquée pour trouver une courbe maîtresse de la contrainte à la rupture en fonction du temps réduit. Un très bon accord est trouvé entre le modèle et les données expérimentales.

Une autre approche intéressante a été développée par (Naït-Abdelaziz et al. 2012) et, très récemment par (Kadri et al. 2022), sur la base des travaux de (K. Y. Volokh 2007; 2010; K. Volokh 2016; K. Y. Volokh 2017). En général, les lois de comportement hyperélastiques classiques ne reproduisent pas la chute de contrainte résultant de la rupture du matériau. Le concept de limiteur d'énergie consiste à donner une valeur seuil de l'énergie de déformation emmagasinée dans le matériau sollicité. En introduisant ce limiteur d'énergie, il est possible de décrire toute la courbe contrainte-déformation, y compris la rupture. La contrainte à rupture est la valeur maximale de toute l'évolution de la contrainte donnée par l'équation (Eq.III.2) :

$$\sigma = 2J^{-1} \mathbf{F} \frac{\partial W}{\partial \mathbf{C}} \mathbf{F}^t e^{-\left(\frac{W}{\phi}\right)^p} \quad (III.2)$$

Où  $\mathbf{F}$  est le tenseur du gradient de déformation,  $\mathbf{C}$  est le tenseur de dilatation de Cauchy-Green,  $W$  est une densité d'énergie de déformation arbitraire,  $\phi$  est le limiteur d'énergie qui représente la quantité d'énergie que le matériau est capable de stocker avant de se rompre et  $p$  est un paramètre supplémentaire permettant de contrôler la vitesse de la chute de contrainte.

(Naït-Abdelaziz et al. 2012) et (Kadri et al. 2022) ont étendu cette approche à la prédiction de contrainte à rupture d'un EPDM vieilli en rendant le limiteur d'énergie  $\phi$  dépendant des conditions de vieillissement. Ils ont postulé que le limiteur d'énergie évolue comme la masse

moltaire moyenne entre deux réticulations consécutives (Eq.III.3). Le modèle reproduit très bien les données expérimentales pour une large gamme de conditions de vieillissement.

$$\frac{\phi}{\phi_0} = \frac{M_c - M_{cy}}{M_{c_0} - M_{cy}} \quad (III.3)$$

Où  $\phi$  et  $\phi_0$  sont les limiteurs d'énergie du matériau vieilli et non vieilli respectivement.

Par ailleurs, l'impact du TOA sur la durée de vie en fatigue est faiblement documentée. Les études expérimentales de (Woo et al. 2009; Charrier et al. 2011; Neuhaus et al. 2017) ont toutes relié le TOA à une réduction de la durée de vie en fatigue. Plus précisément, (Charrier et al. 2011; Neuhaus et al. 2017) ont montré que ce phénomène a une influence complexe sur le comportement en fatigue. Lorsqu'elle est exposée à des températures élevées, la structure du réseau se dégrade de manière irréversible. Cela entraîne non seulement une réduction de la durée de vie en fatigue mais peut également modifier la pente de la courbe de Wöhler, rendant le matériau vieilli disproportionnellement sensible aux amplitudes élevées. Les auteurs ont tenté de modéliser ce phénomène à l'aide d'une équivalence temps-température au moyen d'une loi d'Arrhénius. Malheureusement, il a été montré que l'utilisation d'une seule énergie d'activation ne peut donner qu'une estimation grossière de la durée de vie en fatigue car sa valeur dépend à la fois de la température et du niveau de charge. En outre, l'étude de (Woo et al. 2009) ne traite que d'une seule température de vieillissement (70°C) ce qui n'est pas suffisant pour tirer des conclusions sur ce phénomène complexe.

Plus récemment, une relation entre le réseau macromoléculaire du polychloroprène (CR) non-chargé, et ses propriétés de fatigue a été mise en évidence par (Gac et al. 2021). Pour la première fois, dans le cas d'élastomères non chargés, l'auteur a montré qu'une augmentation de la densité de réticulation entraîne une diminution de la durée de vie en fatigue. Les auteurs proposent une relation empirique entre les deux quantités susmentionnées et ne mentionnent aucune capacité prédictive d'une telle modélisation.

Finalement, l'impact du rayonnement UV sur la durée de vie en fatigue des polymères semi-cristallins a été étudié par (Lamnii et al. 2021). Les auteurs ont relié l'énergie dissipée à la durée de vie avec un modèle d'Ostrohmeyer modifié (Eq.III.4) :

$$W_D - W_{th}(t) = ae^{-b \ln(N_f)} \quad (III.4)$$

Où  $W_D$  est l'énergie dissipée,  $W_{th}$  est une valeur seuil de  $W_D$ ,  $t$  est le temps d'exposition au rayonnement UV,  $N_f$  est la durée de vie en fatigue et  $a$  et  $b$  sont des paramètres à identifier.

L'évolution de  $W_{th}$  en fonction du temps d'exposition est modélisée par une courbe sigmoïde. Le terme de droite de l'équation (Eq.III.4) peut-être modélisé par une courbe maîtresse afin d'unifier l'ensemble des données obtenues pour différents temps d'exposition. Le modèle permet une prédiction précise des durées de vie. Cependant, on peut noter que les paramètres  $a$  et  $b$  ne sont pas liés à la microstructure du matériau ce qui constitue clairement une faiblesse du modèle.

En résumé, bien que le vieillissement thermo-oxydant (TOA) ait un effet considérable sur la durée de vie en fatigue, à notre connaissance, seulement quelques tentatives de mise en évidence de son impact a été réalisée et les auteurs n'ont pas proposé une manière satisfaisante de prédire la durée de vie des élastomères vieillis. L'impact du vieillissement radiatif par UV sur la durée de vie en fatigue a été étudié mais uniquement pour les polymères semi-cristallins et le modèle ne fait pas intervenir les paramètres structuraux du matériau. En conclusion, aucun modèle prédictif prenant en compte à la fois les dommages mécaniques et le vieillissement physico-chimique n'a été développé concernant les élastomères.

Dans ce chapitre deux modèles sont proposés.

Dans un premier modèle, dit « faiblement couplé », la variable d'endommagement  $D$  est discriminée en une composante d'endommagement mécanique notée  $D_m$  et une composante de vieillissement notée  $D_a$ . La première est une quantification des dommages mécaniques induits par le chargement mécanique comme proposé dans le second chapitre de ce manuscrit. Le second est une quantification de l'impact du vieillissement sur le comportement en fatigue du matériau impliquant une estimation de la contrainte à rupture en fonction des conditions de vieillissement au moyen d'une approche limiteur d'énergie telle que proposée par (Naït-Abdelaziz et al. 2012) et (Kadri et al. 2022). Ce modèle faiblement couplé offre de bonnes prédictions pour la fatigue polycyclique mais pas pour des durées de vie plus courtes.

Par conséquent, un deuxième modèle, dit « fortement couplé », a ensuite été développé. Une relation entre les paramètres de la théorie de l'endommagement continu et ceux de la microstructure est établie. De cette manière, les modifications structurelles ont un impact direct sur le comportement en fatigue. Un très bon accord est trouvé entre les expériences et les



prédictions du modèle pour une large gamme de conditions de vieillissement. La capacité prédictive du modèle est démontrée en le testant sur trois autres conditions de vieillissement impliquant des températures qui ne sont pas utilisées pour l'ajustement des paramètres.

Le chapitre est organisé de la manière suivante :

La section 1 décrit la procédure expérimentale et les principaux résultats.

Dans la section 2, le comportement mécanique est modélisé quelles que soient les conditions de vieillissement.

Dans la section 3, les dommages induits par TOA sont quantifiés et un modèle faiblement couplé est proposé.

La section 4 aborde la construction du modèle fortement couplé en développant une relation entre les paramètres de la théorie de l'endommagement continu et ceux de la microstructure.

Dans la section 5, nous présentons les résultats et les capacités prédictives du modèle.

### **III.2 Procédure expérimentale et résultats**

Des essais de fatigue en traction uniaxiale sur des éprouvettes haltères vieilles et non vieilles ont été réalisés pour différents chargements. Le signal périodique utilisé pour la consigne de chargement cyclique est triangulaire. La figure (Fig.III.1) présente la géométrie de l'échantillon. Les conditions de vieillissement et les détails des chargements sont reportés dans les tableaux (Tab.III.1) et (Tab.III.2). Notons que les fréquences de sollicitations sont choisies de sorte que la pente du signal triangulaire, i.e., la vitesse de sollicitation, soit constante dans tous les essais.

Par souci de simplicité concernant les graphiques, chaque condition de vieillissement correspond à une couleur sur les graphiques.

Les expériences ont été réalisées sur un dispositif de fatigue uniaxiale Instron Electropuls 3000® équipé d'une cellule de force de 1 kN et le vieillissement accéléré a été réalisé dans une étuve FranceEtuve XU490®. Des photographies des 2 dispositifs cités sont données en Annexe 2.

L'éprouvette haltère étant très fine, la rupture se produit seulement quelques cycles après l'apparition d'une microfissure. Ainsi, le critère expérimental de fin de vie est la rupture complète de l'éprouvette.

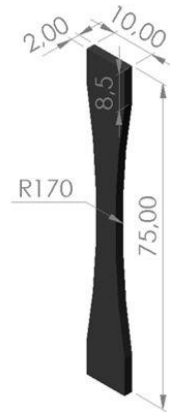


Fig.III.1 : Éprouvette haltère utilisée pour le vieillissement accéléré et les essais de fatigue (dimensions en mm)

Température (°C)	Temps d'exposition (h)	Code test	Code couleur
		UA (Unaged)	
110	72	A1	
	120	A2	
	168	A3	
90	168	B1	
	336	B2	
	504	B3	

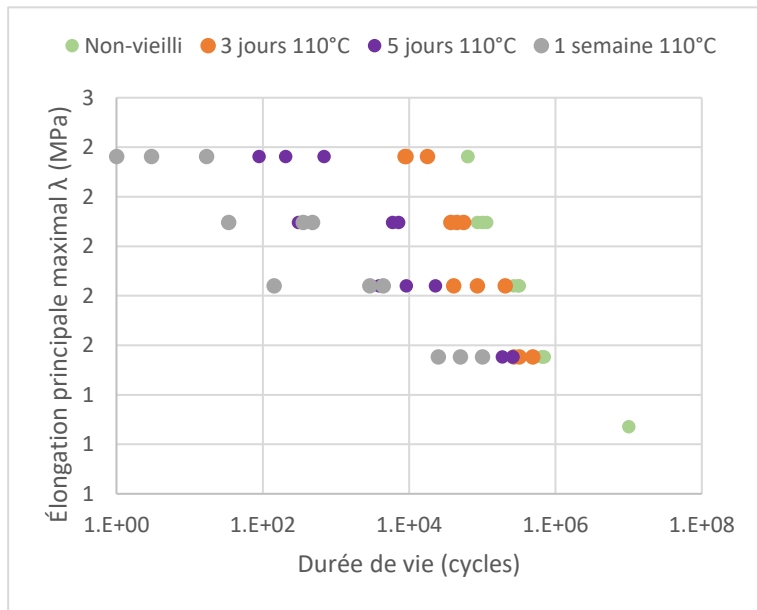
Tab.III.1: Conditions de vieillissement

Déplacement maximal (mm)	Fréquence (Hz)	Nombre d'essai pour chaque condition de vieillessement
58	2	3
46.4	2.5	3
34.8	3.333	3
23.2	5	3
11.6	10	<i>Seulement 1 pour UA</i>

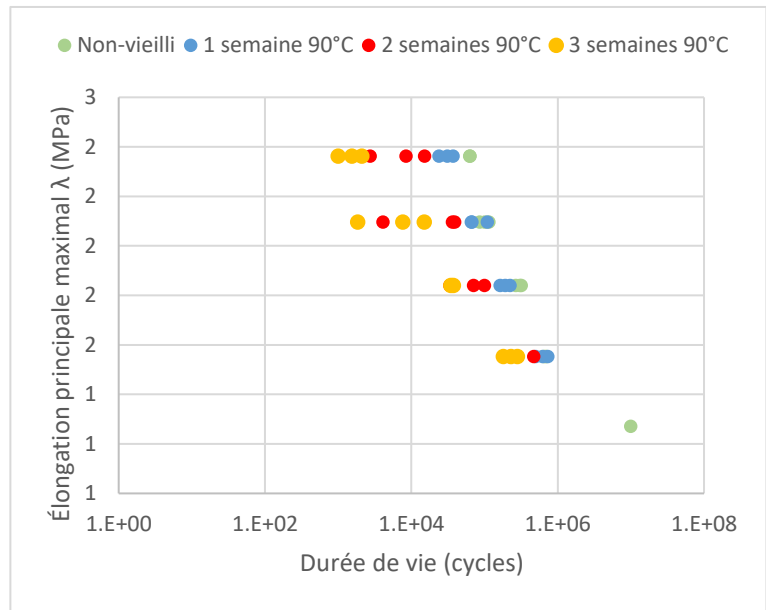
*Tab.III.2: Chargement mécanique appliqué aux éprouvettes vieilles*

Les courbes de Wöhler expérimentales obtenues pour le matériau vieilli sont affichées sur la figure (Fig.III.2). L'impact du vieillissement sur le comportement en fatigue est bien mis en évidence. Pour une température de vieillissement donnée, plus le temps d'exposition est long, plus la durée de vie est courte. Réciproquement, pour une durée de vieillissement donnée, plus la température est élevée, plus la durée de vie est courte (*cf.* essais A3 et B1). De plus, il semble que la pente de la courbe soit également impactée. Plus la condition de vieillissement est sévère, plus la pente de la courbe de Wöhler est faible. Des résultats similaires ont été obtenus dans la littérature (Charrier et al. 2011; Neuhaus et al. 2017). Par conséquent, une simple translation de la courbe de Wöhler par l'intermédiaire d'une équivalence temps-température ne semble pas pertinente pour prendre en compte les effets du vieillissement sur la durée de vie.

Par conséquent, nous allons développer dans un premier temps un modèle basé sur la théorie de l'endommagement en supposant un découplage entre l'endommagement mécanique et l'endommagement physico-chimique



(a)



(b)

Fig.III.2: Courbes de Wöhler obtenue pour le matériau vieilli  
 Température de vieillissement : (a) 110°C et (b) 90°C

### III.3 Modélisation du comportement mécanique du matériau vieilli

Rappelons que nous avons fait le choix de décrire le comportement mécanique du matériau non-endommagé et non-vieilli par le modèle de (Gent 1996) :

$$W(I_1) = -\mu J_m \cdot \ln\left(1 - \frac{I_1 - 3}{J_m}\right) \quad (III.5)$$

Rappelons également que les paramètres  $\mu$  et  $J_m$  sont liés à la microstructure du matériau par les relations suivantes (Horgan et Saccomandi 2002) :

$$\mu = nkT \quad (III.6.1)$$

$$J_m = 3(N - 1) \quad (III.6.2)$$

Où  $n$  est la densité de chaîne de la matrice élastomère et  $N$  est le nombre moyen de monomère par chaîne.

Les paramètres optimaux pour le matériau vierge sont  $n = 4.32 \times 10^{14} m^{-3}$  et  $N = 14$

Comme évoqués précédemment, des essais de traction uniaxiale sur les éprouvettes haltères vieilles ont été menés afin de mesurer l'impact du TOA sur le comportement mécanique monotone. L'ajustement du modèle de (Gent 1996) sur les courbes expérimentales a permis de déterminer l'évolution de la microstructure. En vertu du principe de conservation de la masse, le nombre total de monomères doit rester invariant. Ainsi, une augmentation de la densité de chaîne entraîne une diminution de la longueur des chaînes, c'est-à-dire que le nombre moyen de monomères par chaîne  $N$  doit diminuer. Cet équilibre entre la densité de chaîne et la longueur de chaîne est assuré par l'équation (Eq.III.7) (Boyce, 1986; Arruda, *et al.*, 1995; Zaïri *et al.*, 2010).

$$nN = n_0N_0 = \text{constant} \quad (\text{III.7})$$

Ainsi, seul un des deux paramètres doit être ajusté, le second est déterminé par l'équation (Eq.III.7). Nous choisissons arbitrairement d'ajuster la densité de chaînes et de calculer la longueur moyenne. Le tableau (Tab.III.3) récapitule les données correspondantes.

Température(°C)	Temps d'exposition (h)	$n$ ( $\times 10^{14} mm^{-3}$ )	$N$
Non-vieilli		4.32	14
110	3	4.57	13.23
	24	4.82	12.54
	72	5.19	11.65
	120	5.69	10.63
	168	6.43	9.41
90	24	4.69	12.90
	48	4.69	12.90
	96	4.95	12.22
	168	5.20	11.63
	336	5.32	11.35
	504	6.20	9.75

Tab.III.3 : Paramètres structuraux du matériau vieilli

Afin de décrire le comportement mécanique quelles que soient les conditions de vieillissement, une équivalence temps-température utilisant la loi d'Arrhenius est utilisée pour calculer un facteur de glissement  $a_T$  :

$$a_T = e^{-\frac{E_a}{R}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)} \quad (III.8)$$

Où  $E_a$  est l'énergie d'activation,  $R$  est la constante universelle des gaz parfaits,  $T$  est la température de vieillissement et  $T_0$  est la température de référence.

Le temps réduit  $t_r$  est calculé comme suit :

$$t_r = a_T \times t \quad (III.9)$$

La figure (Fig.III.3) illustre l'évolution de la densité de chaîne en fonction du temps réduit. L'évolution semble être linéaire. On écrira alors :

$$n(t_r) = n_0 + \dot{n} \cdot t_r \quad (III.10)$$

Où  $n_0$  est la densité de chaîne du matériau non vieilli et  $\dot{n}$  est le coefficient d'évolution de la densité de chaîne par rapport au temps réduit.

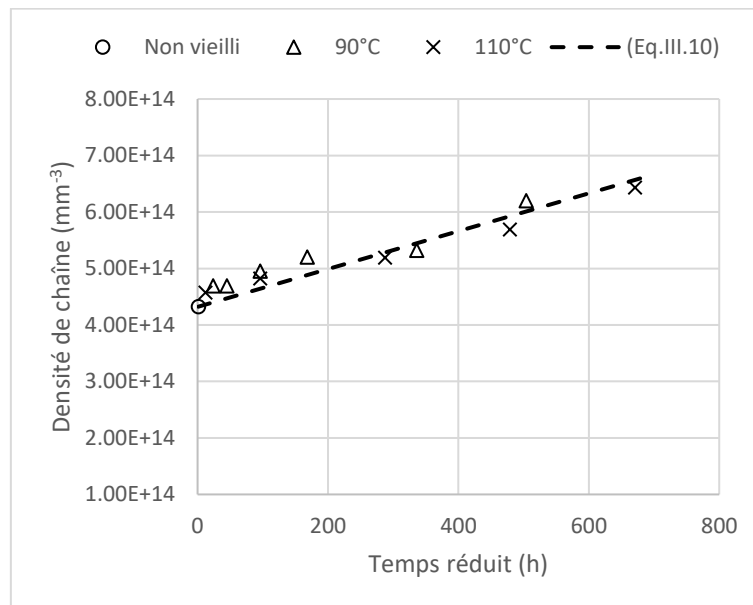
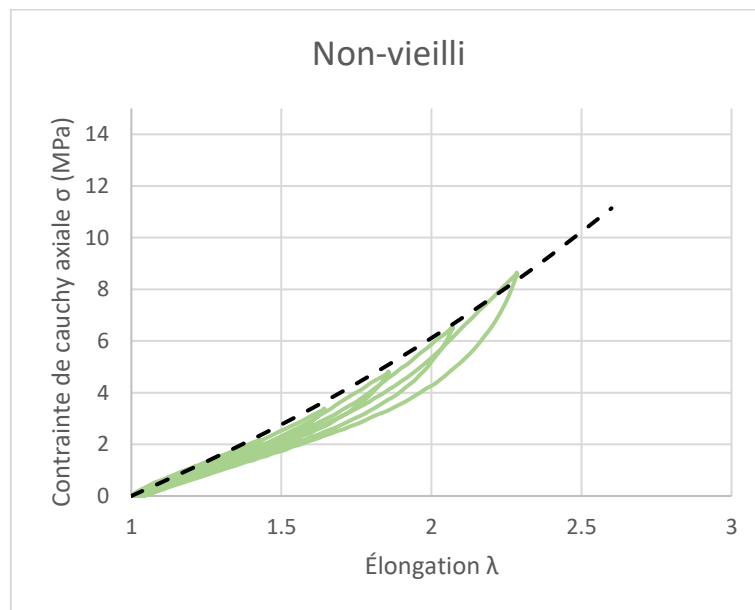
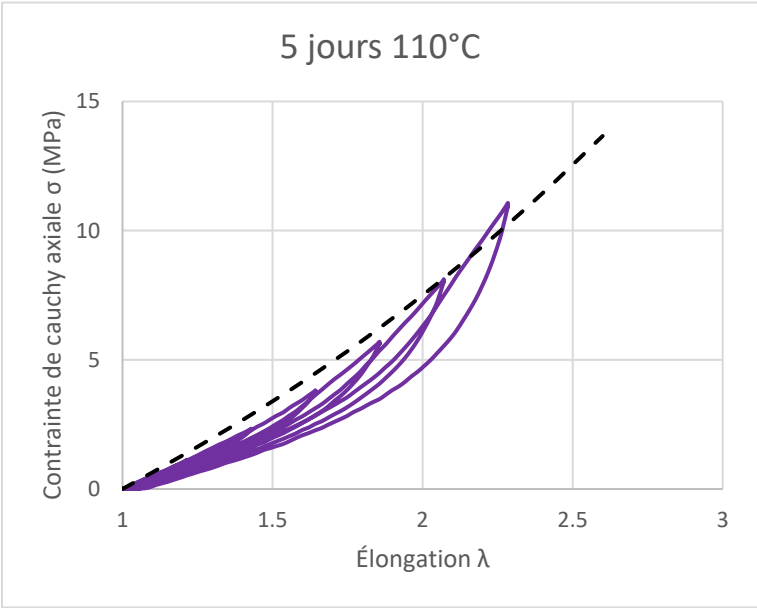


Fig.III.3 : Densité de chaînes ( $m^{-3}$ ) vs. Temps réduit (h)  
(marqueurs : données expérimentales, ligne discontinue : (Eq.III.10))

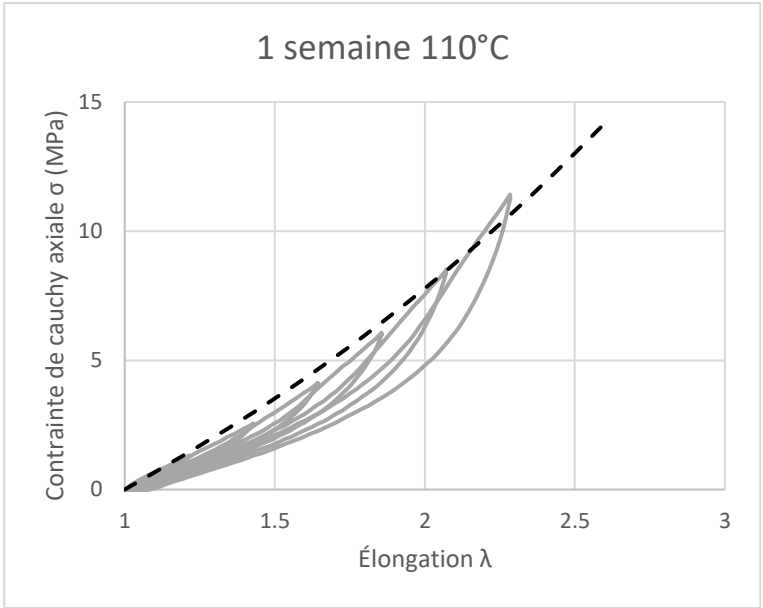
La figure (Fig.III.4) montre quelques exemples de courbes « contrainte-élongation » du matériau vieilli. Les courbes en couleurs correspondent aux données expérimentales et les courbes noires en traits discontinus correspondent à la prédiction obtenue à l'aide des équations (Eq.III.5) à (Eq.III.10). On peut constater que la modélisation proposée permet de décrire le comportement mécanique quelles que soient les conditions de vieillissement.



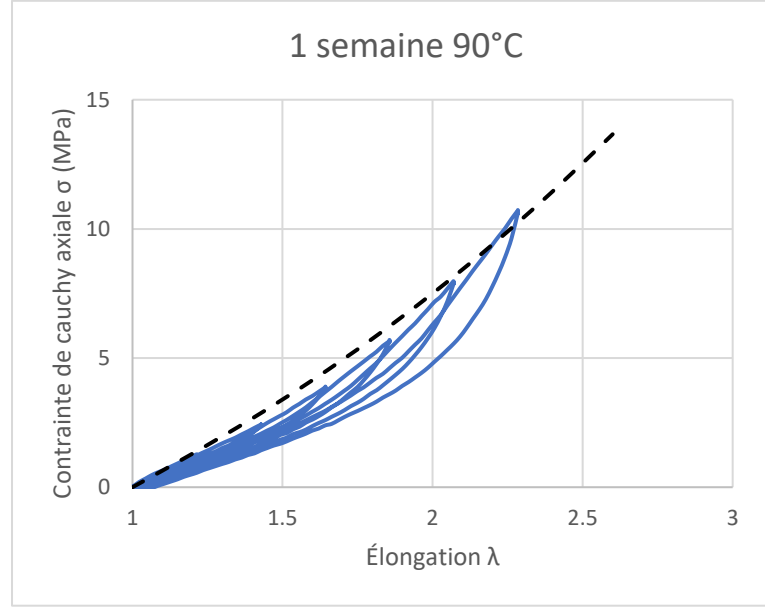
(a)



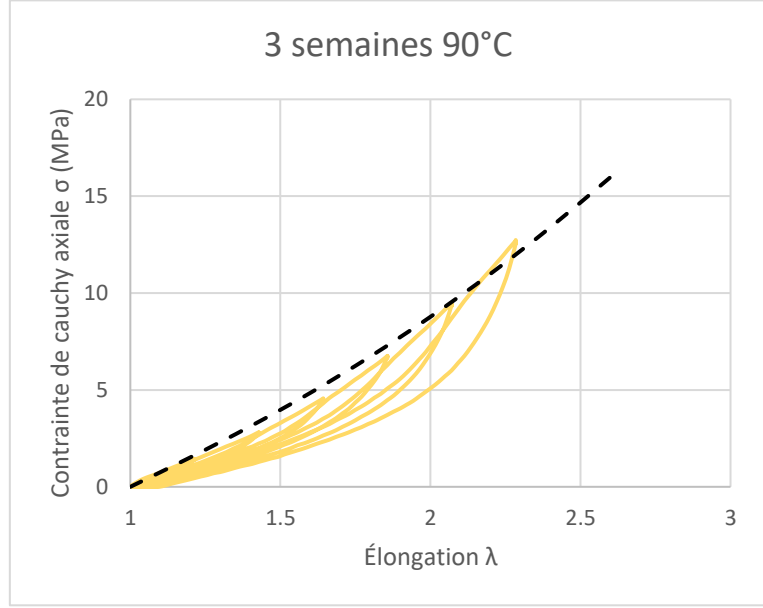
(b)



(c)



(d)



(e)

Fig.III.4 : Courbe contrainte-déformation obtenue pour différentes conditions de vieillissement.  
 (Courbes colorées : données expérimentales, courbes discontinues : modèle)



### III.3.1 Choix d'un critère de durée de vie

Le critère de durée de vie choisi est la contrainte équivalente développée dans le paragraphe II.2.4 de ce manuscrit :

$$\sigma_{eq} = nkT \frac{(2\lambda^2 - \lambda^{2m} - \lambda^{-2(m+1)})(\lambda + m\lambda^{2m-1} - (m+1)\lambda^{-2m-3})}{(2\lambda - m\lambda^{2m-1} + (m+1)\lambda^{-2m-3})}$$

Où  $n$  est la densité de chaîne de la matrice élastomère,  $k$  est la constante de Boltzmann,  $T$  est la température absolue,  $\lambda$  est l'élongation principale maximale et  $m$  est un paramètre de multiaxialité défini dans le tenseur gradient de déformation écrit dans les directions principales et dans l'hypothèse d'incompressibilité :

$$F = \text{diag}(\lambda, \lambda^m, \lambda^{-(m+1)})$$

Dans le cas présent, l'éprouvette haltère est en état de traction uniaxiale, i.e.,  $m = -\frac{1}{2}$ . La contrainte équivalente prend donc la forme suivante :

$$\sigma_{eq} = 2nkT \frac{(\lambda^2 - \lambda^{-1})(\lambda - \lambda^{-2})}{(2\lambda - \lambda^{-2})} \quad (III.13)$$

Rappelons que l'évolution de la variable d'endommagement s'écrit,

$$D = 1 - \left( 1 - (1+a) \frac{(\sigma_{eq})^a}{A} N \right)^{\frac{1}{1+a}} \quad (III.14)$$

Et que la fin de vie correspond au matériau complètement endommagé, i.e.,  $D = 1$  et  $N = N_f$  :

$$N_f = \frac{A}{1+a} \cdot (\sigma_{eq})^{-a} \quad (III.14.1)$$

Où  $A$  et  $a$  sont des paramètres à identifier.

### III.3.2 Prédiction par quantification du dommage induit par le vieillissement

Le vieillissement thermo-oxydatif, rappelons-le, est un processus de modification structurale au niveau moléculaire impliquant une compétition de 2 mécanismes, à savoir, la post-

réticulation et la scission de chaîne. Ces deux phénomènes peuvent être considérés comme un processus d'endommagement de la microstructure. Dans la théorie de l'endommagement continu, la variable d'endommagement  $D$  représente l'endommagement mécanique au sein du matériau. Pour tenir compte non seulement de l'endommagement mécanique mais aussi du vieillissement thermo-oxydatif, la variable d'endommagement  $D$  peut être décomposée dans un premier temps sous forme additive de deux composantes. La première est  $D_m$  qui représente l'endommagement mécanique décrit par l'équation (Eq.III.14) et la seconde est  $D_a$  qui représente l'endommagement induit par le vieillissement thermo-oxydatif. En première hypothèse, la relation entre  $D$ ,  $D_m$  et  $D_a$  est supposée suivre un principe de superposition :

$$D = D_m + D_a \quad (III.15)$$

En combinant les équations (Eq.III.14) et (Eq.III.15), on obtient :

$$D = 1 - \left( 1 - (1 + a) \frac{(\sigma_{eq})^a}{A} N \right)^{\frac{1}{1+a}} + D_a \quad (III.15.1)$$

Puisque les échantillons sont d'abord vieillis puis testés en fatigue,  $D_a$  est une valeur constante pour une condition de vieillissement donnée. En revanche, l'endommagement mécanique  $D_m$  croît jusqu'à ce que la somme  $D = D_a + D_m$  atteigne 1 ce qui correspond à un matériau entièrement endommagé ( $N = N_f$ ). Ecrit sous cette forme, le vieillissement réduit implicitement la durée de vie comme observé expérimentalement. Par conséquent, une expression explicite de la durée de vie en fatigue est :

$$N_f = \frac{A(1 - (D_a)^{1+a})}{1 + a} \cdot (\sigma_{eq})^{-a} \quad (III.16)$$

$D_a$  est une quantification des dommages induits par le vieillissement thermo-oxydatif. La littérature a souligné l'impact du vieillissement sur les propriétés de rupture d'un matériau : plus les conditions de vieillissement sont sévères, plus les propriétés de rupture sont faibles car la microstructure du matériau est fragilisée (Clavreul, 1997; Assink, Gillen and Sanderson, 2002; Rajeev *et al.*, 2003; Rivaton *et al.*, 2005; Colin *et al.*, 2007a, 2007b; Naït-Abdelaziz *et al.*, 2012; Ben Hassine *et al.*, 2014; Nait Abdelaziz *et al.*, 2019; Kadri *et al.*, 2022). Le comportement en fatigue du matériau vieilli dépend également de l'évolution de la microstructure en fonction des conditions de vieillissement. Par conséquent, dans le cas de chargements monotones, la variable d'endommagement physico-chimique  $D_a$  et la contrainte à rupture du matériau sont liées. La

relation entre ces deux quantités peut prendre la forme ci-après pour assurer l'évolution de  $D_a$  entre 0 pour le matériau non-vieilli et 1 pour le matériau complètement vieilli :

$$D_a = 1 - \frac{\sigma_r}{\sigma_{r_0}} \quad (III.17)$$

Où  $\sigma_r$  et  $\sigma_{r_0}$  sont respectivement les contraintes à rupture du matériau vieilli et non vieilli. En faisant l'hypothèse que la variable d'endommagement en fatigue suit la même évolution qu'en chargement monotone, l'évolution de  $D_a$  permet de prédire des durées de vie décroissantes à mesure que les conditions de vieillissement se durcissent, i.e., à mesure que la contrainte à rupture décroît.

Afin d'estimer la variable de vieillissement  $D_a$ , la contrainte à la rupture du matériau vieilli est évaluée au moyen d'une approche limiteur d'énergie telle que proposée par (Nait Abdelaziz et al. 2019) et (Kadri et al. 2022). La contrainte équivalente utilise la densité d'énergie de déformation Néo-Hookéenne pour décrire le comportement en fatigue. Afin de rester cohérent avec cette dernière, le comportement à rupture du matériau sera lui aussi décrit par le modèle Néo-Hookéen :

$$W = \frac{nkt}{2} (\lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 - 3)$$

Rappelons que cette forme de densité d'énergie de déformation est équivalente à celle de Gent (Eq.III.5) pour les petites déformations (Voir Annexe 1). Par conséquent la densité de chaîne reste la même  $n = 4.32 \times 10^{14} m^{-3}$ .

Le concept de limiteur d'énergie est donné par l'équation (Eq.III.2). En utilisant la densité d'énergie de déformation Néo-Hookéenne, on obtient la forme suivante de l'évolution de la contrainte :

$$\sigma = nkT \left( \lambda^2 - \frac{1}{\lambda} \right) . e^{-\left(\frac{W}{\phi}\right)^p} \quad (III.18)$$

Comme proposé par (Nait Abdelaziz et al. 2019) et (Kadri et al. 2022), dans le cas où le mécanisme de vieillissement prépondérant est la post-réticulation, le limiteur d'énergie  $\phi$  évolue comme la masse molaire moyenne entre deux réticulations consécutives (Eq.III.3). Sachant que  $nkT = \frac{\rho RT}{M_c}$  et que  $nN = n_0 N_0$ , L'équation (Eq.III.3) peut également s'écrire en termes de longueur de chaîne moyenne :

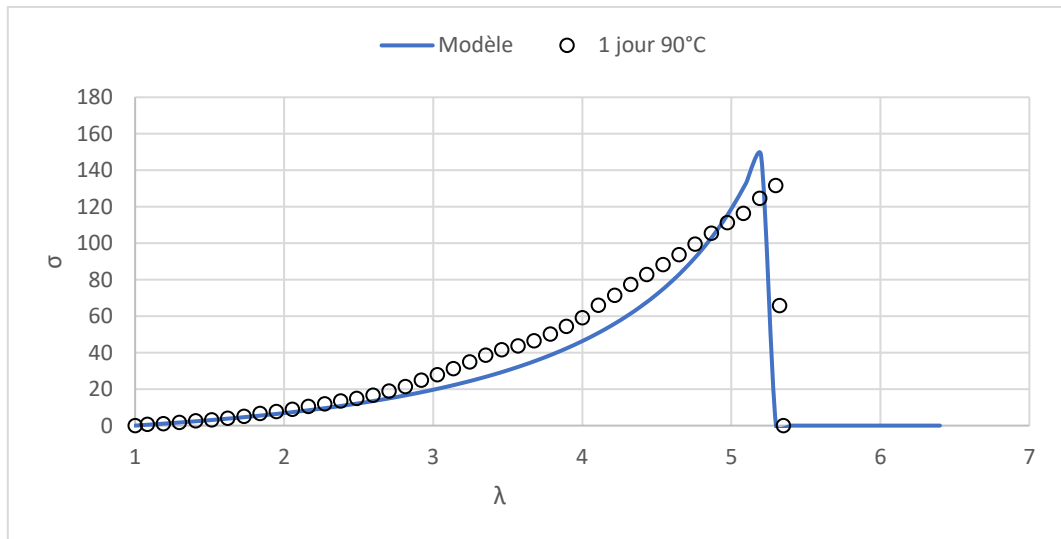
$$\frac{\phi}{\phi_0} = \frac{N - N_y}{N_0 - N_y} \quad (III.19)$$

Où  $\phi$  et  $\phi_0$  sont respectivement le limiteur d'énergie du matériau vieilli et non vieilli.  $N$  et  $N_0$  sont respectivement les longueurs moyennes des chaînes du matériau vieilli et non vieilli et  $N_y$  est une valeur de longueur de chaîne pour laquelle le matériau est supposé être entièrement vieilli.

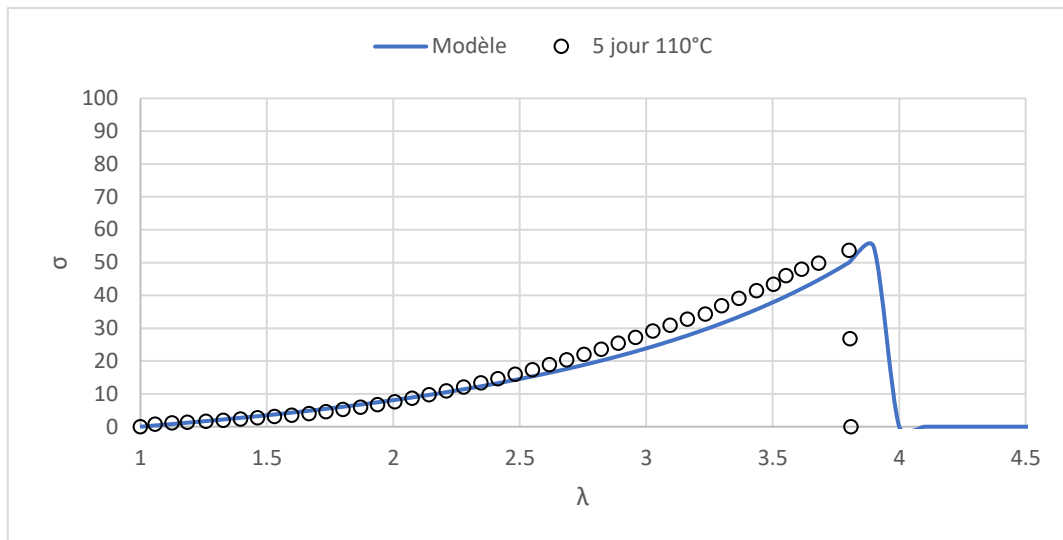
La contrainte de rupture pour un temps réduit donné est la valeur maximale de l'ensemble de l'évolution de la contrainte

$$\sigma_r(t_r) = \max \left\{ nkT \left( \lambda^2 - \frac{1}{\lambda} \right) \cdot e^{-\left(\frac{W}{\phi}\right)^p} \right\} \quad (III.20)$$

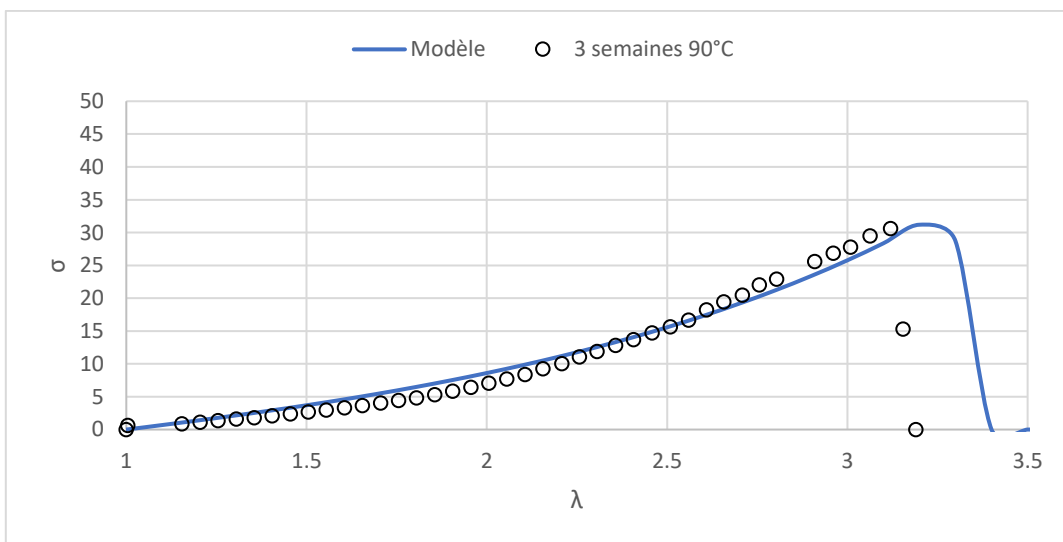
La figure (Fig.III.5) montre quelques exemples de courbes contrainte-élongation jusqu'à rupture de l'éprouvette pour différentes conditions de vieillissement. Les marqueurs représentent les données expérimentales et les traits pleins correspondent à la modélisation obtenue à l'aide des équations (Eq.III.18) et (Eq.III.19).



(a)



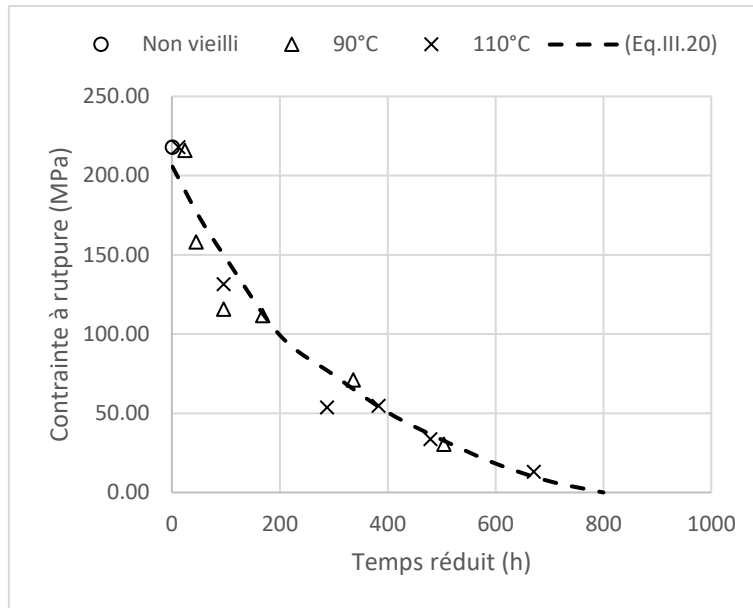
(b)



(c)

Fig.III.5 : Courbes contrainte-déformation jusqu'à rupture pour différentes conditions de vieillissement.  
(Marqueurs : données expérimentales, traits pleins : simulations)

La figure (Fig.III.6) montre l'évolution de la contrainte à la rupture en fonction du temps réduit. On peut constater qu'un bon accord est trouvé entre les expériences et la courbe maîtresse, sachant que nous avons repris la même valeur de l'énergie d'activation pour le calcul du facteur de glissement.



*Fig.III.6 : Contrainte à rupture (MPa) vs. Temps réduit (h)  
(marqueurs : données expérimentales, ligne discontinue : simulation)*

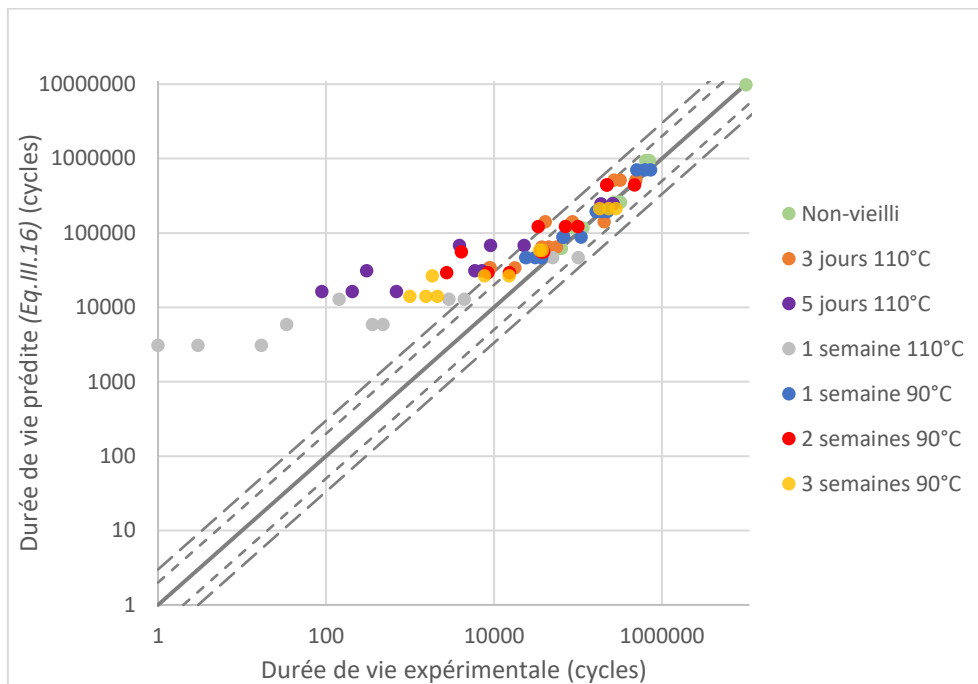
Une estimation de la durée de vie en fatigue du matériau vieilli est donc possible en utilisant les équations (Eq.III.16), (Eq.III.17), (Eq.III.19) et (Eq.III.20). Notons que pour chaque condition de vieillissement, la contrainte équivalente est calculée avec la densité de chaînes du matériau vieilli évaluée grâce à l'équation (Eq.III.10). Tous les paramètres du modèle sont résumés dans le tableau (Tab.III.4). L'énergie d'activation obtenue est de 80kJ/mol. Cette valeur est en adéquation avec la littérature. (Charrier et al. 2011; Neuhaus et al. 2017; Gac et al. 2021) ont trouvé des valeurs entre 60 et 130 kJ/mol.

Vieillessement thermo- oxydant	$E_a(kJ)$	80
	$T_0(^{\circ}C)$	90
	$n_0(mm^{-3})$	$4.32 \times 10^{14}$
	$\dot{n}(mm^{-3}.s^{-1})$	$3.35 \times 10^{11}$
	$n_y(mm^{-3})$	$6.7 \times 10^{14}$
	$\phi_0(MPa)$	48
	$p$	95
Endommagement mécanique	$A(MPa)$	$1.0 \times 10^7$
	$a$	1.95

*Tab.III.4 : Paramètre du modèle de prédiction de durée de vie par quantification du dommage induit par le vieillissement*

La (Fig.III.7) compare les prédictions du modèle aux valeurs expérimentales. Un très bon accord est observé pour les durées de vie les plus longues ( $10^4 < N_f < 10^7$ ). Cependant, une forte surestimation du modèle est constatée pour les durées de vies les plus courtes ( $1 < N_f < 10^4$ ). Cela peut s'expliquer par le fait que l'équation (Eq.III.16) ne diffère de la relation (Eq.III.14) que par le facteur  $(1 - (D_a)^{1+a})$ . Même si ce terme évolue de manière non linéaire avec le temps réduit, il ne se traduit que par un déplacement de la courbe de Wöhler vers des durées de vie plus courtes alors que les expériences ont montré que la pente de la courbe de Wöhler s'adoucit avec le vieillissement. D'un point de vue physique, l'hypothèse d'un endommagement additif implique que l'endommagement mécanique n'est pas affecté par le vieillissement ce qui est globalement vrai pour les conditions les moins sévères. Cependant, cette hypothèse n'est plus valable lorsque les temps ou les températures d'exposition sont importants car la structure du réseau macromoléculaire est drastiquement modifiée et par conséquent son comportement en fatigue.

Afin de prédire avec précision les durées de vie les plus courtes, le modèle doit tenir compte de cet adoucissement. Un modèle constitutif est développé dans le paragraphe suivant. Ce dernier tient compte d'un couplage entre endommagement mécanique et physico-chimique en construisant des relations entre les paramètres  $A$  et  $a$  de l'endommagement mécanique et ceux issus du réseau macromoléculaire.



*Fig.III.7 : Durée de vie prédite (Eq.III.16) vs. Durées de vie expérimentales  
(Les barres d'erreur représentent une tolérance de  $\pm 100\%$  et  $\pm 200\%$ )*

### **III.3.3 Relation entre les paramètres de la théorie de l'endommagement continu et la microstructure.**

Afin de reproduire l'évolution de la pente de la courbe de Wöhler en fonction des conditions de vieillissement, une première idée consiste à relier les paramètres  $A$  et  $a$  de la théorie de l'endommagement continu à la microstructure du matériau. Ainsi, le vieillissement du matériau sera directement relié à son comportement en fatigue. Pour ce faire, les paramètres  $A$  et  $a$  ont été ajustés sur la courbe de Wöhler obtenue pour chaque condition de vieillissement (Fig.III.8). Le tableau (Tab.III.5) récapitule les valeurs des paramètres  $A$  et  $a$  pour chaque condition de vieillissement.



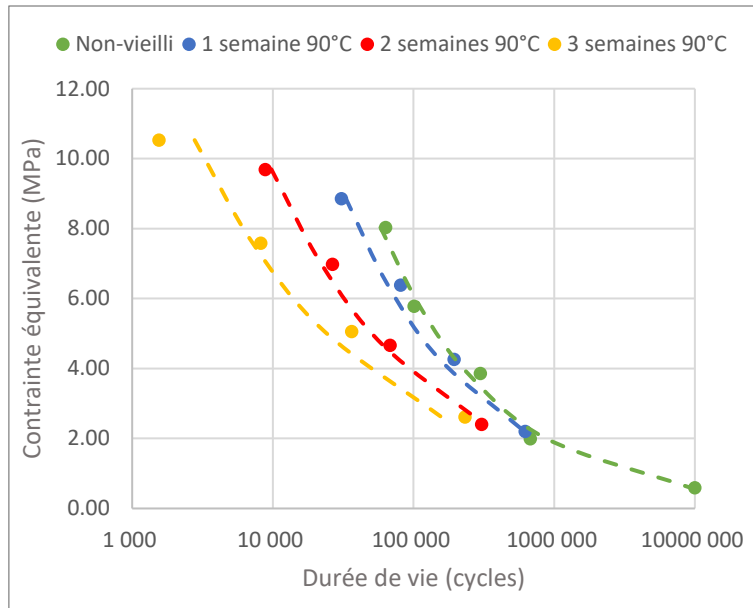


Fig.III.8a : Ajustement des paramètres  $A$  et  $a$  sur les courbes de Wöhler des éprouvettes vieilles à  $90^{\circ}\text{C}$   
 (Marqueurs : données expérimentales, lignes discontinues : ajustement du modèle)

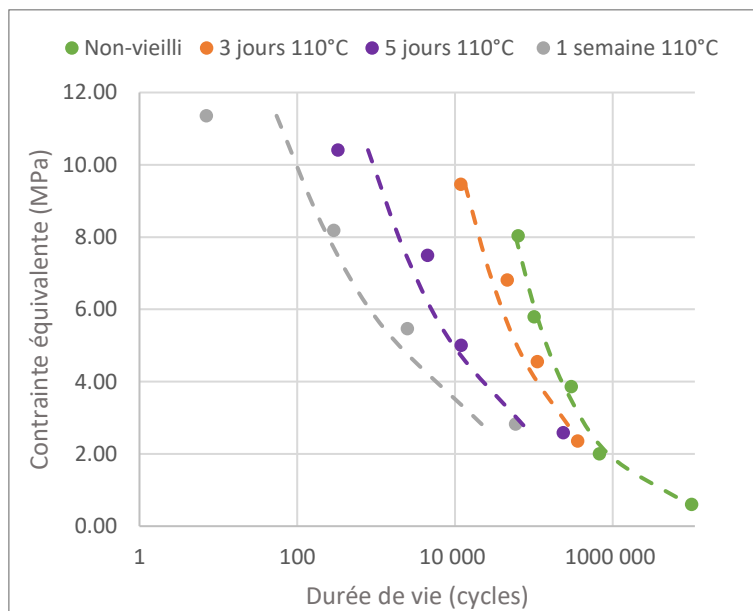


Fig.III.8b : Ajustement des paramètres  $A$  et  $a$  sur les courbes de Wöhler des éprouvettes vieilles à  $110^{\circ}\text{C}$   
 (Marqueurs : données expérimentales, lignes discontinues : ajustement du modèle)

Code Test	$A$ (MPa)	$a$
UA (Non-vieilli)	$1.0 \times 10^7$	1.95
A1		2.40
A2		3.40
A3		4.30
B1		2.10
B2		2.50
B3		2.90

Tab.III.5 : Paramètres  $A$  et  $a$  pour chaque condition de vieillissement

Les résultats montrent que le paramètre  $A$  est constant quelles que soient les conditions de vieillissement. Ainsi, il peut être considéré comme un paramètre du matériau indépendant du vieillissement. En revanche,  $a$  augmente avec le temps réduit (Fig.III.9). Étant donné que le matériau étudié présente, comme mécanisme de vieillissement prépondérant, de la post-réticulation, la longueur de la chaîne diminue avec le temps réduit. L'évolution de  $a$  semble être inversement proportionnelle à celle de la longueur moyenne des chaînes, telle que :

$$\frac{a}{a_0} = \frac{N_0 - N_y}{N - N_y} \quad (III. 21)$$

Où  $a$  et  $a_0$  sont les paramètres du matériau vieilli et non vieilli respectivement,  $N$  et  $N_0$  sont les longueurs de chaînes moyennes du matériau vieilli et non vieilli respectivement et  $N_y$  est une valeur seuil de  $N$  en deçà de laquelle le matériau est considéré complètement vieilli.

Rappelons que  $N$  et  $n$  sont reliés par le principe de conservation de la masse :

$$nN = n_0N_0 = cte$$

L'évolution de la longueur moyenne des chaînes en fonction du temps réduit est donnée par :

$$N = N_0 - \frac{\dot{n}}{n} t_r \quad (III. 22)$$

Par conséquent, une expression théorique du paramètre  $a$  peut être déduite :

$$a(t_r) = a_0 \frac{N_0 - N_y}{N_0 - N_y - \frac{\dot{n}}{n} t_r} \quad (III.23)$$

La figure (Fig.III.9) compare cette expression théorique aux données expérimentales avec  $a_0 = 1.95$  et  $N_y = 5.8$ . On observe une bonne corrélation entre nos données expérimentales et l'équation (Eq.III.23).

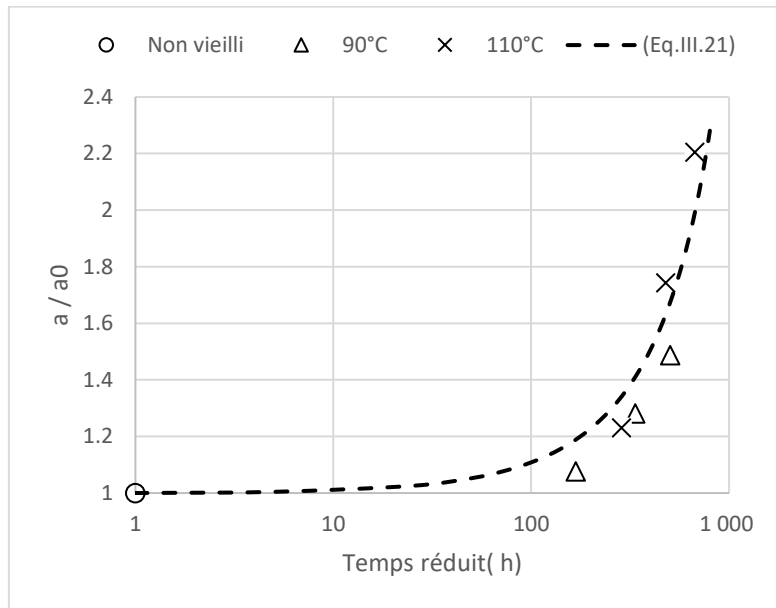


Fig.III.9 : Évolution du paramètre normalisé  $\frac{a}{a_0}$  vs. Temps réduit (h)

### III.3.4 Résultats et capacité prédictive du modèle couplé

La durée de vie peut être estimée à partir de l'équation (Eq.III.14) modifiée comme suit :

$$N_f = \frac{A}{1 + a(t_r)} \cdot (\sigma_{eq})^{-a(t_r)} \quad (III.14.1)$$

La figure (Fig.III.10a) montre la comparaison entre les prédictions et les résultats des essais UA, A1, A2, A3, B1, B2 et B3. Il est clair que le couplage fort envisagé permet d'améliorer significativement les prédictions. Cependant pour de faible nombre de cycles inférieurs à 500,

on observe encore une surestimation du modèle et par conséquent une sous-estimation de l'endommagement pour les conditions de vieillissement les plus sévères. Cette déviation peut être atténuée en utilisant les durées de vie expérimentales moyennes. (Fig.III.10b)

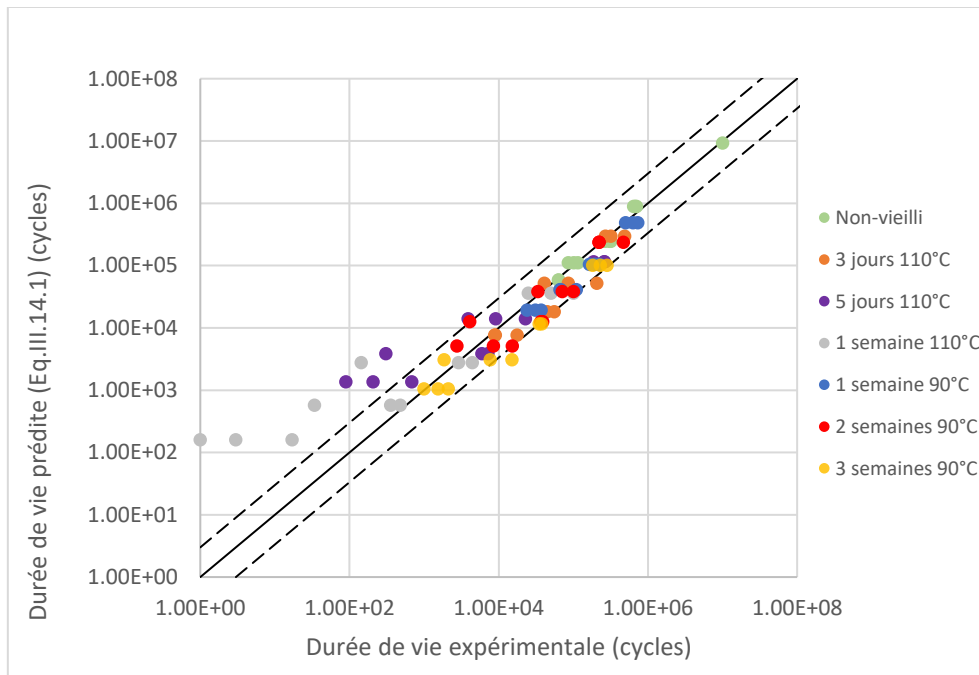


Fig.III.10a : Durées de vie prédites vs. Durées de vie expérimentales

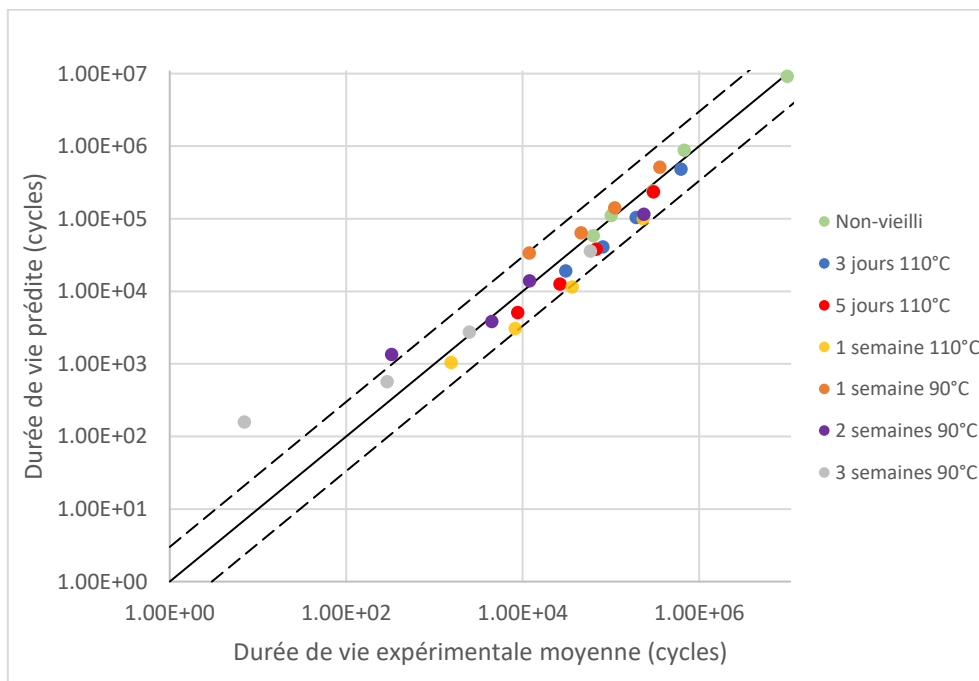


Fig.III.10b : Durée de vie prédite vs. Durée de vie expérimentale moyenne

Pour s'assurer de la capacité prédictive du modèle, trois autres conditions de vieillissement ont été testées impliquant des températures qui n'ont pas été utilisées pour l'ajustement des paramètres (Tab.III.6). Les chargements mécaniques sont les mêmes que ceux utilisés précédemment. Un bon accord est trouvé entre les expériences et le modèle (Fig.III.11). Même si une légère sous-estimation est observée pour le test C, la tendance demeure correcte. Il est à noter qu'un seul essai a été réalisé pour chaque chargement mécanique. On peut alors supposer que l'écart observé est le résultat de la dispersion souvent observée en fatigue plutôt que du modèle lui-même. *In fine*, le modèle peut être considéré comme un outil capable de prédire la durée de vie des élastomères quelles que soient les conditions de vieillissement et de chargement.

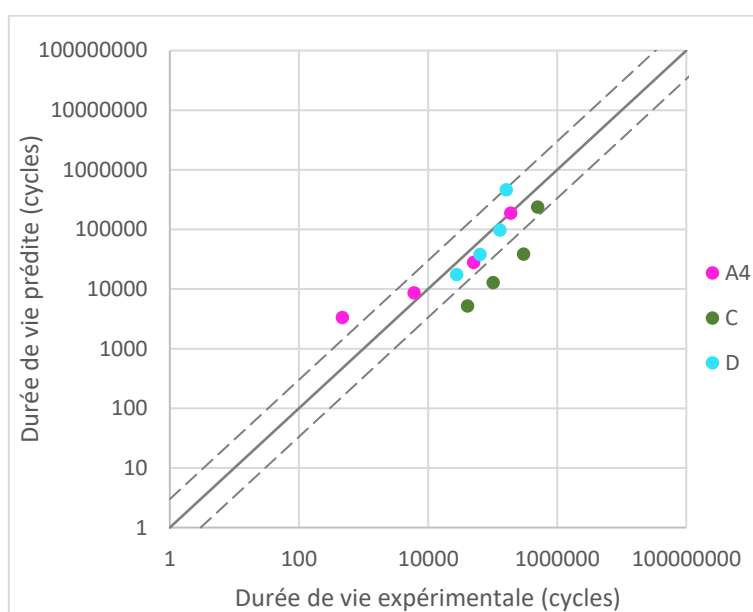


Fig.III.11 : Durée de vie prédite vs. Durées de vie expérimentales

Température absolue (°C)	Temps d'exposition (h)	Code test	Code couleur
110	96	A4	
130	24	C	
70	840	D	

Tab.III.6: Conditions de vieillissement supplémentaires

D'autre part, puisque le paramètre  $a$  apparaît dans l'expression de la variable d'endommagement  $D$ , l'évolution de cette dernière est impactée par les conditions de vieillissement. Sur la (Fig.III.12) est tracée l'évolution de  $D$  donnée par l'équation (Eq.III.14), rappelée ci-dessous, en fonction du nombre de cycles normalisé  $\frac{N}{N_f}$  pour différentes valeurs de temps réduit et pour une élévation donnée.

$$D(t_r) = 1 - \left( 1 - (1 + a(t_r)) \frac{(\sigma_{eq}(t_r))^{a(t_r)}}{A} N \right)^{\frac{1}{1+a(t_r)}} \quad (III.14)$$

Pour chaque valeur, la densité de chaîne  $n(t_r)$  est calculée grâce à l'équation (Eq.III.10) afin de déterminer la contrainte équivalente du matériau vieilli. Le paramètre  $a(t_r)$  est également calculé pour chaque valeur de temps réduit à l'aide de l'équation (Eq.III.23).

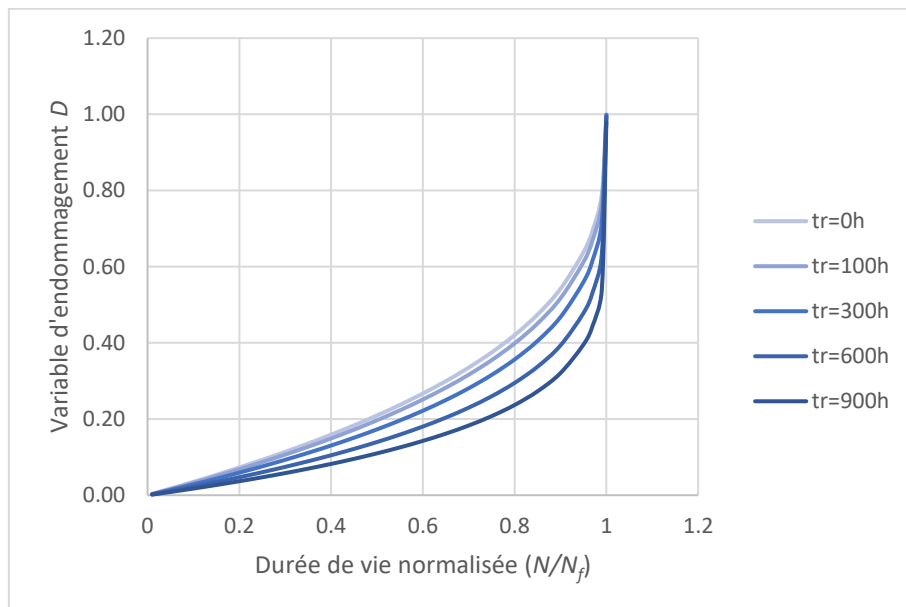


Fig.III.12 : Évolution de la variable d'endommagement du modèle couplé en fonction de la durée de vie normalisée pour différentes conditions de vieillissement

$$\lambda = 1.5$$

Ces évolutions mettent bien en évidence que plus les conditions de vieillissement sont rudes, plus la variable d'endommagement évolue de manière non-linéaire. Rappelons que  $D = 1$  correspond à la rupture du matériau. Par conséquent, la croissance asymptotique en fin de vie de plus en plus marquée à mesure que le temps réduit augmente peut être reliée à une coalescence des microfissures de plus en plus rapide. L'augmentation du nombre de ponts de réticulation dans la matrice élastomères entrave la mobilité des chaînes favorisant la concentration des contraintes, notamment en front de fissure. La croissance et la coalescence des microfissures sont donc accélérées par le phénomène de post-réticulation.

Il est important de mentionner que le NR est un élastomère cristallisable. Pour des chargements de fatigue, les cristallites apparaissent principalement en front de fissures, ralentissant de fait la croissance de ces dernières. Certains auteurs ont mis en évidence l'influence de degré de réticulation sur la cristallisation sous-tension. Plus le matériau est réticulé, plus les chaînes atteignent rapidement leur limite d'extensibilité, plus la cristallisation apparaît rapidement (Tosaka et al. 2004) et plus les cristallites sont petites et nombreuses (Trabelsi *et al.*, 2003). En conclusion, la cristallisation sous-tension devrait avoir un effet opposé à celui du vieillissement. Il serait donc intéressant de prendre en compte ce phénomène dans l'expression de la variable d'endommagement.

Pour finir, nous proposons de comparer l'évolution de la variable d'endommagement obtenue avec le modèle couplé à celle obtenue avec le modèle découplé. Sur la (Fig.III.13) est tracée l'évolution de  $D$  obtenue grâce à l'équation (Eq.III.15.1), rappelée ci-dessous, en fonction du nombre de cycles normalisé  $\frac{N}{N_f}$  pour différentes valeurs de temps réduit et pour une elongation donnée.

$$D = 1 - \left( 1 - (1 + a) \frac{(\sigma_{eq})^a}{A} N \right)^{\frac{1}{1+a}} + D_a \quad (III.15.1)$$

La valeur d'endommagement physico-chimique est déterminée pour chaque de temps réduit, de même que la contrainte équivalente du matériau vieilli.

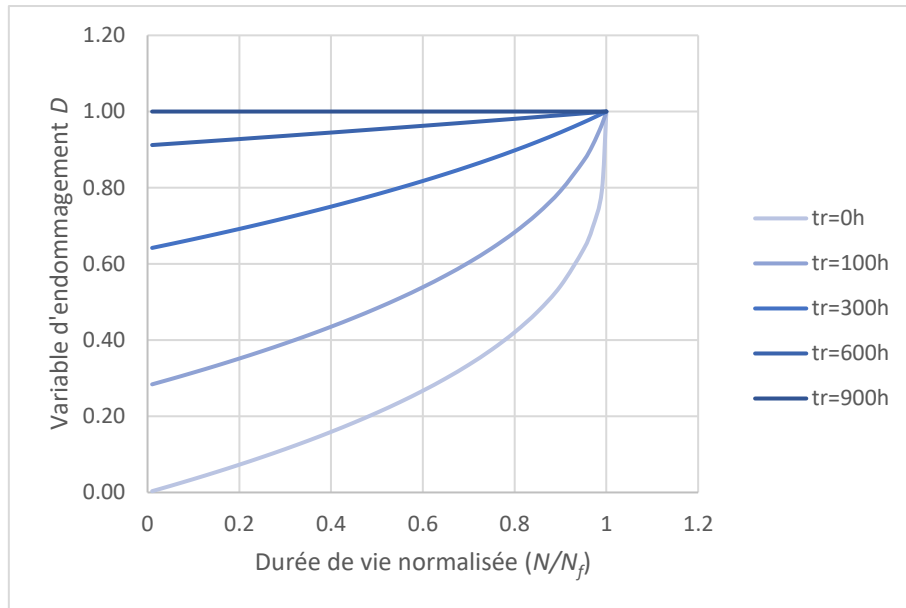


Fig.III.13 : Évolution de la variable d'endommagement du modèle découplé en fonction de la durée de vie normalisée pour différentes conditions de vieillissement

$$\lambda = 1.5$$

Comme nous l'avons expliqué dans le paragraphe (§.III.3.2), puisque les échantillons sont d'abord vieillis puis testés en fatigue, la variable d'endommagement physico-chimique  $D_a$  a une valeur constante pour une condition de vieillissement donnée et l'endommagement mécanique  $D_m$  croît jusqu'à ce que leur somme  $D = D_a + D_m$  atteigne 1 ce qui correspond à un matériau entièrement endommagé ( $N = N_f$ ). La figure (Fig.III.1) illustre parfaitement cette explication. L'évolution de l'endommagement mécanique ne pars pas de 0 mais d'une valeur non-nulle correspondant à l'endommagement physico-chimique  $D_a$ . Or, comme le montre la courbe du matériau non vieilli ( $t_r = 0h$ ) sur la figure (Fig.III.13), l'évolution de l'endommagement mécanique est quasiment linéaire pendant la première moitié de la durée de vie du matériau. En conséquence, dans ce modèle découplé, plus les conditions de vieillissement sont sévères, plus l'évolution de l'endommagement mécanique se linéarise.

Quand le vieillissement est trop important ( $D_a \sim 1$ ), la moindre sollicitation mécanique mène à la rupture du matériau qui ne peut donc pas être sollicité de manière cyclique. Par conséquent l'endommagement mécanique ne peut croître et la courbe représentative de l'endommagement totale est horizontale est égale à 1. (cf. Fig.III.13,  $t_r = 900h$ ).



### III.4 Conclusion du chapitre III

Dans ce chapitre, la dépendance au vieillissement thermo-oxydant du comportement en fatigue des élastomères présentant une post-réticulation a été mise en évidence. Puisque les chaînes se raccourcissent avec la température et la durée du vieillissement, les dommages induits par le chargement mécanique sont amplifiés, raccourcissant de fait la durée de vie. Plus les conditions de vieillissement sont sévères, plus l'endommagement mécanique est amplifié et plus la durée de vie est courte.

Le vieillissement ayant une forte influence sur la façon dont le matériau répond à un chargement donné, la pente de la courbe de Wöhler dépend des conditions de vieillissement. Ainsi, le premier modèle proposant une quantification du dommage induit par le vieillissement n'a pas permis de prédire les durées de vie pour les vieillissements les plus intenses car seul une translation de la courbe de Wöhler est opérée indépendamment de la pente. La quantification du dommage  $D_a$  reste cependant valable pour les durées de vie supérieure à  $10^4$  cycles.

Afin de prédire précisément la durée de vie pour toutes les conditions de vieillissement, un modèle fortement couplé a été développé. Les paramètres  $A$  et  $a$  de la théorie de l'endommagement continu ont été liés à la microstructure du matériau. Les modifications structurales au sein du matériau induites par le vieillissement thermo-oxydant sont modélisées par une équivalence temps-température au moyen d'une loi d'Arrhenius. De ce fait, la longueur des chaînes et les paramètres de comportement en fatigue sont connus quelles que soient les conditions de vieillissement. Le modèle conduit à une bonne estimation de la durée de vie pour 6 conditions de vieillissement impliquant 2 températures différentes. Pour vérifier les capacités prédictives du modèle, celui-ci a été testé sur 3 autres conditions de vieillissement impliquant 2 températures qui n'ont pas été utilisées pour l'ajustement des paramètres. Compte tenu de la dispersion souvent observée dans les essais de fatigue, les prédictions du modèle sont encourageantes.

Le point le plus important est que le modèle est principalement basé sur des considérations physiques car les paramètres impliqués sont liés au réseau macromoléculaire du matériau. L'approche de la mécanique de l'endommagement continu impliquant l'endommagement par thermo-oxydation via ces paramètres semble donc être une voie prometteuse pour aborder le problème de la fatigue dans le cas des matériaux élastomères vieillis.

Pour approfondir ce travail, d'autres essais impliquant différentes températures et durées de vieillissement pourraient être réalisés. En perspective, ce modèle pourrait être utilisé pour quantifier l'impact de l'auto-échauffement sur la durée de vie en fatigue d'éprouvettes plus épaisses (Voir chapitre IV).

## IV. Prédiction de l'auto-échauffement des élastomères sous chargement multiaxial

### IV.1 Introduction

Dans le cas de chargements cycliques, la déformation des élastomères chargés implique des frottements internes qui se traduit par une dissipation d'énergie sous forme de chaleur. La faible conductivité thermique de ces matériaux, rend la chaleur ainsi générée difficile à évacuer. Il en résulte une élévation de température au sein du matériau. Ce phénomène, appelé auto-échauffement, a été largement étudié ces dernières années et plusieurs paramètres impactant directement l'auto-échauffement ont été mis en évidence.

Parmi ces paramètres, la vitesse de déformation joue un rôle majeur (Lion 1997). En effet, une vitesse de déformation plus élevée se traduit par une puissance dissipée plus élevée qui intensifie l'accumulation de chaleur. Ainsi, une modélisation robuste du comportement visqueux apparaît cruciale pour prédire l'auto-échauffement.

D'autre part, il a été montré par (Ovalle Rodas et al. 2015) que les charges, comme les agrégats de noir de carbone ou de silice utilisés pour améliorer les propriétés mécaniques des élastomères, ont un effet non négligeable sur l'auto-échauffement : plus la fraction volumique de charges est élevée, plus l'énergie dissipée est élevée et par conséquent plus la température augmente.

Il a également été montré que l'augmentation de température est dépendante de la contrainte maximale subie par le matériau (Rosa et Risitano 2000). Cette augmentation peut s'expliquer par le durcissement généralement observé chez les élastomères soumis à de grandes déformations qui favorise la dissipation d'énergie dans cette plage de déformation. Une autre explication impliquant la cristallisation sous-tension (SIC) a été proposée par (C. Cruanes et al. 2019). Lors des mille premiers cycles d'un essai de fatigue, des microfissures apparaissent déjà. Il en résulte une amplification de la déformation en front de fissure permettant à la cristallisation sous-tension de se produire même pour de petites déformations. La chaleur alors générée par la cristallisation s'ajoute à celle induite par le comportement visqueux.

Enfin, il a été observé par (Ayoub et al. 2012) que l'auto-échauffement est plus élevé pour les échantillons épais. En effet, la combinaison de la faible conductivité avec le volume des échantillons, rend la chaleur encore plus difficile à évacuer dans ce cas. Par conséquent, la chaleur s'accumule et il en résulte une augmentation de température plus élevée que pour les échantillons plus minces.

Cependant, ces résultats ont été établis pour des chargements cycliques uniaxiaux en traction. A notre connaissance, la dépendance au chemin de chargement n'a pas encore été clairement mise en évidence.

Au-delà de ces différents travaux expérimentaux, de nombreuses tentatives de prédiction de l'élévation de température à l'aide de modèles plus ou moins sophistiqués ont été réalisées.

Par exemple, un modèle entièrement empirique a été développé par (C. Cruanes et al. 2019). À partir de leurs données expérimentales, la dérivée de l'auto-échauffement ( $^{\circ}\text{C}/\text{cycle}$ ) a été tracée en fonction du nombre de cycles. La courbe est ensuite ajustée de manière empirique en utilisant l'équation (Eq.IV.1). Cette expression est ensuite intégrée afin de trouver l'évolution de l'accumulation de chaleur.

$$\frac{d\theta}{dN} = A_1 \exp\left(-\frac{N}{\tau_1}\right) + A_2 \exp\left(-\frac{N}{\tau_2}\right) + \dot{\theta}_L \quad (\text{Eq. IV. 1})$$

Dans la relation précédente,  $A_1, A_2$  sont des paramètres matériau,  $\tau_1, \tau_2$  sont des temps caractéristiques,  $\dot{\theta}_L$  est la valeur vers laquelle tend la dérive de l'auto-échauffement et  $N$  le nombre de cycles.

Pour chaque essai, ces paramètres se sont révélés différents et une évolution linéaire en fonction de l'amplitude de la contrainte et du rapport de charge est suggérée par les auteurs. Le fait que les paramètres du modèle dépendent du chargement et ne semblent liés à aucun paramètre matériau rend le modèle peu attractif bien qu'il prédise avec précision l'auto-échauffement des échantillons AE42 et des haltères en traction cyclique pour deux matériaux différents (caoutchouc naturel (NR) et polychloroprène (CR)). De plus, cette approche pêche aussi bien en termes de prédiction que d'extension à des chargements multiaxiaux, ces deux aspects n'étant pas abordés dans le travail référencé.

Outre ce type d'approche empirique, des modèles plus robustes impliquant un couplage thermomécanique ont été proposés dans la littérature (Ovalle Rodas, 2014; Behnke *et al.*, 2016;

Johlitz *et al.*, 2016; Ovalle Rodas *et al.*, 2016; Guo *et al.*, 2018). Ces approches se basent généralement sur le second principe de la thermodynamique écrit sous la forme de l'inégalité de Clausius-Duhem. L'ajout d'un pseudo-potentiel de dissipation permet le calcul de l'énergie dissipée. Elle est ensuite introduite comme donnée d'entrée dans l'équation de la chaleur pour calculer l'élévation de température. Le comportement mécanique du matériau est mis à jour à chaque étape pour tenir compte de sa dépendance à la température. Le modèle de (Ovalle Rodas 2014; Ovalle Rodas et al. 2016) a permis la prédiction de l'auto-échauffement pour 2 géométries d'éprouvettes différentes faites de Styrène-Butadiène (SBR) (Haltère et AE2) lors d'essais cycliques en traction uniaxiale. Cependant, les chargements multiaxiaux n'ont pas été étudiés dans ce travail. De plus, il convient de mentionner que ce type d'approche induit des temps de calcul importants et, par conséquent, décourageants.

(Li et al. 2016) et (Luo et al. 2018) ont proposé un autre modèle mécanique fortement couplé afin de prédire l'accumulation de chaleur d'un échantillon cylindrique de caoutchouc naturel (NR) sous compression cyclique. La puissance thermique dissipée est déterminée pour chaque cycle selon (Eq.IV.2) comme suggéré par (Whicker et al. 1981).

$$\dot{Q} = f\pi\varepsilon_a^2 G'' \quad (\text{Eq.IV.2})$$

Où  $\dot{Q}$  est la puissance thermique dissipée par unité de volume,  $f$  est la fréquence d'essai,  $\varepsilon_a$  est l'amplitude de déformation et  $G''$  est le module de dissipation qui est identifié à l'aide d'une Analyse Mécanique Dynamique (*DMA* en anglais : Dynamic Mechanical Analysis).

Ces modèles prédisent l'évolution de la température du NR sous compression cyclique de manière satisfaisante.

Un modèle thermomécanique faiblement couplé a été proposé par (Le Chenadec, 2009) afin de prédire l'évolution de la température d'échantillons AE42 constitués de NR chargé sous tension cyclique, torsion cyclique et traction-torsion combinées. Selon l'auteur, l'utilisation d'un modèle faiblement couplé peut se justifier par la différence de temps caractéristiques observée entre le problème mécanique et le problème thermique. En effet, alors qu'un cycle mécanique de charge-décharge prend moins d'une seconde ( $\sim 10^{-1}$  s) la température stabilisée n'est atteinte qu'au bout de quelques minutes ( $\sim 10^2$  s), soit une différence de 3 ordres de grandeur. De plus, l'approche par couplage faible rend le calcul plus rapide et fournit des résultats précis. Concernant la détermination de l'énergie dissipée, l'auteur a proposé une loi de puissance pour

relier l'énergie de déformation totale et l'énergie dissipée dont les paramètres dépendent du matériau étudié et de la température. Ces paramètres sont identifiés empiriquement. Aucun modèle viscoélastique permettant de fournir une base physique à ces paramètres n'est mentionné par l'auteur. Finalement, le modèle conduit à des estimations précises de l'évolution de la température quel que soit le chemin de chargement mais uniquement pour un type d'éprouvette.

Pour autant que nous sachions, aucun modèle permettant de déterminer l'auto-échauffement des élastomères quel que soit le chemin de chargement et quel que soit la géométrie de l'échantillon n'a été développé à ce jour.

L'objectif de ce chapitre est d'étudier le phénomène d'auto-échauffement sous des chargements cycliques multiaxiaux en utilisant différentes géométries d'éprouvette et de proposer un modèle permettant de prédire l'auto-échauffement des élastomères quelle que soit la géométrie de l'éprouvette et quel que soit le chemin de chargement.

Le présent chapitre est organisé de la manière suivante :

Dans la section 1, la géométrie des échantillons, les paramètres des essais ainsi que la méthode utilisée pour mesurer et post-traiter les données d'évolution de la température sont présentés.

Dans la section 2, les résultats expérimentaux sont présentés pour mettre en évidence la dépendance au chemin de chargement et à la géométrie de l'échantillon.

Dans la section 3, les spécificités du modèle sont détaillées.

La section 4 présente la comparaison entre les mesures expérimentales et les simulations ainsi que la capacité prédictive du modèle. De plus, les hypothèses et les limites du modèle sont discutées.

Dans la section 5, la sensibilité du modèle aux paramètres est étudiée.

Dans la section 6, le modèle à couplage faible présenté et comparé à un modèle à couplage fort proposé dans la littérature (Ovalle Rodas et al. 2016) pour confirmer sa robustesse.

## IV.2 Procédure expérimentale

Les mesures d'auto-échauffement ont été réalisées lors des essais de fatigue détaillés dans le paragraphe II.1. Des essais de compression cyclique via un signal triangulaire sur les éprouvettes AE42 ont été réalisés *a posteriori*. Les détails de ces essais sont résumés dans le (Tab.IV.1)

Type d'éprouvette	Déplacement maximal (mm)	Fréquence (Hz)
AE42	-5	6
AE42	-10	3
AE42	-15	2
AE42	-20	1.5

Tab.IV.1: Paramètres des essais de compression cycliques

Étant donné que la vitesse de déformation a un impact direct sur l'auto-échauffement (Lion 1997), les fréquences ont été choisies pour maintenir la vitesse de déformation constante pour l'ensemble des chargements. Les expériences ont été réalisées sur un dispositif de fatigue multiaxiale Instron 8874® décrit en Annexe 2. Le matériau étudié est le même que celui des essais de fatigue, c'est-à-dire un caoutchouc naturel renforcé au noir de carbone (20 phr). L'auto-échauffement des éprouvettes a été mesurée à l'aide d'une caméra infrarouge FLIR B365®, permettant une mesure du champ de température à la surface de l'échantillon. La température de surface maximale est ensuite localisée. L'évolution expérimentale de cette température maximale de surface en fonction du nombre de cycles est tracée puis lissée en utilisant la forme exponentielle empirique donnée par l'(Eq.IV.3).

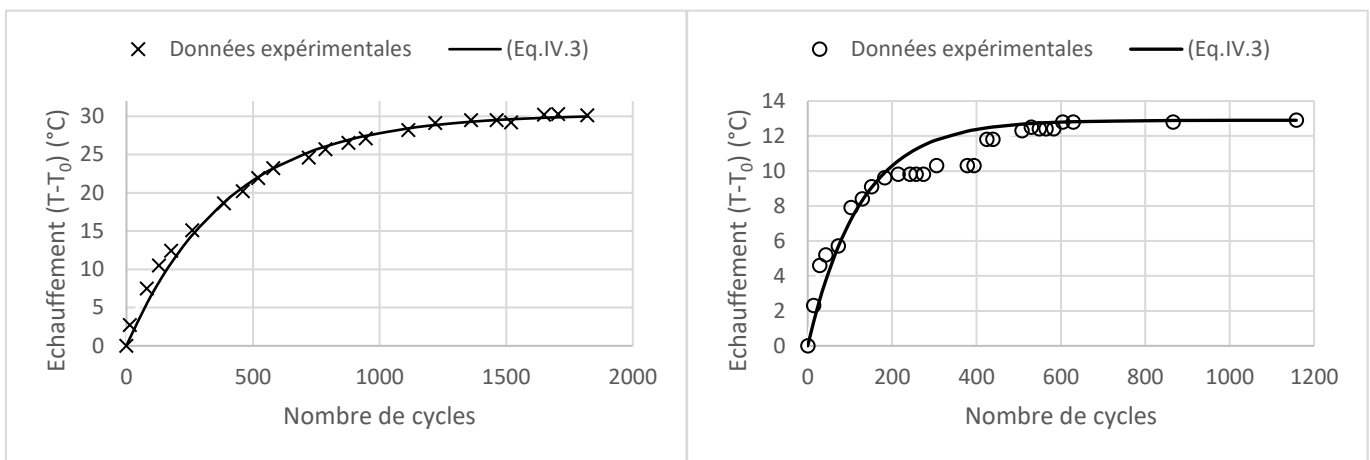
$$\Delta T(N) = \Delta T_{\infty}(1 - e^{-A.N}) \quad (Eq.IV.3)$$

Où  $\Delta T$  est l'évolution de l'auto-échauffement,  $N$  le nombre de cycles,  $A$  est un facteur gérant la courbure et  $\Delta T_{\infty}$  est la température stabilisée finale.

La (Fig.IV.1a) présente un exemple de comparaison entre les données expérimentales et l'évolution analytique donnée par l'(Eq.IV.3) pour un échantillon AE42 sous tension cyclique soumis à un déplacement maximal de 30 mm. Le paramètre de courbure  $A$  est obtenu par la méthode des moindres carrés, sa valeur optimisée est égale à  $0,0025 \text{ cycle}^{-1}$ . La température

stabilisée finale  $\Delta T_{\infty}$  est la valeur mesurée lorsque la variation de température devient négligeable et est fixée à  $\Delta T_{\infty} = 30,3^{\circ}\text{C}$ .

Un tel lissage permet de s'affranchir des aspérités pouvant résider sur les courbes expérimentales et permet d'utiliser une courbe strictement croissante comme donnée de référence. Le même traitement a été réalisé pour un échantillon AE2 en tension cyclique, **comme** illustré à la (Fig.1b). Pour ce deuxième exemple, les valeurs des paramètres sont  $A = 0,008 \text{ cycle}^{-1}$  et  $\Delta T_{\infty} = 12,9^{\circ}\text{C}$ .



(a)

(b)

*Fig.IV.1: Courbes d'auto-échauffement lissées*

*(a) AE42 sous traction cyclique (Déplacement maximal : 30mm)*

*(b) AE2 sous traction cyclique (Déplacement maximal : 12.5mm)*

Enfin, la caractérisation des propriétés thermiques du matériau a été réalisée à l'aide d'un dispositif LFA 457 Microflash® illustré par la (Fig.IV.2). Un tel dispositif permet d'estimer avec précision la conductivité thermique  $\kappa$  ainsi que la capacité calorifique spécifique  $c_p$  dont les valeurs sont reportées dans le tableau (Tab.IV.3). Notons que les valeurs mesurées sont proches de celles reportées dans la littérature (Le Chenadec 2008; Li et al. 2016; Ovalle Rodas et al. 2016; Luo et al. 2018)





*Fig.IV.2: Dispositif LFA 457 Microflash® pour la caractérisation des propriétés thermiques*

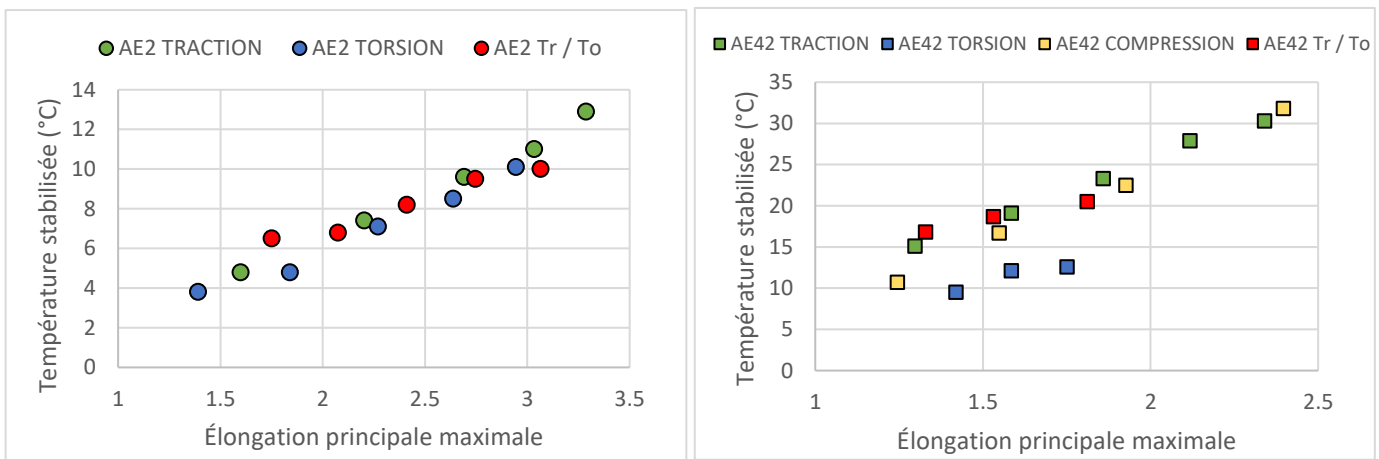
### **IV.3 Résultats expérimentaux**

La (Fig.IV.3) montre la température finale stabilisée obtenue pour les échantillons AE2 et AE42 sous les chargements mentionnés dans le (Tab.II.1). Afin de comparer les différents chargements, l'élongation principale maximale est choisie comme indicateur commun du chargement. Cette quantité mécanique est calculée localement par des simulations par éléments finis en utilisant le modèle de Gent comme expliqué plus en détail dans la section (II.2.2).

Par soucis de clarté, chaque sollicitation correspond à une couleur tout au long de ce chapitre : vert pour la traction, bleu pour la torsion, rouge pour la traction-torsion et jaune pour la compression.

Lorsque l'on s'intéresse à la géométrie AE2, l'ensemble des données expérimentales est regroupé comme clairement mis en évidence sur la (Fig.IV.3a), la température stabilisée présente une évolution linéaire en fonction du paramètre de chargement. Pour une déformation donnée, l'augmentation de température est la même, quel que soit le chemin de chargement. A ce stade, l'élongation principale maximale semble être un indicateur pertinent pour représenter le chargement. En revanche, l'échantillon AE42 ne fournit pas les mêmes résultats (Fig.IV.3b). Pour une élongation donnée, l'auto-échauffement est plus faible sous un chargement de torsion que celui mesuré pour les autres chemins. Cela pourrait s'expliquer par l'évolution de la forme apparente de l'éprouvette en fonction du chemin de chargement. En effet, alors que la traction-compression implique l'allongement ou le raccourcissement de l'échantillon dans une direction accompagné d'un rétrécissement ou d'un épaissement dans les deux directions orthogonales,

la forme extérieure n'est que légèrement modifiée par la torsion. C'est-à-dire qu'en traction ou compression, le mouvement des chaînes moléculaires est plus important qu'en torsion et par conséquent intensifie la dissipation d'énergie par frottements internes. Lorsque l'on compare les échantillons AE2 et AE42, le volume de matière impliqué dans le processus de déformation est nettement plus important pour la deuxième géométrie, ce qui explique que l'auto-échauffement des échantillons AE2 semble être moins dépendant des chemins de chargement. Néanmoins, il convient de noter sur la (Fig.IV.3a) que même si l'augmentation de température pour la géométrie AE2 n'est pas fortement impactée par le chemin de chargement, l'auto-échauffement en torsion est légèrement inférieur à celui des autres chemins de chargement.



(a)

(b)

Fig.IV.3: Température stabilisée (°C) vs. Élongation principale maximale

(a) AE2, (b) AE42

D'autre part, il est possible d'étudier la cinétique de la montée en température. Nous choisissons de définir le temps de montée en température, noté  $\tau$ , comme le temps nécessaire pour atteindre 99% de la température stabilisée finale  $\Delta T_{\infty}$ . La mesure de ce temps propre à chaque essai est faite à l'aide de la courbe lissée obtenue par l'équation (Eq.IV.3). L'élévation de température est calculée pour chaque cycle. Lorsque cette dernière atteint une valeur de 99% de la température finale  $\Delta T_{\infty}$ , le nombre de cycle est repéré puis divisé par la fréquence de l'essai  $f$ . Ainsi le temps de montée en température peut être déterminé et exprimé en secondes.

La figure (Fig.IV.4) montre l'évolution de  $\tau$  en fonction de l'élongation principale maximale pour différentes éprouvettes. Deux conclusions peuvent être tirées. Tout d'abord, le temps de montée en température semble augmenter légèrement avec l'élongation principale maximale. Cependant, la croissance est si faible qu'il pourrait être considérée comme constant. Une première conclusion à tirer est donc que le temps de montée en température ne dépend pas de la déformation imposée. Ainsi, une valeur moyenne de  $\tau$  peut être calculée. Cette valeur pour les géométries AE2 et haltère est égale à  $\tau_{AE2} = \tau_{haltère} = 400s$  alors qu'elle est égale à  $\tau_{AE42} = 1000s$  pour la géométrie AE42. Une seconde conclusion est que plus l'échantillon est épais, plus il faut de temps pour atteindre la température stabilisée finale. Finalement, même si cette valeur est indépendante de la déformation, le chemin de chargement semble tout de même avoir un impact puisque le temps caractéristique pour l'AE42 sous compression cyclique est nettement moins important que pour les 3 autres sollicitations.

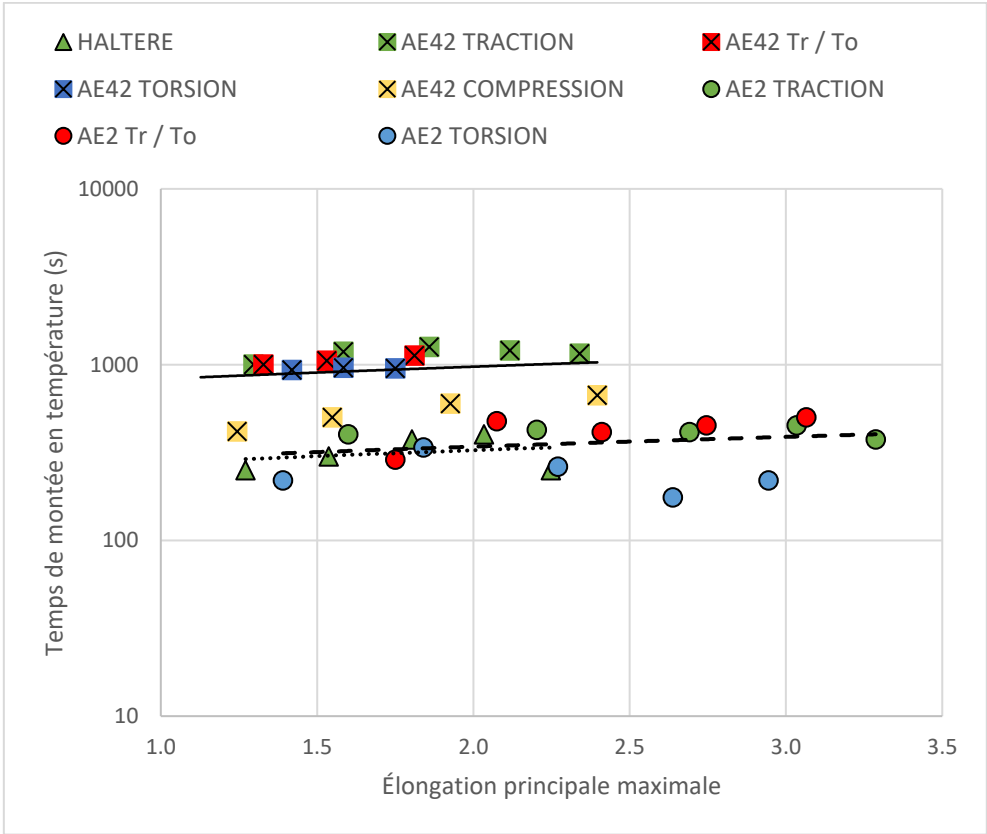


Fig.IV.4: Temps de montée en température (s) vs. Élongation principale maximale  
 (a) AE2, (b) AE42

## IV.4 Modélisation de l'auto-échauffement sous sollicitations multiaxiales

Avant de présenter le modèle et ses capacités prédictives, il convient d'en justifier l'utilisation.

Dans le cas de l'étude du phénomène d'auto-échauffement, l'utilisation d'un modèle à couplage faible est justifiée par la différence significative entre les temps caractéristiques du problème mécanique ( $10^{-1}$  s) et du problème thermique ( $10^2$  s). (Le Chenadec 2008)

De plus, le comportement mécanique de notre matériau est très faiblement impacté par la température. La (Fig.IV.5) montre des tests de multi-relaxation effectués sur des éprouvettes AE42 à température ambiante et à  $110^{\circ}\text{C}$ . On peut constater que le comportement élastique relaxé reste inchangé sauf pour les grandes déformations où le durcissement est plus important à température ambiante. On voit aussi que le comportement visqueux est quasiment identique pour les deux températures sauf pour les grandes déformations où la viscosité semble diminuer après une élévation de température. La dilatation thermique pourrait être la cause d'un tel phénomène puisqu'en augmentant le volume de matière, la densité des chaînes diminue créant plus d'espace entre les chaînes et les charges, diminuant ainsi les frottements responsables du comportement visqueux. Par conséquent, dans la gamme de déplacement utilisée pour les chargements en fatigue et dans la gamme de température étudiée, on peut considérer que le comportement viscoélastique dépend très peu de la température, ce qui apporte un argument supplémentaire en faveur de l'utilisation d'un couplage faible.

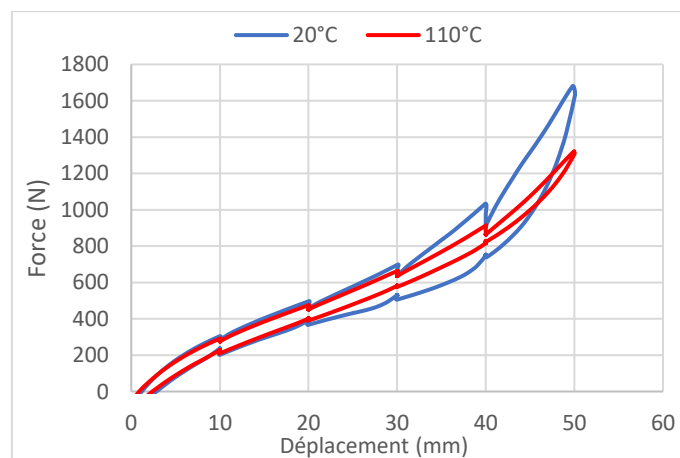
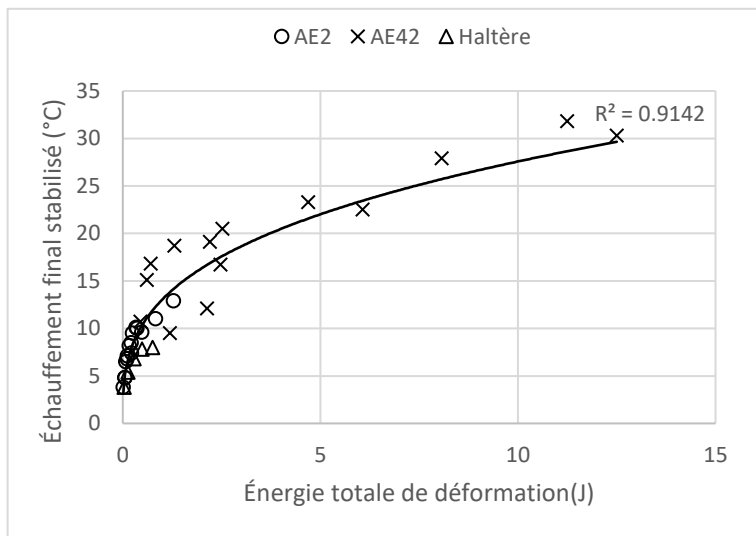
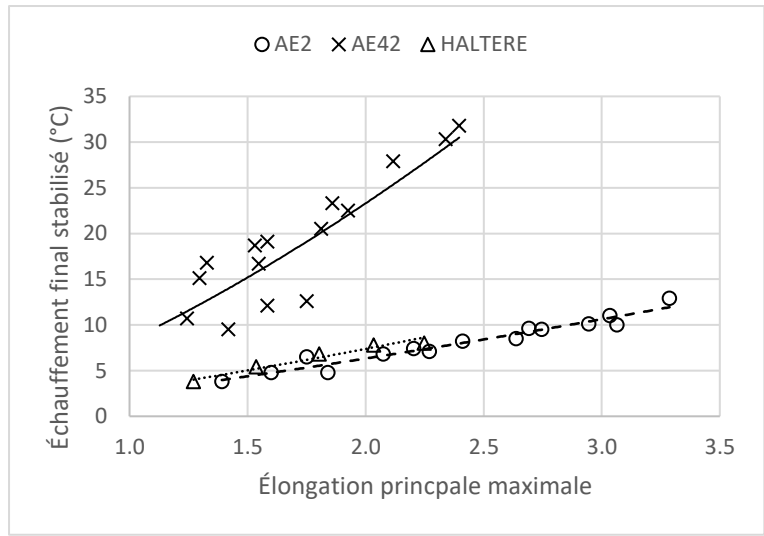


Fig.IV.5: Essai de multi-relaxation sur éprouvette AE42 à 2 températures différentes

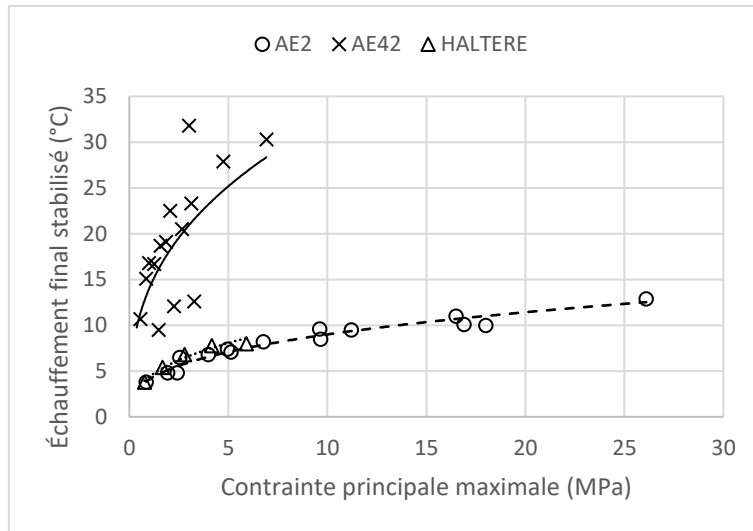
Ensuite, il est nécessaire de déterminer un critère multiaxial d'auto-échauffement adéquat. C'est-à-dire une quantité mécanique capable d'unifier les données expérimentales d'auto-échauffement de toutes les éprouvettes pour tous les trajets de chargement. Les simulations par éléments finis permettent de calculer diverses grandeurs mécaniques telles que l'élongation principale maximale, la contrainte principale maximale, la densité d'énergie de déformation (SED) et l'énergie de déformation totale. Toutes ces grandeurs mécaniques ont été testées comme critère multiaxial de l'auto-échauffement. La (Fig.IV.6) montre la température finale stabilisée en fonction de l'énergie de déformation totale (a), de l'élongation principale maximale (b) et de la contrainte maximale principale (c). D'autres variables, comme la densité d'énergie de déformation et la densité d'énergie de fissuration, ont également été testées mais donnent des résultats similaires à ceux observés sur la figure (Fig.IV.6.c).



(a)



(b)



(c)

Fig.IV.6 : Échauffement final stabilisé (°C) vs. (a) Énergie totale de déformation (J), (b) Élongation principale maximale, (c) Contrainte principale maximale (MPa), pour les différentes (traction, torsion, traction/torsion, compression)

Parmi tous les indicateurs présentés ci-dessus, on peut constater que seule l'Énergie Totale de Déformation est capable d'unifier les données expérimentales quelle que soit la géométrie de l'éprouvette et quel que soit le chemin de chargement. L'échauffement final stabilisé semble être lié à l'énergie totale de déformation par une loi de puissance, telle que :

$$\Delta T = a(W_{tot})^b \quad (IV.4)$$

Où  $a = 13.42 \text{ } ^\circ\text{C}/\text{J}$  et  $b = 0.3335$  pour notre matériau d'étude.

Les autres indicateurs n'ont pas réussi à unifier les données obtenues pour la géométrie AE42 avec les autres géométries en raison de la dépendance évidente au volume de l'échantillon. En effet et comme nous l'avons déjà signalé, la combinaison de la faible conductivité thermique avec le volume de l'échantillon AE42 rend la chaleur plus difficile à évacuer. Par conséquent, il en résulte une élévation de température plus importante pour cette géométrie. Dans la suite de ce chapitre, l'énergie totale de déformation sera le critère retenu pour de tenir compte de la multiaxialité du chargement pour la modélisation de l'auto-échauffement.

Afin de prédire non seulement la température stabilisée mais aussi l'ensemble de l'évolution de la température au cours du temps, un modèle thermomécanique faiblement couplé est développé dans la suite de ce paragraphe reposant sur l'hypothèse que l'intégralité de l'énergie dissipée est convertie en chaleur.

Premièrement, la densité d'énergie de déformation est calculée sur la base du modèle hyperélastique de Gent mentionné précédemment. Nos données expérimentales ont montré que le rapport entre l'énergie dissipée totale et l'énergie de déformation totale peut être considéré comme une constante pendant toute la durée de vie de l'éprouvette, une fois les premiers cycles franchis. Ainsi, l'énergie dissipée peut être estimée par un simple calcul stationnaire une fois le rapport déterminé. La (Fig.IV.7) présente ce rapport, noté  $R$ , en fonction du nombre de cycles pour une éprouvette AE2 soumise à une traction cyclique (déplacement maximal : 12.5mm). L'intégration par la formule des trapèzes de la courbe Charge-Déplacement a permis de calculer l'énergie dissipée, l'énergie de déformation totale et leur rapport à un nombre de cycle donné. Il est clairement mis en évidence que  $R$  est élevé au premier cycle et décroît rapidement vers une valeur qui reste constante pendant toute la durée de vie de l'éprouvette. L'effet Mullins est la raison la plus évidente d'un tel phénomène. Notons que  $R$  semble être un peu plus élevé en fin de vie, juste avant la rupture. La croissance des microfissures et leur coalescence jusqu'à l'apparition d'une macrofissure consomme une partie de l'énergie de déformation qui ne sera pas restituée pour la forme d'un retour élastique. Ainsi, il est normal d'observer une légère augmentation de  $R$  en fin de vie. Notons que la phase de montée en température concerne généralement les 2000 premiers cycles. Par conséquent, le rapport  $R$  peut être considéré constant. L'énergie dissipée peut alors être calculée par un simple calcul stationnaire une fois le rapport connu.

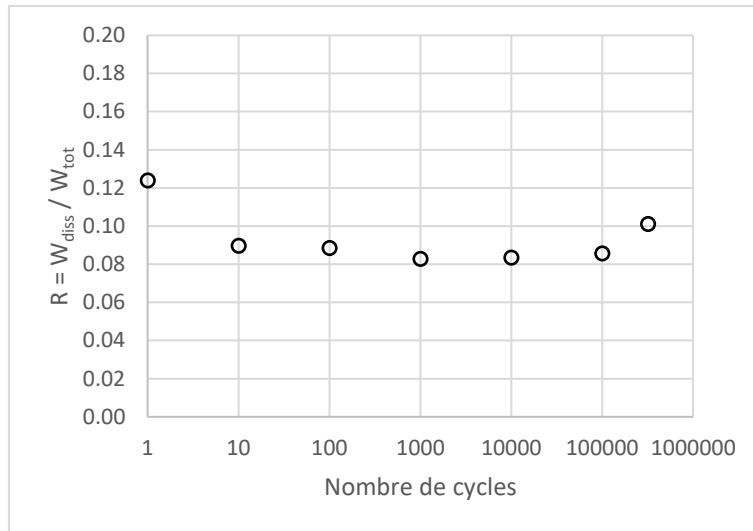


Fig. IV.7 : Rapport  $R$  entre l'énergie dissipée totale et l'énergie de déformation totale  
(AE2 sous traction cyclique, déplacement maximal : 12.5mm)

L'évaluation du rapport  $R$  est faite par l'intermédiaire d'un modèle viscoélastique permettant de reproduire la boucle d'hystérésis lors d'un cycle charge-décharge. L'intégration de la courbe de charge permet l'évaluation de l'énergie totale de déformation et l'intégration de la courbe charge-décharge permet l'estimation de l'énergie dissipée.

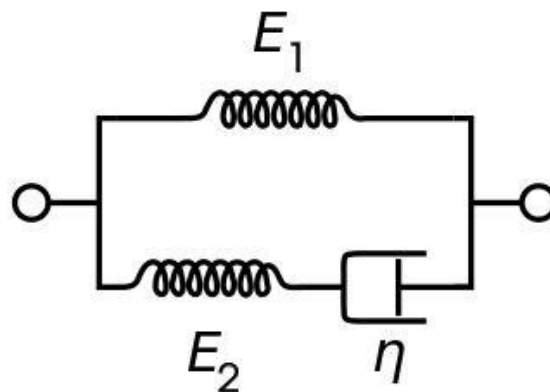
Le modèle viscoélastique choisi est celui de Bergström-Boyce détaillé dans le paragraphe 1.3.3. La forme du modèle rhéologique est rappelée sur la (Fig.I.33a) ci-après. Ce choix a été motivé par la capacité du modèle à reproduire les boucles d'hystérésis des 3 géométries d'éprouvettes sous différentes sollicitations. Le logiciel de simulation par éléments finis MSC. Marc a été utilisé pour reproduire le comportement visco-hyperélastique. Le ressort hyperélastique  $E_1$  de la branche  $A$  est modélisé par la loi de comportement de (Gent 1996) car ce dernier a déjà été utilisé pour les simulations précédentes. En revanche, le logiciel MSC. Marc impose l'utilisation du modèle à 8-chaînes d'(Arruda et Boyce 1993) pour le ressort hyperélastique  $E_2$  de la branche  $B$ . Enfin, la loi proposée par (Bergström et Boyce 2000) est utilisée pour modéliser l'amortisseur  $\eta$  (Voir paragraphe § 1.3.3).

Le modèle complet de Bergström-Boyce nécessite donc l'identification de 7 paramètres :

- La densité de chaînes et la longueur moyenne des chaînes du ressort hyperélastique de la branche  $A$  :  $n_A$  et  $N_A$

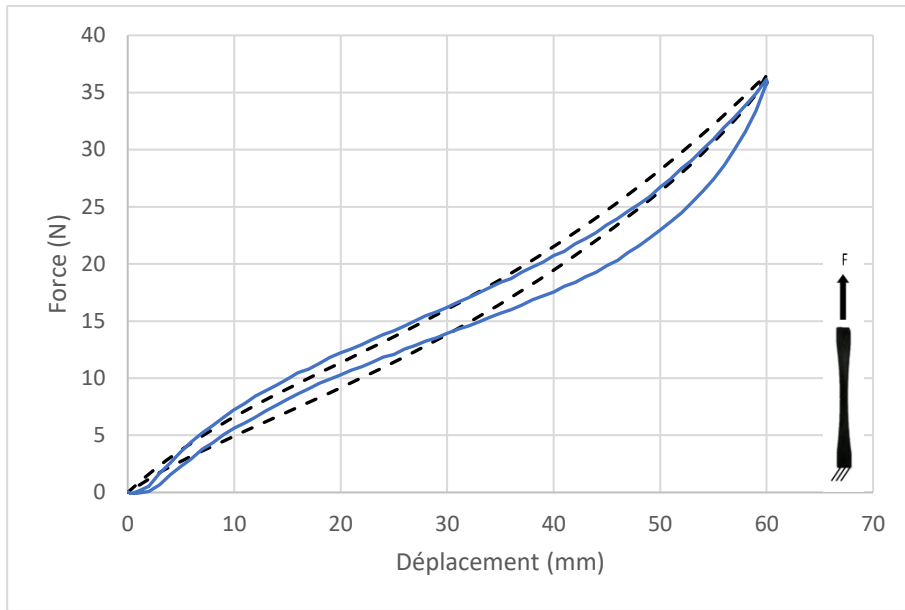


- La densité de chaînes et la longueur moyenne des chaînes du ressort hyperélastique de la branche  $B$  :  $n_B$  et  $N_B$
- Les paramètres de viscosité de la loi de (J.S. Bergström, Large strain time-dependent behavior of filled elastomers, 2000) :  $c_1$ ,  $c_2$  et  $c_3$ .

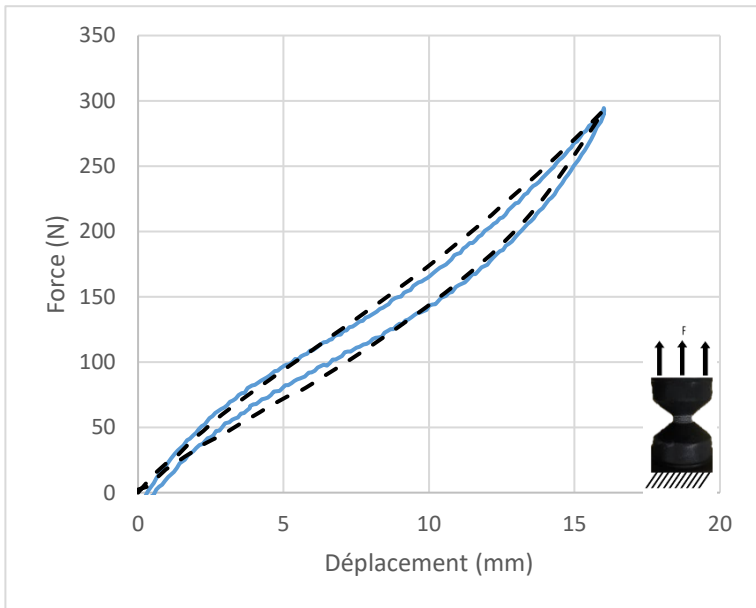


*Fig.I.33a : Modèle rhéologique de Zener*

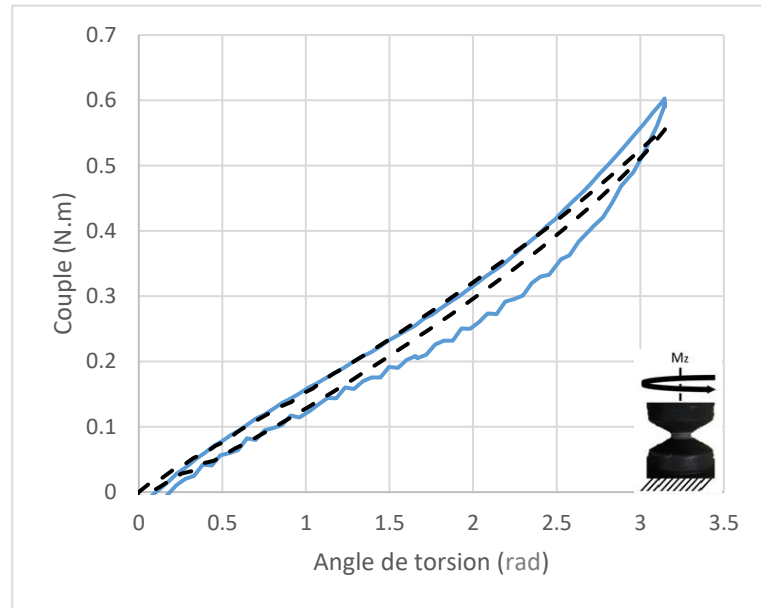
Les paramètres du modèle de Bergström-Boyce sont d'abord identifiés sur l'éprouvette haltère sur un cycle charge-décharge après élimination de l'effet Mullins (Fig.IV.8a). Ils sont ensuite optimisés manuellement sur les réponses force-déplacement ou couple-angle sur les éprouvettes AE2 et AE42. Les valeurs optimisées des paramètres sont reportées dans le tableau (Tab.IV.3). La (Fig.IV.8) compare les prédictions du modèle de Bergström-Boyce aux courbes expérimentales. Il est clair que le modèle reproduit correctement les boucles d'hystérésis des 3 géométries d'éprouvettes pour les deux trajets de chargement testés.



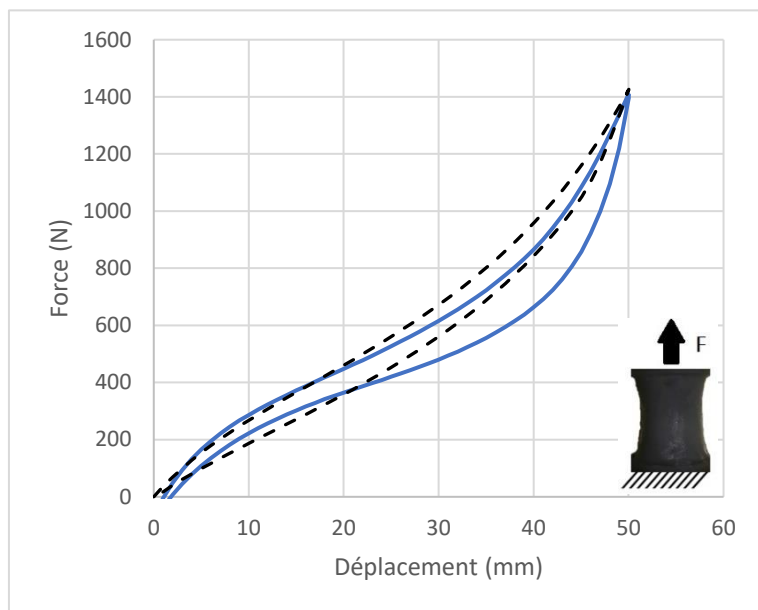
(a)



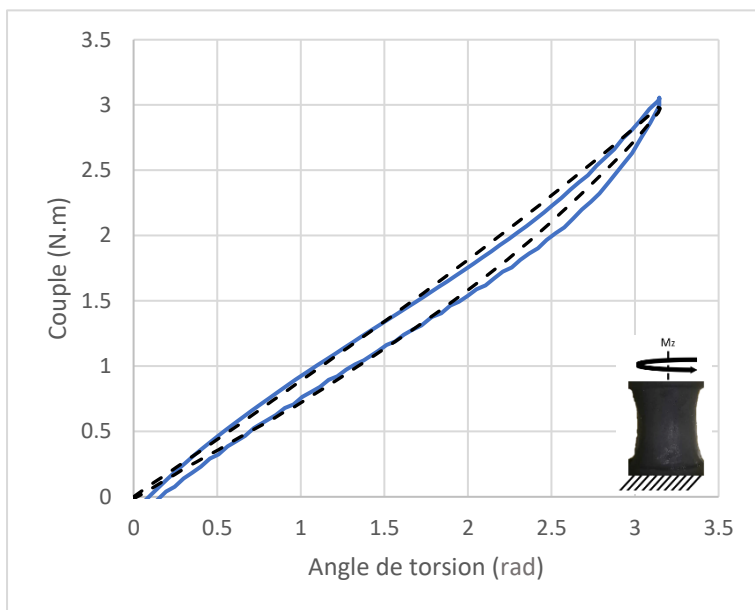
(b)



(c)



(d)



(e)

Fig.IV.8 : Boucle d'hystérésis d'un trajet charge-décharge

(lignes discontinues : simulations, traits pleins bleus : données expérimentales)

(a) Haltère, (b) AE2 traction, (c) AE2 torsion, (d) AE42 traction et (e) AE42 torsion

L'aire de la boucle d'hystérésis, correspondant à l'énergie dissipée totale lors d'un cycle de chargement, est ensuite calculée par intégration en utilisant la méthode des trapèzes pour les chargements en traction et en torsion décrits dans le (Tab.IV.2). La (Fig.IV.8) montre l'énergie dissipée totale en fonction de l'énergie de déformation totale. Puisque les deux axes du graphique sont en échelles logarithmiques, la tendance linéaire qui se dessine correspond à une loi de puissance entre les 2 quantités telle que  $W_{diss} = R \cdot (W_{tot})^b$ . Les paramètres optimaux permettant d'ajuster la droite aux points expérimentaux sont  $R = 0.1686$  et  $b = 1.004$ . Puisque l'exposant  $b$  est très proche de 1, nous faisons l'approximation qu'il est égal à 1. De cette manière, l'énergie dissipée et l'énergie de déformation sont reliées par un simple coefficient de proportionnalité  $R$  qui est le rapport que nous cherchons à déterminer.

Plusieurs conclusions sont à tirer de ce graphique. Premièrement, le fait que tous les points sont alignés sur une même droite signifie que le rapport  $R$  est indépendant du trajet de chargement d'une part, et indépendant de la géométrie de l'éprouvette d'autre part.  $R$  est donc un paramètre

intrinsèque du matériau, au même titre que son module élastique ou sa viscosité. Deuxièmement, l'évolution linéaire de l'énergie dissipée en fonction de l'énergie de déformation totale suggère que  $R$  reste constant dans une très large gamme de déformation. Finalement, on notera que deux nuages de points se distinguent. Les points correspondant aux chargements de traction ont des valeurs d'énergie dissipée nettement plus importantes que celles des chargements en torsion. Ce qui justifie les valeurs d'auto-échauffement plus élevées observées pour les chargements en traction (paragraphe (IV. 2)).

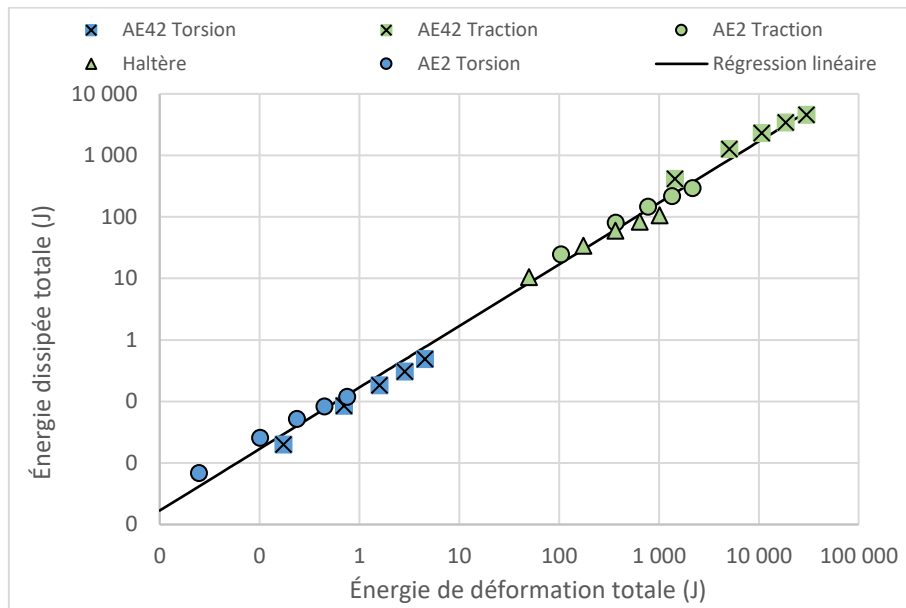


Fig.IV.9 : Énergie dissipée totale (J) vs. Énergie de déformation totale (J)

Éprouvette	Déplacement maximal (mm)	Angle de torsion maximal (°)
Haltère	58	0
Haltère	46.4	0
Haltère	34.8	0
Haltère	23.2	0
Haltère	11.6	0
AE2	12.5	0
AE2	10	0
AE2	7.5	0

AE2	5	0
AE2	2.5	0
AE2	1.25	0
AE2	0	150
AE2	0	120
AE2	0	90
AE2	0	60
AE2	0	30
AE42	30	0
AE42	24	0
AE42	18	0
AE42	12	0
AE42	0	180
AE42	0	150
AE42	0	120
AE42	0	90

Tab.IV.2 : Chargements testés pour le calcul du rapport  $R$

Une première hypothèse inhérente à ce modèle est de supposer que le rapport entre la densité d'énergie dissipée et la densité d'énergie de déformation est égale au rapport entre l'énergie dissipée totale et l'énergie de déformation totale. Cette hypothèse se vérifie mathématiquement puisque dans un volume élémentaire  $dV$ , on peut écrire :

$$W_{diss} = dW_{diss} \times dV$$

$$W_{Tot} = dW_{Tot} \times dV$$

En rapportant la première de ces équations à la seconde et en simplifiant par  $dV$ , on obtient :

$$\frac{W_{diss}}{W_{Tot}} = \frac{dW_{diss}}{dW_{Tot}} = R \quad (IV.5)$$

Ainsi, il est possible de déterminer la quantité d'énergie dissipée localement par un simple calcul stationnaire, moyennant la connaissance du rapport  $R$ , puis d'utiliser cette quantité

comme donnée d'entrée dans le modèle thermique. Dans l'équation de la chaleur, il s'agit du terme de génération de chaleur  $dW_{diss} \cdot f$  qui représente la puissance dissipée.

$$\rho c_p \dot{T} - \kappa \nabla^2 T = dW_{diss} \cdot f \quad (IV.6)$$

Où  $T$  est la température du matériau,  $\rho$  est la densité,  $c_p$  est la chaleur spécifique massique,  $\kappa$  est la conductivité thermique,  $dW_{diss}$  est la densité d'énergie dissipée et  $f$  la fréquence de l'essai.

D'autre part, l'évacuation de la chaleur est gérée par la condition limite suivante :

$$\vec{\phi} = -h_0 S (T - T_\infty) \vec{n} \quad (IV.7)$$

Où  $\vec{\phi}$  est le flux de chaleur,  $h_0$  le coefficient de transfert thermique convectif,  $S$  la surface externe de l'éprouvette,  $T_\infty$  la température de l'air ambiant et  $\vec{n}$  un vecteur unitaire dirigé vers l'extérieur de l'éprouvette.

Puisque la surface externe de l'éprouvette intervient dans le flux d'évacuation de chaleur, la déformation de l'éprouvette impactera sa capacité à se refroidir. Plus la surface externe est grande, plus l'échange de chaleur avec l'air ambiant sera facilité et réciproquement. Le développement d'un modèle faiblement couplé nécessite l'utilisation de la configuration non-déformée de l'éprouvette. Il est donc nécessaire de tenir compte des variations de surfaces externes par le biais d'un artifice mathématique. Une façon d'en tenir compte consiste à rendre le coefficient de transfert de chaleur convectif dépendant de la déformation de sorte que le produit  $\eta$  (Eq.IV.8) soit maintenu égal à celui normalement obtenu dans la configuration déformée (réelle).

$$\eta = h_0 \cdot S = h \cdot S_0 \quad (Eq.IV.8)$$

Pour ce faire, l'évolution de la surface externe en fonction du déplacement appliqué a été calculée à l'aide de simulations par éléments finis et est illustrée par la (Fig.IV.10).

Une évolution strictement linéaire apparaît pour les trois géométries. Dans la gamme du déplacement étudié, la variation de surface est beaucoup plus importante pour les éprouvettes haltère et les éprouvettes AE42 que pour les éprouvettes AE2, car la déformation dans l'éprouvette AE2 est focalisée en son centre rendant le changement de surface externe inférieur à celui obtenu pour les autres géométries.

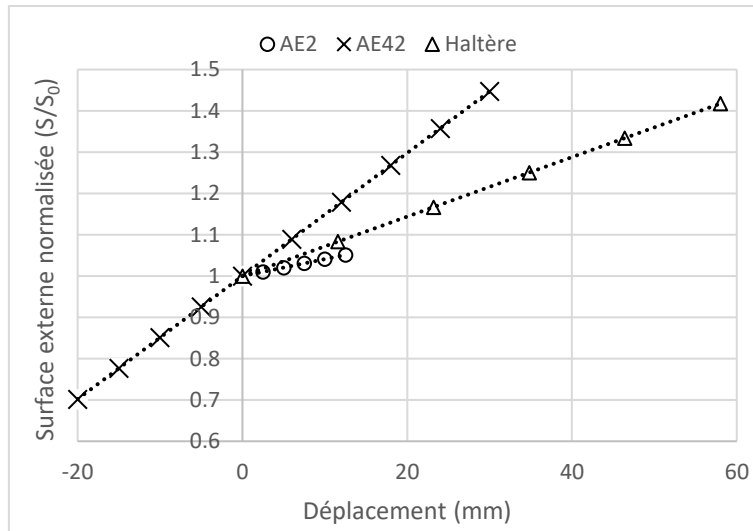


Fig.IV.10 : Surface externe normalisée  $\frac{S}{S_0}$  vs. Déplacement (mm)

Afin de conserver un produit  $\eta$  égal à celui normalement obtenu dans la configuration déformée, le coefficient de transfert thermique convectif doit suivre la même évolution de la surface externe. Ainsi  $\frac{h}{h_0}$  doit montrer la même évolution linéaire que  $\frac{S}{S_0}$  (Fig.IV.10) qui peut s'exprimer de la manière suivante :

$$h = h_0 + \alpha \cdot dL \quad (Eq.IV.9)$$

Où  $h$  est le coefficient de transfert thermique convectif dépendant du déplacement appliqué,  $h_0$  est sa valeur dans la configuration non déformée,  $dL$  est le déplacement appliqué et  $\alpha$  la pente de l'évolution linéaire qui dépend de la géométrie de l'échantillon.

En résumé, l'utilisation de ce modèle nécessite l'identification de 13 paramètres :

- La densité de chaînes et la longueur moyenne des chaînes du ressort hyperélastique de la branche  $A$  :  $n_A$  et  $N_A$
- La densité de chaînes et la longueur moyenne des chaînes du ressort hyperélastique de la branche  $B$  :  $n_B$  et  $N_B$
- Les paramètres de viscosité de la loi de (Bergström et Boyce 2000) :  $c_1$ ,  $c_2$  et  $c_3$ .
- Le rapport  $R$  entre l'énergie dissipée et l'énergie de déformation, le coefficient de croissance de la surface externe en fonction du déplacement  $\alpha$  qui dépend de la géométrie de l'éprouvette, le coefficient de transfert thermique convectif initial  $h_0$ , la

capacité calorifique massique  $c_p$ , la conductivité thermique  $\kappa$  et la masse volumique  $\rho$  pour le modèle thermique.

Notons que le rapport  $R$  pourrait être déterminé de manière empirique par intégration des courbes de charge-décharge. Cependant, l'utilisation d'un modèle viscoélastique est préférable afin d'assurer le caractère prédictif du modèle global. Le paramètre  $h_0$  a été ajusté manuellement afin de reproduire au mieux les courbes d'auto-échauffement des éprouvettes haltères. La masse volumique, quant à elle, est donnée par le fournisseur. Le (Tab.IV.3) récapitule les valeurs optimisées des paramètres du modèle pour notre matériau d'étude.

$n_A (m^{-3})$	$5.19 \times 10^{14}$
$N_A$	4
$n_B (m^{-3})$	$9.89 \times 10^{14}$
$N_B$	5
$c_1$	0.38
$c_2$	-2.1
$c_3$	3.8
$R$	0.1686
$\alpha_{dumbbell} (W \cdot mm^{-3} \cdot K^{-1})$	0.0873
$\alpha_{AE2} (W \cdot mm^{-3} \cdot K^{-1})$	0.0497
$\alpha_{AE42} (W \cdot mm^{-3} \cdot K^{-1})$	0.1807
$h_0 (W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1})$	60
$c_p (J \cdot kg^{-1} \cdot K^{-1})$	2950
$\kappa (W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1})$	0.27
$\rho (kg \cdot m^{-3})$	800

Tab.IV.3 : Valeurs des paramètres du modèle



## IV.5 Prédications du modèle

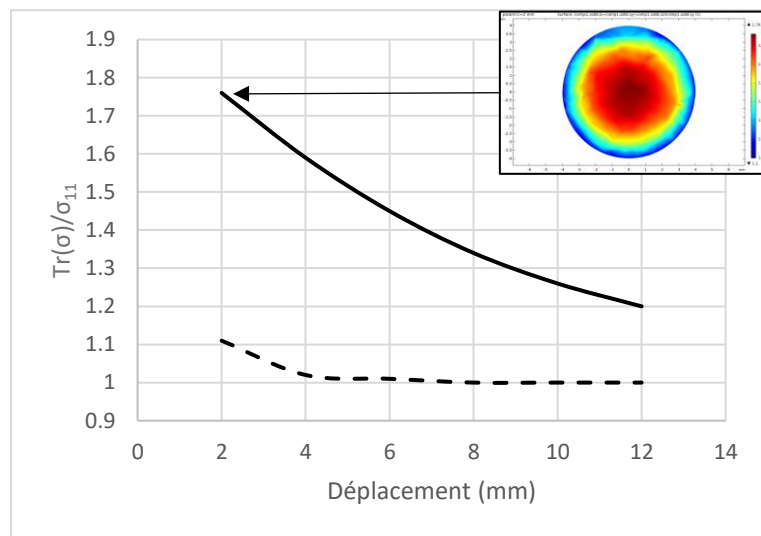
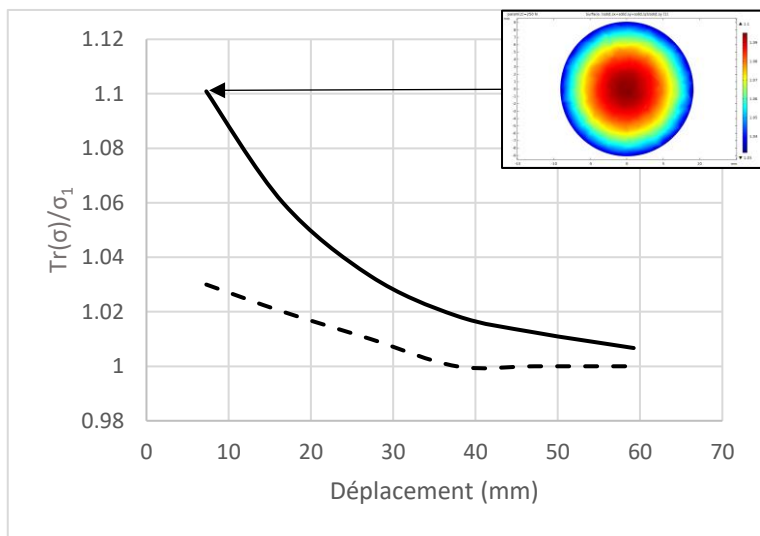
La (Fig.IV.12) montre la comparaison entre les échauffements stabilisés prédits par le modèle et ceux mesurés expérimentalement. Des barres d'erreurs de  $\pm 50\%$  sont tracées pour tenir compte de la dispersion expérimentale. La majorité des échauffements prédits reflètent la réalité. On notera que les essais de torsion et de traction-torsion sont globalement sous-évalués alors que les essais de traction sont quant à eux surévalués. L'explication de ce résultat réside peut-être dans l'hypothèse qui stipule que l'intégralité de l'énergie dissipée est convertie en chaleur. L'énergie dissipée sous forme de chaleur provient des frottements entre les composants du matériau : entre chaînes et chaînes, entre chaînes et charges et entre charges et charges. Or d'autres mécanismes dissipent de l'énergie sans générer de chaleur. Citons notamment les réarrangements structuraux et l'endommagement. Les réarrangements concernent le changement de forme des agrégats de charge ainsi que la destruction puis la reformation des ponts de réticulation. L'endommagement quant à lui concerne le désenchevêtrement et la rupture des macromolécules. Tous ces mécanismes sont donc intrinsèquement dissipatifs car ils nécessitent de l'énergie pour se produire qui ne sera pas restituée sous forme d'un retour élastique. Selon le type de chargement et la forme de l'éprouvette, les quantités d'énergie dissipée par frottement, par réarrangement et par endommagement peuvent être variables proportionnellement à l'énergie dissipée totale. Par conséquent, le rapport  $R$  devrait être discriminé en plusieurs composantes prenant chacune en compte un phénomène distinct. Si tel était le cas, nos résultats révéleraient que les frottements internes sont plus importants lors d'essais de torsion que lors d'essais de traction. La nature des contraintes au sein du matériau va en effet en ce sens. Les contraintes tangentielles induites par le cisaillement lors d'essais de torsion génèrent plus de frottements interne que la contrainte normale induite lors d'essais de traction. Notons que selon la géométrie de l'éprouvette, le niveau de triaxialité dans le matériau pour un chargement donné est susceptible de varier, générant potentiellement des contraintes tangentielles lors d'essais de traction. Une manière de quantifier la triaxialité est de rapporter la trace du tenseur des contraintes à sa valeur propre maximale tel que :

$$T = \frac{Tr(\sigma)}{\sigma_I} \quad (IV.10)$$

De cette manière, un état de traction purement uniaxial aura pour rapport de triaxialité  $T = 1$ . Pour un état de cisaillement pur, la trace du tenseur des contraintes est nulle menant à un rapport  $T$  égale à 0. Finalement, pour tous les autres états de contrainte, ce rapport sera supérieur à 1. Par conséquent, il est aisé de quantifier le niveau de triaxialité d'un chargement donné en comparant la valeur de  $T$  obtenue à 1, i.e., la valeur obtenue pour l'état de traction purement uniaxial.

La (Fig.IV.11) montre ce rapport de triaxialité en fonction du déplacement appliqué en traction pour les éprouvettes AE2 et AE42. Trois conclusions majeures peuvent être tirées pour les deux géométries d'éprouvettes. Premièrement, l'état de triaxialité est plus élevé à l'intérieur de l'échantillon qu'à sa surface. Sur les deux graphiques, l'état de triaxialité de la section médiane de l'échantillon a été tracé pour en illustrer le gradient. Deuxièmement, l'état de triaxialité diminue au fur et à mesure que le déplacement augmente. Et finalement, l'état de triaxialité dépend de la géométrie de l'éprouvette. Il est clairement mis en évidence que le rapport  $T$  est bien plus élevé pour l'échantillon AE2 et ne semble jamais atteindre la valeur de 1, même pour les grands déplacements alors que pour l'échantillon AE42, le rapport est si faible que l'échantillon peut être considéré dans un état de contrainte uniaxial. On peut conclure que la forte courbure des éprouvette AE2 favorise un état de contrainte multiaxial.

Une étude plus approfondie serait nécessaire pour mieux comprendre les mécanismes sous-jacents de ce phénomène et son impact sur le rapport  $R$ . Avoir fait l'hypothèse d'une valeur constante de ce rapport reste cependant une hypothèse forte qu'il serait nécessaire de tempérer. De plus, il est difficile de juger de la robustesse d'un tel modèle sur la base de la mesure de la température maximale en surface. Il serait nécessaire de développer des essais homogènes en traction équibiaxiale et en cisaillement, qui permettraient d'avoir un champ de température quasiment uniforme, sur lequel il serait ensuite possible d'assoir une modélisation plus fine.



(a)

(b)

Fig.IV.11 : Rapport de triaxialité vs. Déplacement (mm)

(Traits pleins : centre de l'éprouvette, pointillés : surface de l'éprouvette)

(a) AE42, (b) AE2

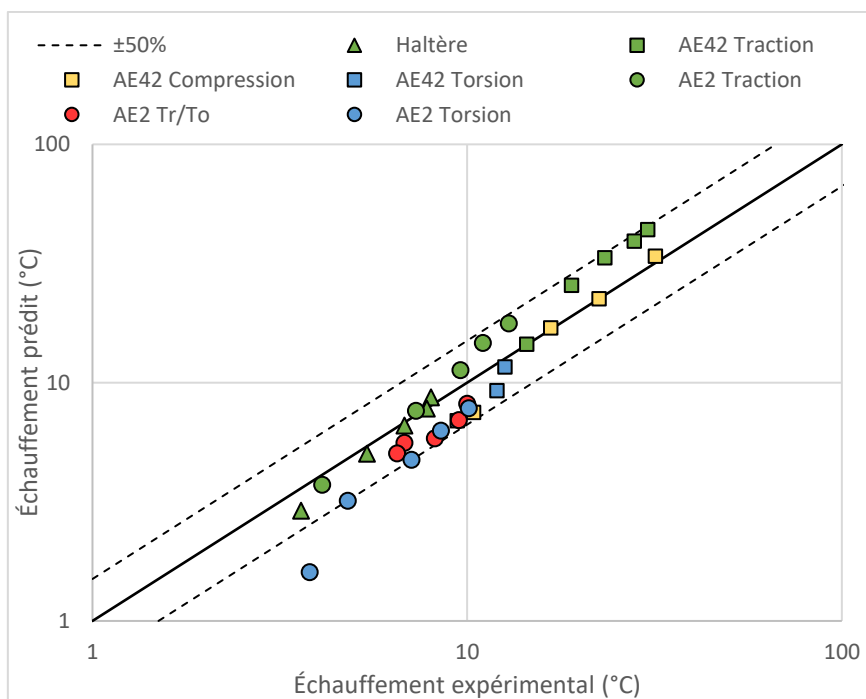


Fig.IV.12 : Échauffements stabilisés prédits vs. Échauffements stabilisés mesurés

La prédiction des échauffements stabilisés ayant été discutée, concentrons-nous sur la prédiction de la montée en température. Les figures (Fig.IV.13) à (Fig.IV.15) présentent la comparaison entre les courbes d'auto-échauffement prédites par le modèle et les courbes obtenues expérimentalement. Pour ces évolutions, on retrouve globalement les effets discutés sur la température stabilisée. Les trajets en torsion ou combinant traction et torsion conduisent à des sous-estimations des courbes d'évolution de manière évidente. C'est là un point à creuser dans un travail ultérieur.

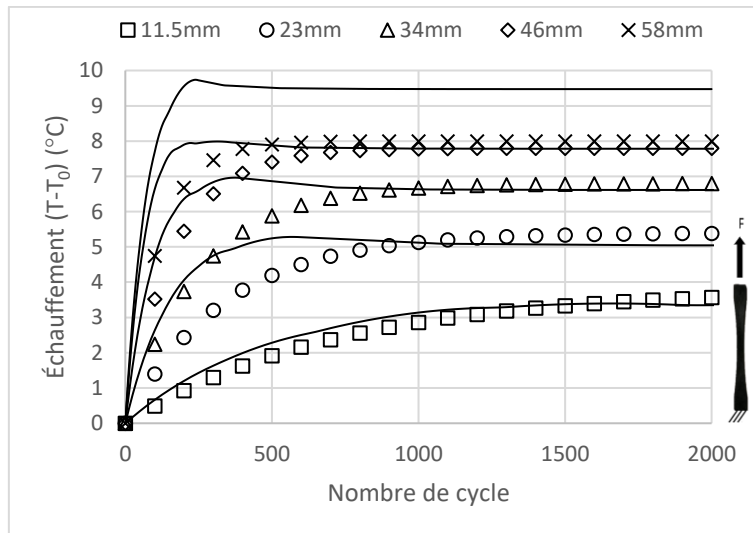


Fig.IV.13 : Courbes d'auto-échauffement d'une éprouvette haltère sous traction cyclique  
(points : données expérimentales, traits pleins : simulations)

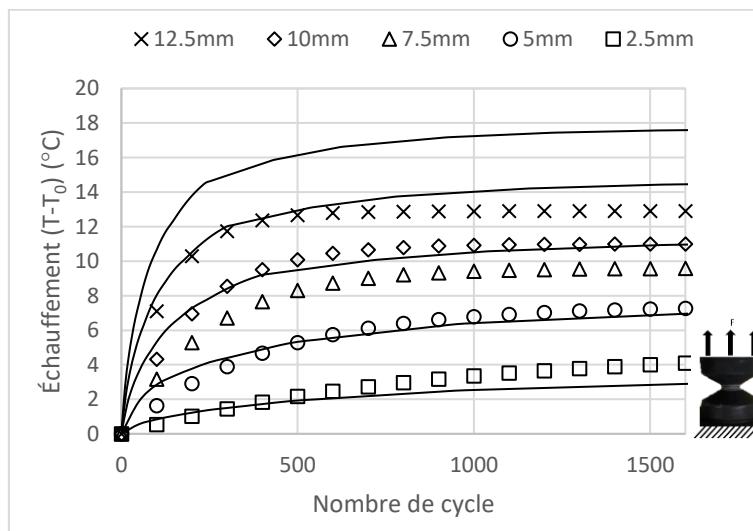


Fig.IV.14a : Courbes d'auto-échauffement d'une éprouvette AE2 sous traction cyclique  
(points : données expérimentales, traits pleins : simulations)

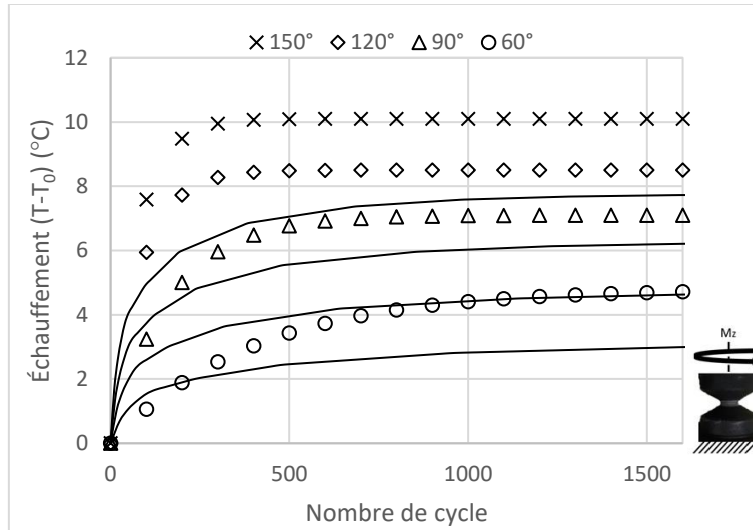


Fig.IV.14b : Courbes d'auto-échauffement d'une éprouvette AE2 sous torsion cyclique  
(points : données expérimentales, traits pleins : simulations)

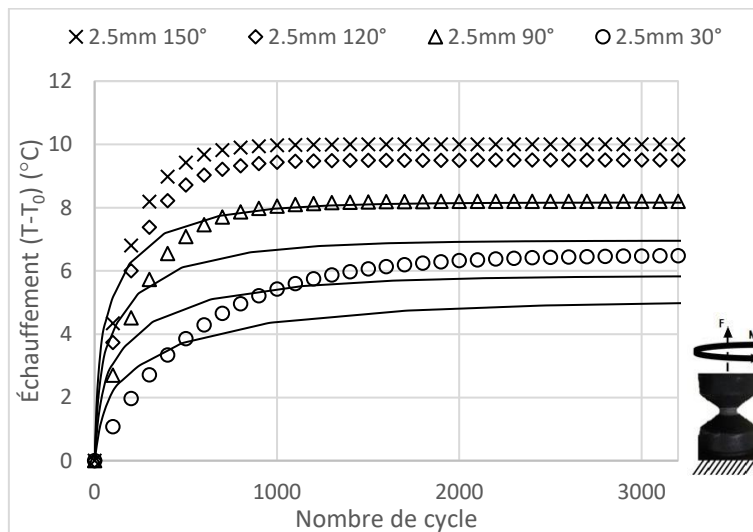


Fig.IV.14c : Courbes d'auto-échauffement d'une éprouvette AE2 sous traction-torsion cyclique  
(points : données expérimentales, traits pleins : simulations)

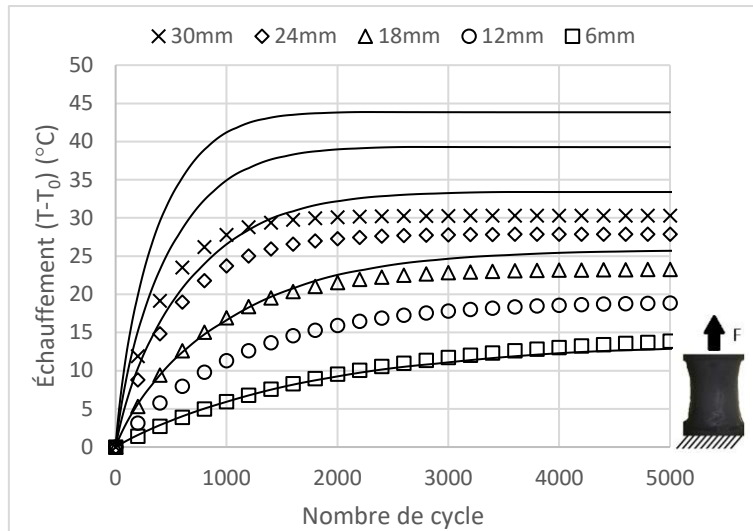


Fig.IV.15a : Courbes d'auto-échauffement d'une éprouvette AE42 sous traction cyclique  
(points : données expérimentales, traits pleins : simulations)

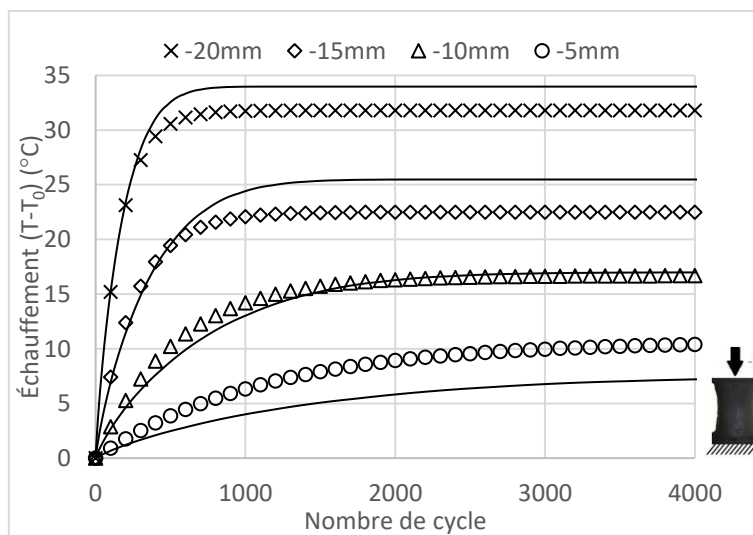


Fig.IV.15b : Courbes d'auto-échauffement d'une éprouvette AE42 sous compression cyclique  
(points : données expérimentales, traits pleins : simulations)

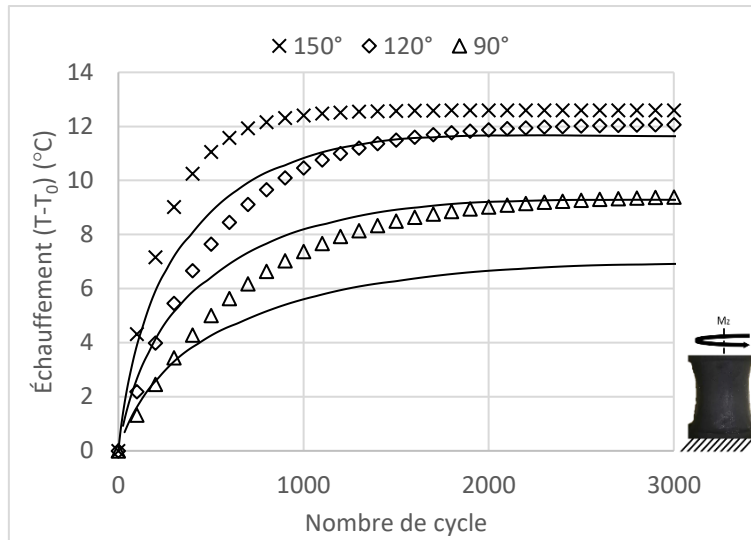


Fig.IV.15c : Courbes d'auto-échauffement d'une éprouvette AE42 sous torsion cyclique  
(points : données expérimentales, traits pleins : simulations)

Par ailleurs, l'utilisation du rapport  $R$  permet l'évaluation de l'énergie dissipée localement. Par conséquent, le modèle thermomécanique permet de prédire l'évolution complète du champ de température en fonction du temps. La (Fig.IV.16) montre un exemple de comparaison entre les champs de température initial et stabilisé prédits par le modèle et ceux mesurés à l'aide de la caméra infrarouge sur une éprouvette AE42 sous traction cyclique (déplacement maximal : 18mm). Manifestement, le modèle reproduit à l'identique le champ de température mesuré.

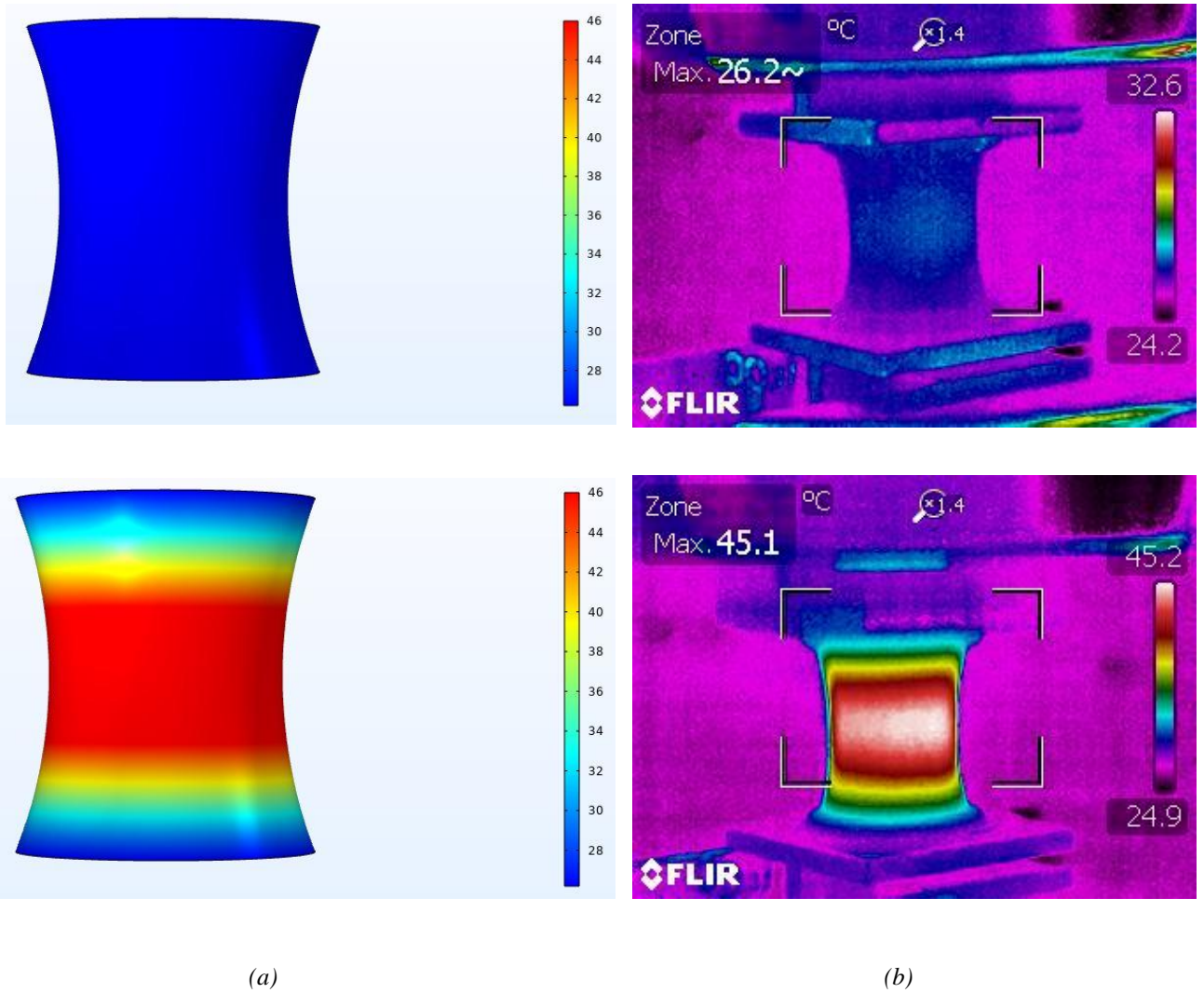


Fig.IV.16 : Champ de température en surface initial et stabilisé d'une éprouvette AE42 sous traction cyclique (déplacement maximal : 18mm)  
 (a) Simulations (b) Mesures infrarouges

D'autre part, la (Fig.IV.17) montre la l'évolution du champ de température en fonction du nombre de cycle normalisé, *i.e.*, le nombre de cycle actuel rapporté au nombre de cycle nécessaire à atteindre la température stabilisée. En dessous de chaque image se trouve les coordonnées du point correspond de la courbe. La première est la température maximale de surface mesurée et la seconde est le pourcentage du temps de montée en température.



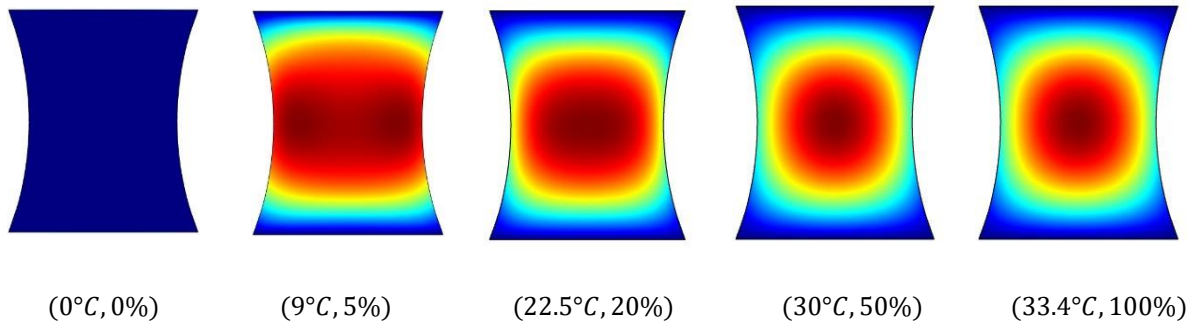
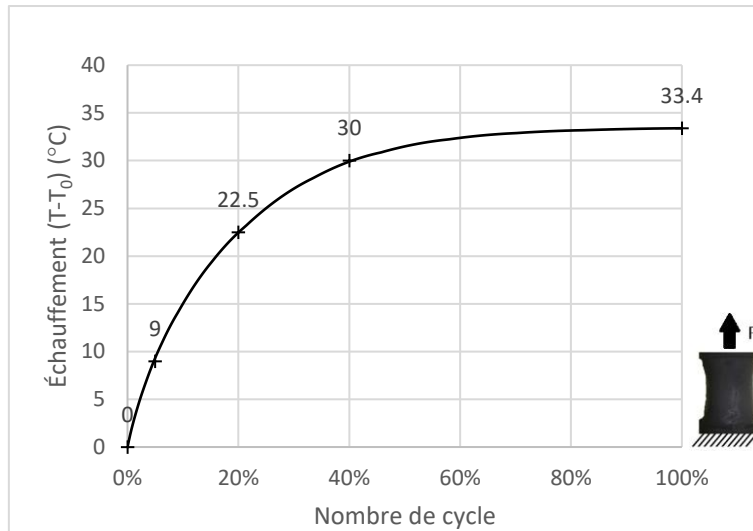


Fig.IV.17 : Évolution du champ de température interne en fonction du nombre de cycle normalisé d'une éprouvette AE42 sous traction cyclique (déplacement maximal : 18mm)

L'évolution du champ de température d'un échantillon AE42 peut être décrite en 3 étapes :

- (1) Dès les premiers cycles, l'augmentation de température provient de la surface de l'échantillon puisque c'est là que se situe l'essentiel de l'énergie de déformation, donc de l'énergie dissipée (deuxième image).
- (2) Tout de suite, la chaleur gagne le cœur de l'échantillon et semble s'y accumuler. Ceci est dû à l'association du volume de l'éprouvette AE42 et la faible conductivité thermique du NR (troisième image).
- (3) La forme globale du champ de température est établie à environ 20% du temps de stabilisation et l'évolution se résume à une augmentation de la température jusqu'à sa stabilisation sans modification majeure de la forme du champ (quatrième et cinquième images).

L'évolution du champ de température de l'éprouvette AE2 est différente (Fig.IV.18). La majorité de la chaleur est produite en surface et gagne le cœur de l'échantillon lors des premiers cycles comme pour l'AE42. En revanche, au lieu de s'accumuler au cœur de l'échantillon, la chaleur se diffuse dans toute l'éprouvette. Il est normal d'observer ce phénomène puisque toute l'énergie de déformation, et donc toute l'énergie dissipée, est concentrée sur la zone centrale de l'éprouvette en raison du rétrécissement de section. Les parties supérieure et inférieure, quant à elles, ne produisent pas de chaleur et restent donc à température ambiante au début de l'essai. Le gradient de température ainsi créé déclenche un flux de chaleur du cœur de l'éprouvette plus chaud vers les parties extrémales plus froides. La forme du champ de température est établie aux alentours de 20% du temps de stabilisation à l'instar de l'éprouvette AE42, bien que la diffusion vers les parties plus épaisses de l'éprouvette semble se poursuivre légèrement jusqu'à la fin de la montée en température.

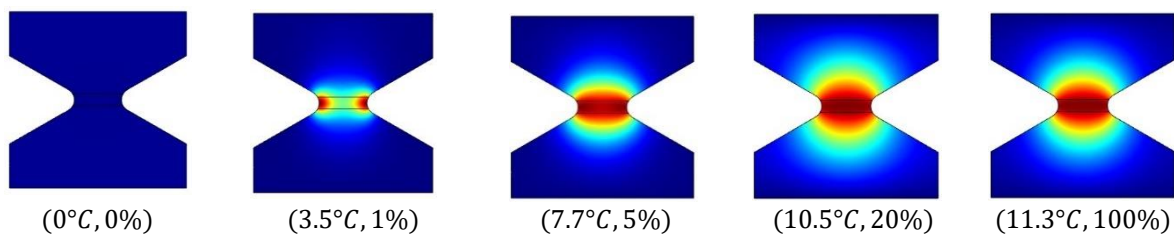
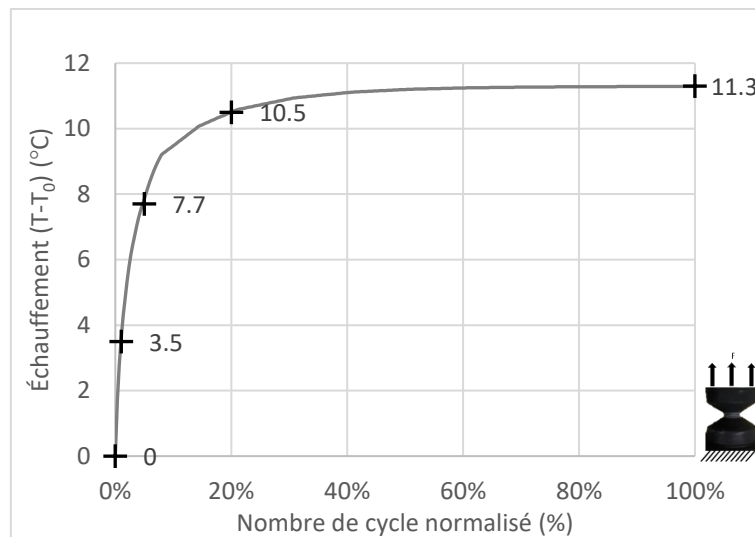


Fig.IV.18 : Évolution du champ de température interne en fonction du nombre de cycle normalisé d'une éprouvette AE2 sous traction cyclique (déplacement maximal : 7.5mm)

Ainsi le modèle thermomécanique permet l'estimation de la température interne de l'éprouvette. La différence entre la température interne et la température de surface peut être

significativement plus importante lorsque l'éprouvette est épaisse comme le montre la (Fig.IV.19). L'éprouvette AE42 sous traction cyclique (18mm de déplacement maximal) présente une différence de température de  $105 - 33.4 = 71.6^{\circ}\text{C}$  entre son cœur et sa surface alors que cette différence n'est que de  $13.3 - 11.3 = 2^{\circ}\text{C}$  pour l'AE2 sous traction cyclique (7.5mm de déplacement maximal)

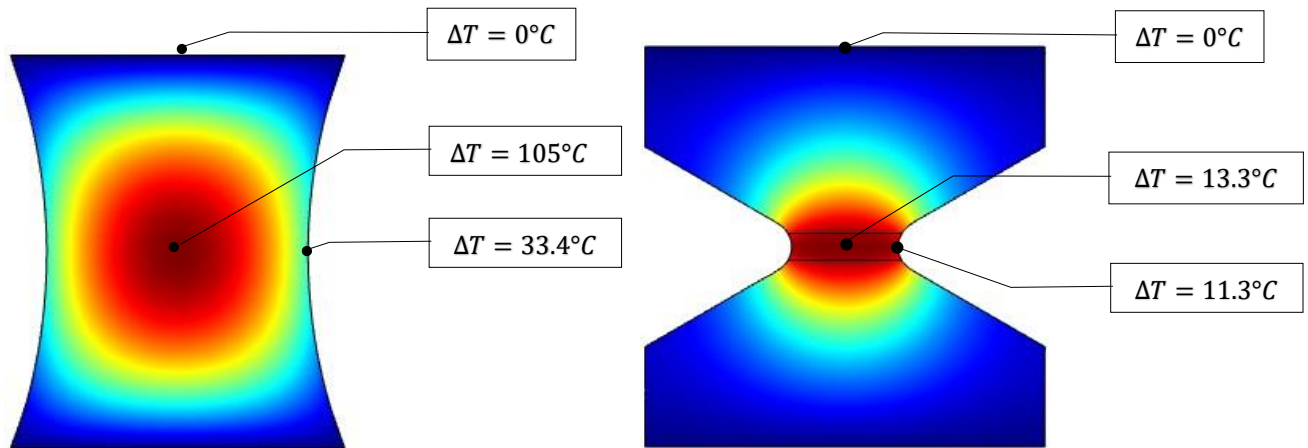


Fig.IV.19: Champ de température interne stabilisé

- (a) Éprouvette AE42 sous tension cyclique (déplacement maximal : 18mm)  
 (b) Éprouvette AE2 sous tension cyclique (déplacement maximal : 7.5mm)

#### IV.6 Discussion de la dépendance au chargement du coefficient de transfert thermique convectif

Le coefficient de transfert thermique convectif est un paramètre qui dépend du matériau étudié ainsi que de la nature et de la vitesse du fluide environnant. Dans le modèle développé, nous choisissons de le rendre dépendant de la forme de l'échantillon au moyen du déplacement axial. Le présent travail ne vise pas à mettre en évidence la dépendance à la déformation du CHTC, bien que l'alignement des macro-molécules puisse induire une anisotropie des propriétés thermiques conduisant à une dépendance indirecte à la déformation. Rappelons que le choix d'un CHTC dépendant de la forme est purement mathématique et a été fait dans la perspective d'un découplage thermo-mécanique.

Les évolutions prédites de l'auto-échauffement d'une éprouvette haltère soumise à une traction cyclique avec un CHTC constant et un CHTC dépendant de la forme sont illustrées sur la (Fig.IV.20). Bien que discutable, il est clair que l'approche proposée permet de meilleures prédictions d'auto-échauffement pour des échantillons dont la forme évolue beaucoup au cours du chargement mécanique.

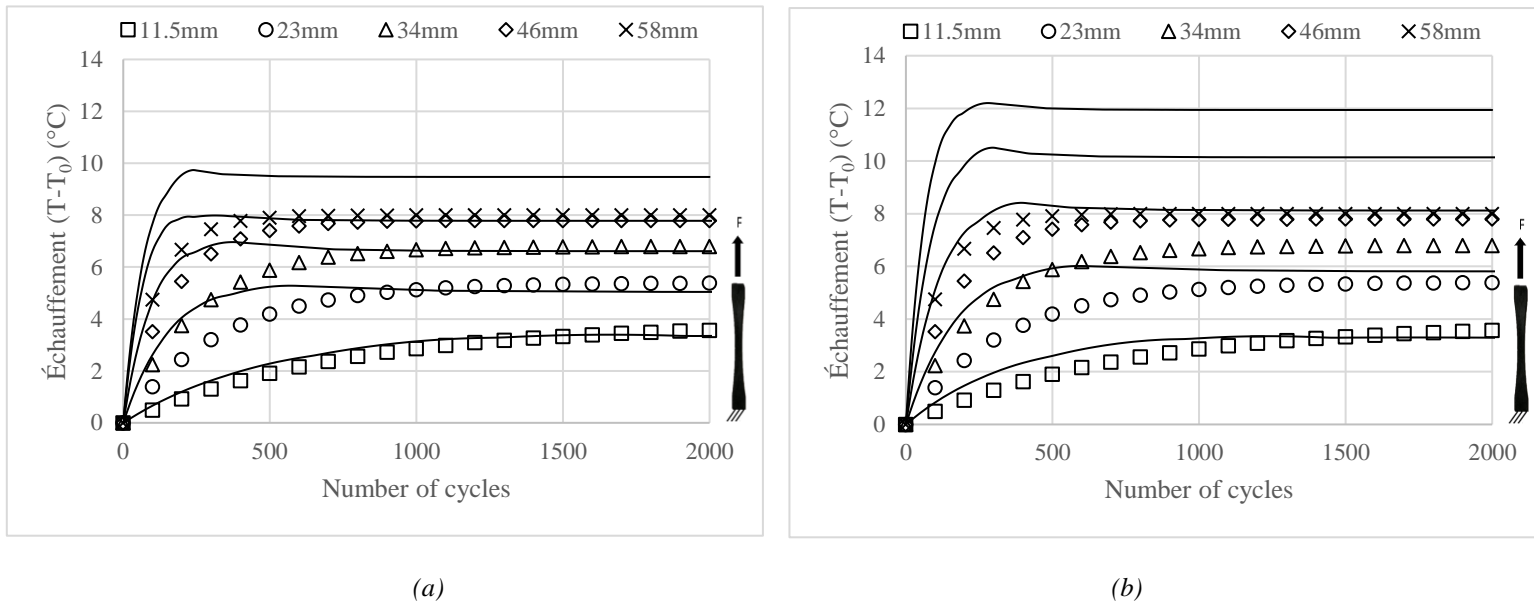


Fig.IV.20: Courbes d'auto-échauffement prédites pour une éprouvette haltère sous traction cyclique (marqueurs: données expérimentales, ligne continues: simulations)

(a) CHTC dépendant du déplacement axial et (b) CHTC constant ( $h = h_0 = 60$ )

#### IV.7 Comparaison entre couplage fort et couplage faible

Enfin, nous proposons de comparer notre modèle à couplage faible à un modèle à couplage fort proposé dans la littérature (Ovalle Rodas et al. 2016) qui a fourni des résultats précis. Le comportement mécanique du matériau de l'étude citée est décrit avec un modèle de Gent dont les paramètres ont été identifiés sur la courbe contrainte-déformation donnée par l'auteur (Fig.IV.21). Le rapport entre la densité d'énergie dissipée et la densité d'énergie de déformation a été déterminé par intégration sur un test de multi-relaxation également donné par l'auteur. La pente de l'évolution de la surface externe en fonction du déplacement reste la même puisqu'elle

ne dépend que de la géométrie. Tous les paramètres du matériau sont donnés par l'auteur et sont résumés dans le (Tab.IV.4)

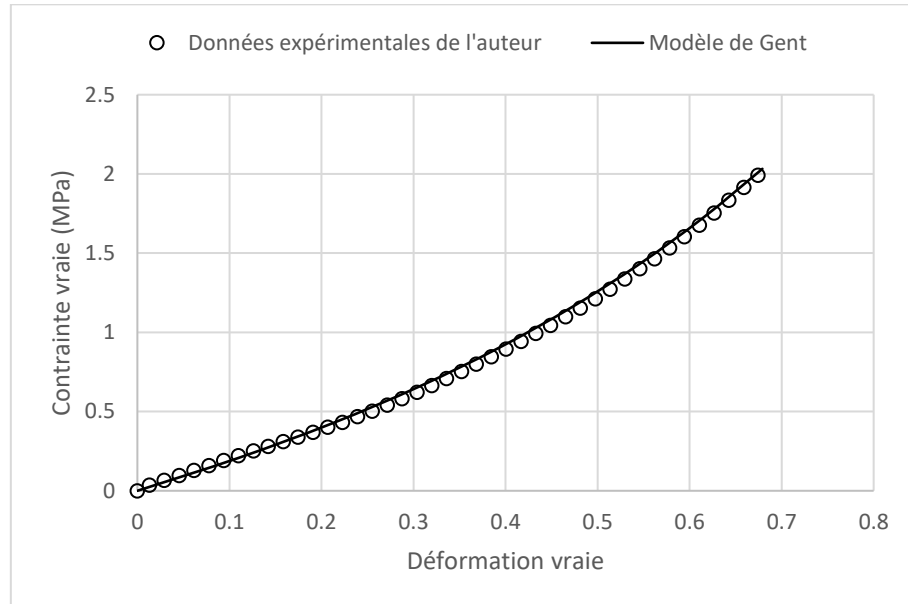


Fig.IV.21 : Courbe contrainte-déformation

(marqueurs : données de la littérature (Ovalle Rodas et al. 2016), traits pleins : modèle de Gent)

$n (m^{-3})$	$1.58 \times 10^{14}$
$N$	34
$h_0 (W.m^{-2}.K^{-1})$	17
$c_p (J.kg^{-1}.K^{-1})$	467
$\rho (kg.m^{-3})$	1500
$k (W.m^{-1}.K^{-1})$	0.127
$R$	0.33
$\alpha_{AE2} (W.mm^{-3}.K^{-1})$	0.0497
$\alpha_{haltère} (W.mm^{-3}.K^{-1})$	0.0873

Tab.IV.4 : Paramètres du SBR chargé de noir de carbone de la littérature (Ovalle Rodas et al. 2016)

La (Fig.IV.22a) présente les résultats d'une éprouvette haltère sous tension cyclique. Les deux modèles prédisent avec précision l'évolution de la température de cette géométrie. Le modèle développé dans ce chapitre conduit à des estimations satisfaisantes comparées aux valeurs expérimentales et au modèle fortement couplé. On peut cependant noter une légère surestimation du modèle à couplage faible dans le cas de l'éprouvette haltère.

Quant à l'éprouvette AE2, puisqu'aucune donnée expérimentale n'est fournie par l'auteur, nous avons comparé les estimations données par chacun des modèles. Les deux modèles sont en parfaite concordance. Cependant, le modèle développé dans ce chapitre est beaucoup moins chronophage puisqu'il ne nécessite que quelques minutes de simulation contre plusieurs heures pour le modèle proposé par (Ovalle Rodas et al. 2016)

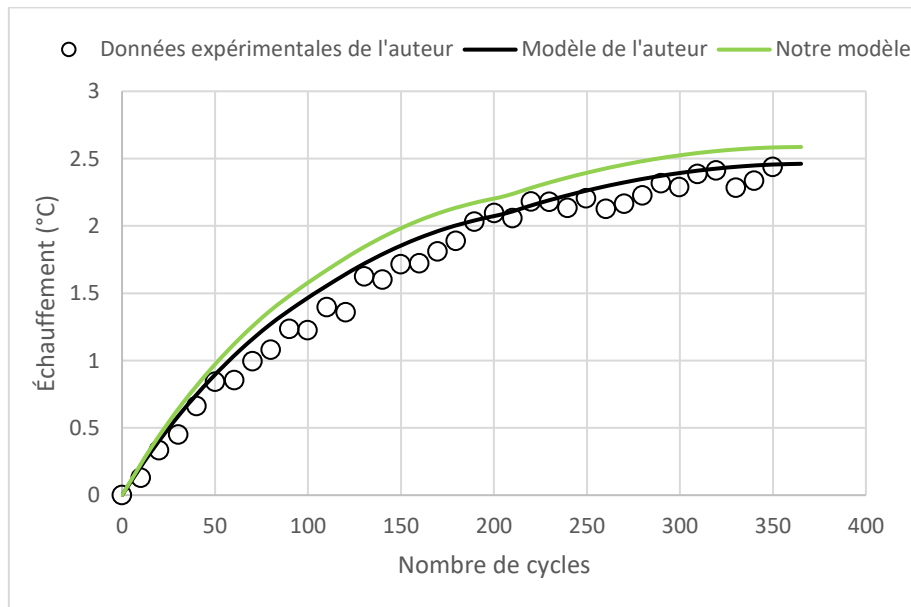


Fig.IV.22a : Courbe d'auto-échauffement d'une éprouvette haltère sous traction cyclique  
 $(\lambda_{max} = 1.2 \Leftrightarrow dL = 11.6 \text{ mm} ; \dot{\epsilon} = 1 \text{ s}^{-1} \Leftrightarrow f = 3.175 \text{ Hz})$

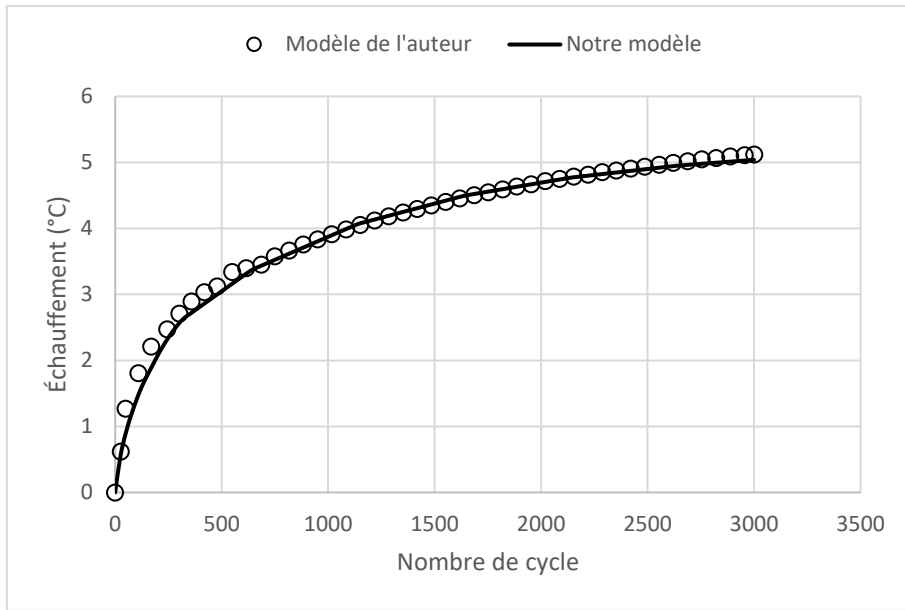


Fig.IV.22b : Courbe d'auto-échauffement d'une éprouvette AE2 sous traction cyclique  
 ( $\lambda_{max} = 1.1 \Leftrightarrow dL = 3 \text{ mm} ; f = 5 \text{ Hz}$ )

## IV.8 Conclusion du chapitre IV

Dans ce chapitre, la dépendance de l'auto-échauffement au chemin de chargement a été étudié. Le phénomène d'auto-échauffement est davantage conditionné par la quantité de matière sollicitée et par les variations de la forme de la pièce que par le trajet de chargement lui-même. Plus le matériau change de forme, plus il y a de dissipation d'énergie par frottements interne. Ainsi, même si on s'attend à ce que la torsion génère plus de frottements internes en raison des efforts tangentiels inhérents à cette sollicitation, le volume déformé en torsion est plus faible qu'en traction, notamment pour l'éprouvette AE2. Il apparaît que la traction et la compression, qui induisent une forte variation de la forme de l'éprouvette, engendrent davantage de frottement induisant des élévations de températures plus importantes. D'autre part, plus les pièces sont massives, plus il sera difficile pour la chaleur d'être évacuée et plus le matériau s'échauffera. Finalement, le temps de montée en température ne semble dépendre ni du chemin de chargement, ni de son intensité mais uniquement de la géométrie de l'éprouvette.

Dans un second temps, ce travail visait le développement d'un modèle à couplage faible de prédiction de l'auto-échauffement. Le découplage est justifié par la différence entre les temps caractéristiques du problème mécanique et du problème thermique (environ 3 ordres de grandeur). Pour permettre ce couplage faible, la configuration non déformée de l'éprouvette doit être utilisée pour le calcul thermique. Afin de tenir compte des changements de surface externe induite par la déformation qui impacte la capacité de l'éprouvette à se refroidir, le coefficient de transfert de chaleur convectif est rendu dépendant du chargement imposé afin que son produit avec la surface externe que l'on retrouve dans les conditions aux limites soit maintenu égal à celui normalement obtenu dans la configuration déformée. Finalement, un bon accord entre le modèle et les données expérimentales est trouvé pour les chargements en traction. Les estimations sont plus faibles dans le cas de la torsion et de la traction-torsion notamment pour la géométrie AE2. Par conséquent, l'hypothèse que la fraction d'énergie dissipée réellement convertie en chaleur soit variable d'une géométrie d'éprouvette à une autre est soulevée. Pour tenir compte de cette hypothèse, une piste d'amélioration est proposée faisant intervenir un paramètre de multiaxialité. Les prédictions du nouveau modèle tenant compte de ce paramètre sont considérablement plus précises que celles du premier modèle bien qu'une légère sous-estimation persiste pour les chargements les plus faibles. Enfin, puisque le modèle prédit la quantité d'énergie dissipée localement, il est capable d'évaluer l'évolution complète



du champ de température permettant une estimation de la température interne de l'échantillon qui peut être significativement plus élevée lors de l'utilisation de pièces massives.

Par ailleurs, le modèle développé dans ce manuscrit a été comparé au modèle proposé par (Ovalle Rodas et al. 2016) pour opposer les couplages faible et fort. Les résultats des deux modèles sont équivalents. La différence réside dans le temps de calcul. Seulement quelques minutes sont nécessaires pour un couplage faible alors qu'un couplage fort nécessite plusieurs heures de calcul. Il convient de noter que le matériau étudié par (Ovalle Rodas et al. 2016) est un SBR chargé de noir de carbone, ce qui signifie que le modèle proposé fonctionne pour au moins deux types d'élastomère : le NR et le SBR.

En perspective, une étude approfondie pour comprendre le rôle de la triaxialité et de la géométrie des éprouvettes dans la dissipation d'énergie serait un premier pas. Puis, reprendre les fondements posés par ce modèle et y implémenter une discrimination du rapport  $R$  en une composante de dissipation par frottement et une composante de dissipation par modifications structurales (réarrangements et endommagement) permettrait d'unifier les prédictions pour les différentes géométries d'éprouvettes.

## V. Prédiction de durée de vie des élastomères sous chargement multiaxial : Prise en compte de l'auto-échauffement

### V.1 Introduction

Dans les chapitres *II* et *III*, la dépendance à la température du comportement en fatigue à été mise en évidence. D'une part, l'auto-échauffement mène à une réduction de la durée de vie lorsque les températures mises en jeu sont élevées, i.e., pour les pièces massives et, d'autre part, un chargement thermique prolongé mène au vieillissement du matériau réduisant également la durée de vie. D'autres auteurs ont décelé des phénomènes similaires.

(Christophe Cruanes 2015) a montré que des éprouvettes en polychloroprène (CR) sollicitées en traction cyclique, laissées au repos le temps que leur température baisse, puis sollicitées de nouveau, avaient une durée de vie plus longue que des éprouvettes n'ayant pas pu refroidir. Rappelons que le CR est un élastomère sujet à la cristallisation sous-tension et que la température inhibe ce phénomène. L'auteur explique que la baisse de température lors de la deuxième étape, favorise la cristallisation en front de fissure lors des cycles de chargement suivant, limitant ainsi la coalescence et la propagation de fissure. L'auteur donne le nom de rodage dynamique à cette méthode permettant d'allonger la durée de vie du matériau.

(Ruellan et al. 2019) a également étudié l'impact de la température sur la cristallisation sous-tension induite lors de chargement en fatigue d'une éprouvette AE42 en NR soumise à différentes températures et à différents rapports de charge. L'auteur a montré que plus la température est élevée, moins les cristallites apparaissent en front de fissures et plus la durée de vie est faible. À 110°C aucune cristallite ne se forme quel que soit le chargement en raison de la température trop élevée.

(Ayoub et al. 2012) a obtenu des durées de vie plus faibles pour des éprouvettes AE42 que pour des éprouvettes AE2 (en SBR) pour des chargements identiques, les premières présentant des échauffements plus élevés en raison de leur volume plus important. L'auteur n'a pas proposé d'explication de ce phénomène. Notons que le SBR n'est pas sujet à la cristallisation sous-tension, ce qui suggère que d'autres phénomènes liés à la température ont un impact négatif sur la durée de vie des élastomères.

L'influence de la température sur le comportement en fatigue des élastomères a donc été mis en évidence par plusieurs auteurs (Ayoub et al. 2012; Christophe Cruanes 2015; Ruellan et al. 2019) pour divers matériaux (SBR, CR et NR). Plus la température est élevée plus la durée de vie est faible, que le matériau soit cristallisable ou non. En revanche, il semble qu'aucun auteur n'ait tenté de prendre en compte ce phénomène dans un modèle de prédiction de durée de vie. Dans ce chapitre, un tel modèle est développé, permettant, d'une part, d'unifier les durées de vie en fatigue d'éprouvettes soumises à des températures environnantes élevées et, d'autre part, de prendre en compte l'auto-échauffement afin de prédire avec plus de précision les durées de vie des éprouvettes quelle que soit leur géométrie.

Le chapitre est organisé de la manière suivante :

Dans un premier temps, nous exposons la procédure expérimentale et les résultats essentiels.

Nous détaillons, dans un second temps, la méthodologie utilisée pour construire le modèle thermomécanique en fatigue.

Enfin, les résultats du modèle de prédiction de durée de vie, prenant en compte l'auto-échauffement, sont présentés et discutés.

## **V.2 Procédure expérimentale et résultats**

Dans un premier temps, des essais de fatigue en traction uniaxiale sur des éprouvettes haltères soumises à différentes températures environnantes ont été réalisés sur un dispositif de fatigue uniaxiale Instron Electropuls 3000®. Une enceinte thermique Instron 1198® a permis de réaliser ces essais à des températures différentes de la température ambiante. Des photographies de la machine d'essais et de l'enceinte thermique sont données en Annexe 2.

Le signal périodique utilisé pour le chargement cyclique est triangulaire. La géométrie de l'échantillon est illustrée sur la figure (Fig.V.1). Les conditions de température et les détails de chargement sont reportés dans les tableaux (Tab.V.1) et (Tab.V.2). Pour faciliter la lecture des graphiques, chaque température correspond à une couleur sur les graphiques.

L'éprouvette haltère étant très fine (épaisseur : 2 mm), la rupture se produit quelques cycles après l'apparition d'une microfissure. Ainsi, le critère expérimental de fin de vie est la rupture de l'éprouvette.

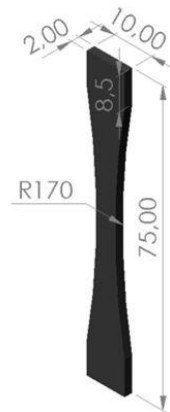


Fig.V.1 : Éprouvette haltère utilisée pour les essais de fatigue en température (dimensions en mm)

Température absolue (°C)	Code couleur
20 (température ambiante)	
90	
110	

Tab.V.1: Températures utilisées pour les essais de fatigue

Déplacement maximal (mm)	Fréquence (Hz)	Nombre d'essai pour chaque température
58	2	3
46.4	2.5	3
34.8	3.333	3
23.2	5	3

Tab.V.2 : Chargements mécaniques appliqués aux éprouvettes

Les courbes de Wöhler ainsi obtenues sont reportées sur la figure (Fig.V.2). L'impact de la température sur le comportement en fatigue est manifeste. Plus la température est élevée plus la durée de vie est faible. On remarque que les courbes de Wöhler sont parallèles quelle que soit la température. Rappelons que dans le chapitre III, le vieillissement thermo-oxydant impactait la pente de la courbe de Wöhler. Par conséquent, les résultats de la figure (Fig.V.2) indiquent qu'*a priori* aucun vieillissement ne s'est produit durant ces essais si l'on se fie aux résultats établis dans le chapitre concernant le vieillissement par thermo-oxydation. En effet, le vieillissement s'accompagnait d'un changement de pente des courbes de Wöhler ce qui n'est pas le cas ici puisque la pente de la courbe de Wöhler reste globalement constante. Cela est très probablement dû à la durée de l'exposition, les durées des essais étant vraisemblablement inférieures aux temps d'induction du phénomène de vieillissement. Ainsi, un simple glissement par l'intermédiaire d'une équivalence temps-température permettrait d'obtenir une courbe maîtresse. C'est ce que nous nous proposons de faire dans la prochaine partie.

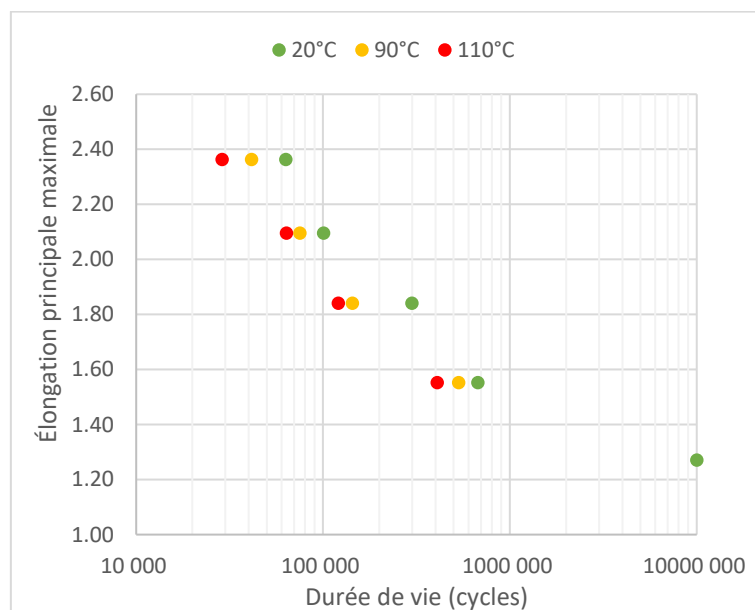


Fig.V.2: Courbes de Wöhler obtenue à différentes températures

### V.3 Prise en compte de la température dans la prédiction de durée de vie

Le critère de durée de vie choisi est la contrainte équivalente développée dans le paragraphe II.2.4 de ce manuscrit :

$$\sigma_{eq} = nkT \frac{(2\lambda^2 - \lambda^{2m} - \lambda^{-2(m+1)})(\lambda + m\lambda^{2m-1} - (m+1)\lambda^{-2m-3})}{(2\lambda - m\lambda^{2m-1} + (m+1)\lambda^{-2m-3})}$$

Où  $n$  est la densité de chaîne de la matrice élastomère,  $k$  est la constante de Boltzmann,  $T$  est la température absolue,  $\lambda$  est l'élongation principale maximale et  $m$  est un paramètre de multiaxialité défini dans le tenseur gradient de déformation écrit dans les directions principales:

$$F = \text{diag}(\lambda, \lambda^m, \lambda^{-(m+1)})$$

Dans le cas présent, l'éprouvette haltère est en état de traction uniaxiale, i.e.,  $m = -\frac{1}{2}$ . La contrainte équivalente prend donc la forme suivante :

$$\sigma_{eq} = 2nkT \frac{(\lambda^2 - \lambda^{-1})(\lambda - \lambda^{-2})}{(2\lambda - \lambda^{-2})} \quad (V.1)$$

Rappelons que l'évolution de la variable d'endommagement s'écrit,

$$D = 1 - \left( 1 - (1+a) \frac{(\sigma_{eq})^a}{A} N \right)^{\frac{1}{1+a}} \quad (V.2)$$

Et que la fin de vie correspond au matériau complètement endommagé, i.e.,  $D = 1$  et  $N = N_f$  :

$$N_f = \frac{A}{1+a} \cdot (\sigma_{eq})^{-a} \quad (V.2.1)$$

Où  $a$  et  $A$  sont des paramètres à identifier. Le premier,  $a$ , agit sur la pente de la courbe de Wöhler. Il est le paramètre le plus impacté par le vieillissement thermo-oxydant (chapitre II). Le second,  $A$ , est un coefficient permettant une translation horizontale de la courbe de Wöhler. C'est donc sur ce paramètre que la température semble avoir un impact. Pour modéliser cette évolution du paramètre  $A$ , nous utilisons une équivalence temps. La loi d'Arrhenius est utilisée pour calculer un facteur de glissement  $a_T$  :

$$a_T = e^{-\frac{E_a}{R}\left(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_0}\right)} \quad (V.3)$$

Où  $E_a$  est l'énergie d'activation,  $R$  est la constante universelle des gaz parfaits,  $T$  est la température de vieillissement et  $T_0$  est la température de référence.

Le paramètre  $A_r$  est la valeur réduite du paramètre  $A$  tel que :

$$A = a_T \times A_r \quad (V.4)$$

Rappelons que le comportement du matériau d'étude est quasiment indépendant de la température (paragraphe IV.3). Le module d'élasticité  $\mu = nkT$  est donc supposé constant. Ainsi, en s'inspirant du principe de conservation de la masse (Eq.III.7) introduit par (Boyce 1986; Arruda, Boyce, et Jayachandran 1995; Zairi et al. 2010), on peut faire l'hypothèse que l'évolution de la densité de chaîne en fonction de la température suit la relation suivante :

$$nT = n_0T_0 \quad (V.5)$$

La figure (Fig.V.3) compare les durées de vie prédites à l'aide de l'équivalence temps-température et les durées de vie expérimentales. Le modèle reproduit très bien les données expérimentales avec une tolérance de  $\pm 50\%$ . Le tableau (Tab.V.3) récapitule les paramètres utilisés.

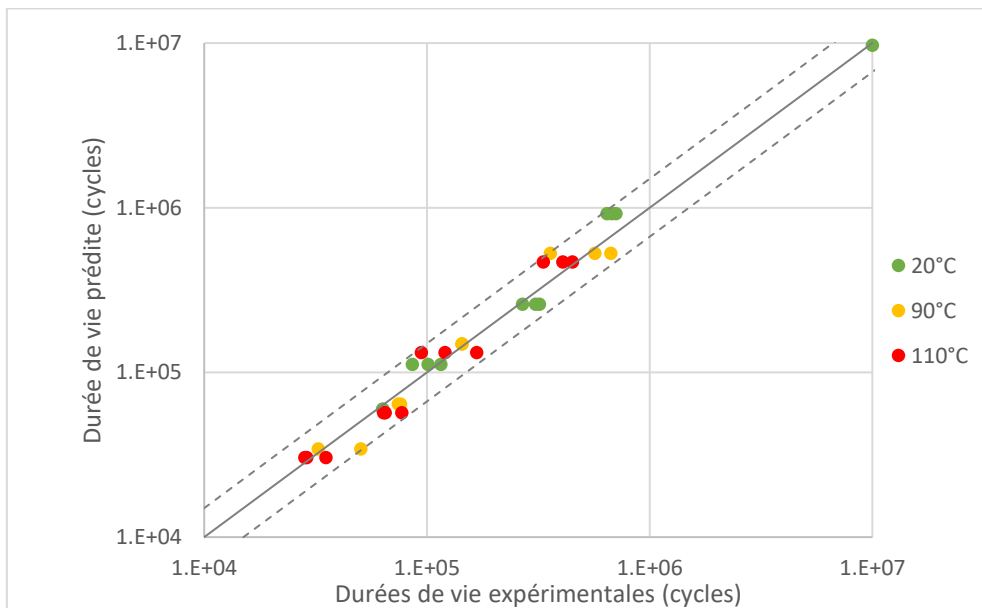


Fig.V.3: Courbes de Wöhler obtenue à différentes températures et ajustement des paramètres  $A$  et  $a$

$n_0 (m^{-3})$	$4.32 \times 10^{14}$
$E_a (kJ/mol)$	7.0
$T_0 (°C)$	20
$A (MPa)$	$8.0 \times 10^6$
$a$	1.95

*Tab.V.3 : Paramètres du modèle*

#### **V.4 Prise en compte de l'auto-échauffement dans la prédiction de durée de vie**

Le modèle développé dans le paragraphe précédent a été appliqué aux essais multiaxiaux réalisés sur les éprouvettes AE2 et AE42. Le tableau (Tab.V.4) rappelle les chargements mécaniques appliqués aux éprouvettes ainsi que les auto-échauffements stabilisés prédits par le modèle thermomécanique développé dans le chapitre IV. Les échauffements mesurés expérimentalement n'ont pas été utilisés volontairement afin de proposer un modèle totalement prédictif.



Éprouvette	Déplacement maximal (mm)	Angle de torsion (°)	Fréquence (Hz)	$\Delta T$ (°C)
Haltère	58	0	2	9.0
Haltère	46.4	0	2.5	8.7
Haltère	34.8	0	3.333	7.3
Haltère	23.2	0	5	5.6
Haltère	11.6	0	10	3.2
AE2	12.5	0	1.6	10.0
AE2	10	0	2	8.3
AE2	7.5	0	2.667	6.3
AE2	5	0	4	4.3
AE2	2.5	0	8	2.1
AE2	0	150	1.6	3.4
AE2	0	120	2	2.8
AE2	0	90	2.667	2.1
AE2	0	60	4	1.4
AE2	2.5	150	1.6	3.6
AE2	2.5	120	2	3.1
AE2	2.5	90	2.667	2.6
AE2	2.5	60	4	2.3
AE2	2.5	30	8	2.1
AE42	30	0	2	34.3
AE42	24	0	2.5	30.0
AE42	18	0	3.333	25.0
AE42	12	0	5	18.7
AE42	6	0	10	10.6
AE42	0	180	1.6	9.3
AE42	0	150	2	8.0
AE42	0	120	2.5	6.4
AE42	0	90	3.333	4.8
AE42	6	150	2	20.5

AE42	6	120	2.667	19.5
AE42	6	30	10	16.7

Tab.V.4: Paramètres des essais multiaxiaux et auto-échauffements stabilisés correspondants

Pour chaque essai, le paramètre  $A_T$  dépendant de la température de l'éprouvette a été calculé à l'aide des équations (Eq.V.3) et (Eq.V.4) permettant une prédiction plus précise des durées de vie des éprouvettes. Le figure (Fig.V.4b) montre la comparaison entre les données expérimentales et les prédictions isothermes, i.e., avec un paramètre  $A$  constant, et la figure (Fig.V.4b) présente la même comparaison mais avec les prédictions thermomécaniques, i.e., avec les paramètres  $A_T$  dépendant de l'auto-échauffement. Bien qu'une légère dispersion subsiste, on voit nettement que le modèle thermomécanique permet une prédiction plus précise notamment pour les éprouvettes AE42 présentant des auto-échauffements importants.

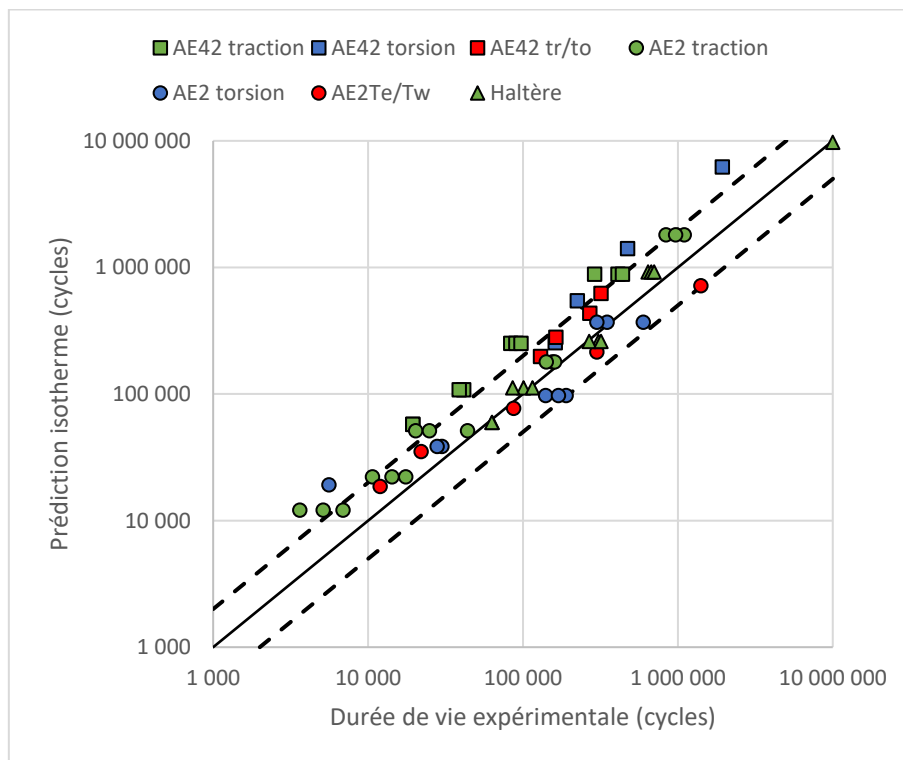


Fig.V.4a : Prédictions isothermes (cycles) vs. Durées de vie expérimentales (cycles)

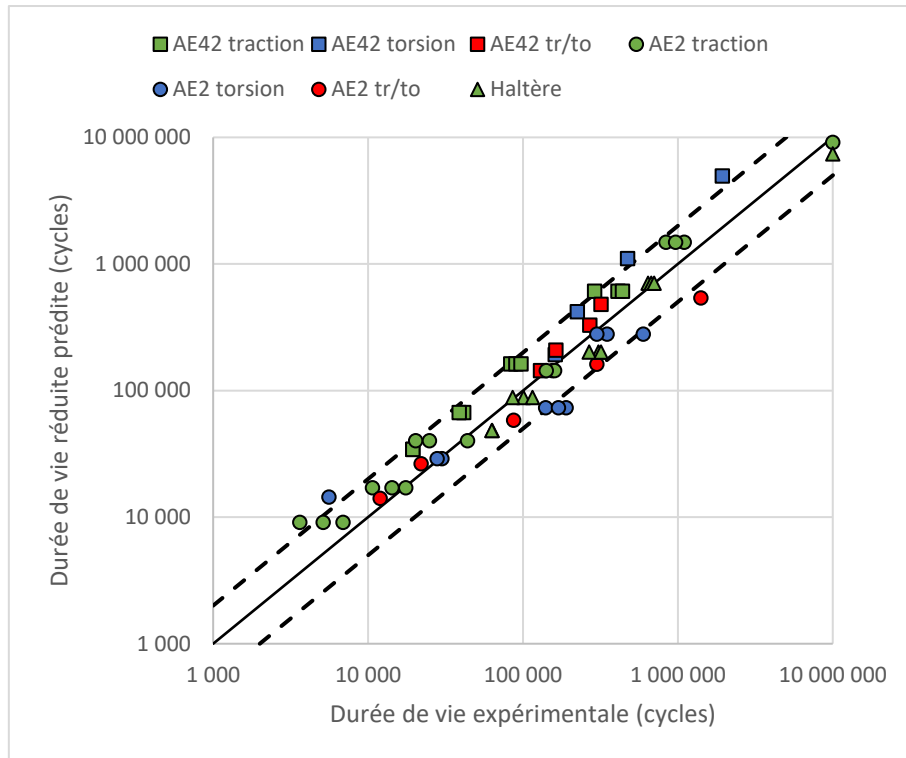


Fig.V.4b : Prédications thermomécaniques en utilisant les échauffements prédits par le modèle du chapitre IV (cycles) vs. Durées de vie expérimentales (cycles)

Afin de quantifier le gain de précision, l'erreur quadratique relative moyenne (EQRМ) a été calculée pour chaque géométrie d'éprouvette grâce à l'équation (Eq.V.6). Le tableau (Tab.V.5) donne les valeurs de l'EQRМ des prédictions isothermes et thermomécaniques pour chaque éprouvette.

$$EQRМ = \frac{\sum_{i=1}^M \left( \frac{(\overline{N}_{f_i} - N_{f_i})}{N_{f_i}} \right)^2}{M} \quad (V.6)$$

Où  $\overline{N}_{f_i}$  est la durée de vie prédite pour l'essai  $i$ ,  $N_{f_i}$  est la durée de vie expérimentale de l'essai  $i$  et  $M$  est le nombre d'essai.

Sans surprise, c'est pour la géométrie AE42 que le gain de précision est le plus important. Prendre en compte l'auto-échauffement à l'aide d'une équivalence temps-température permet de diviser l'EQRМ par 4 pour cette géométrie. Pour la géométrie AE2, l'EQRМ est divisée par

2 et pour l'haltère, le gain de précision est négligeable. L'auto-échauffement n'a donc pas d'impact sur la durée de vie de ces éprouvettes en raison de leur finesse.

	EQRM des prédictions isothermes	EQRM des prédictions thermomécaniques (Échauffements prédits)	EQRM des prédictions thermomécaniques (Échauffements expérimentaux)
Haltère	4.85%	4.68%	4.67%
AE2	77.74%	32.78%	31.60%
AE42	238.08%	57.72%	50.56%
Toutes les éprouvettes	111.27%	34.05%	32.50%

*Tab.V.5 : Récapitulatif des erreurs commises sur les prédictions de durées de vie isothermes et thermomécaniques*

Afin de vérifier les capacités prédictives du modèle, la même procédure a été suivie en utilisant, cette fois-ci, les échauffements mesurés expérimentalement, au lieu de ceux prédits par le modèle du chapitre IV, pour calculer le facteur de glissement.

La figure (Fig.V.4c) compare les durées de vie prédites par le modèle thermomécanique utilisant les échauffements expérimentaux et les durées de vie expérimentales. Un léger gain de précision est observé comparé au modèle utilisant les échauffements prédits. La quantification de ce gain de précision est faite par le calcul de l'EQRM (Eq.V.6). Les valeurs d'EQRM correspondantes sont reportées dans le tableau (Tab.V.5).

Le modèle de prédiction de l'auto-échauffement sous-estime légèrement les températures atteintes pour les éprouvettes sollicitées en torsion et en traction-torsion. De fait, l'utilisation des échauffements expérimentaux permet d'obtenir des prédictions thermomécaniques de durée de vie plus précises. On remarque cependant que ce gain de précision est de seulement  $34.05 - 32.50 = 1.45\%$  lorsque l'on considère toutes les éprouvettes. Par conséquent, le modèle thermomécanique de prédiction de durée de vie utilisant les échauffements prédits peut être

considéré capable de prendre en compte les effets de la température et de l'auto-échauffement sur la durée de vie en fatigue des élastomères.

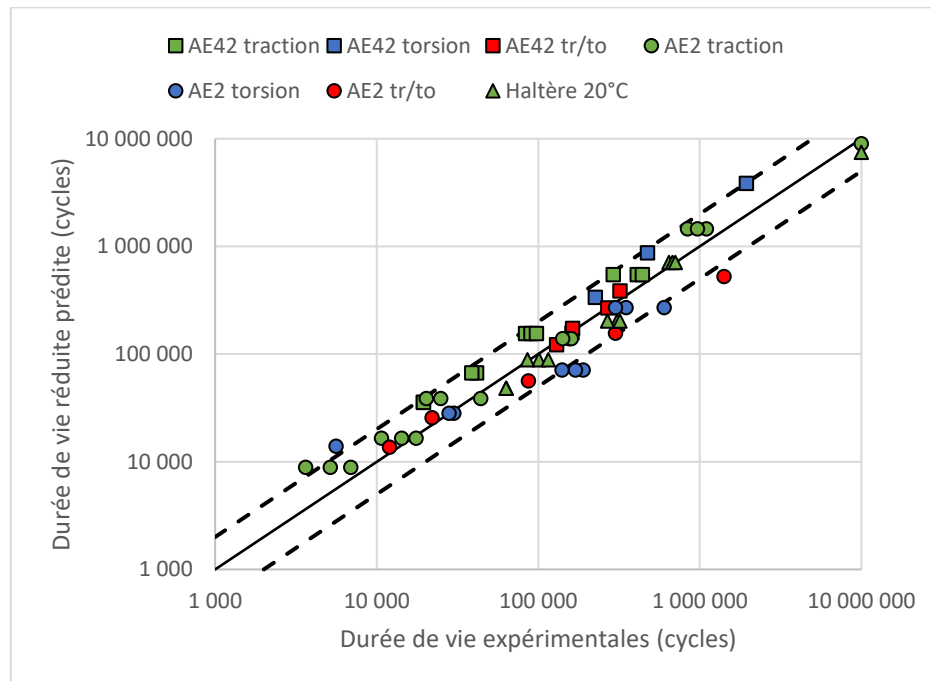


Fig.V.4c : Prédications thermomécaniques en utilisant les échauffements mesurés expérimentalement (cycles) vs. Durées de vie expérimentales (cycles)

Enfin, un tel formalisme permet l'unification des durées de vie de toutes les éprouvettes autour d'une unique courbe de Wöhler indépendamment de la température environnante et indépendamment de l'auto-échauffement, appelée courbe de Wöhler maîtresse illustrée par la figure (Fig.V.5). On trouve en ordonnée la Contrainte équivalente en MPa, qui ne dépend pas de la température puisque le comportement du matériau d'étude n'en dépend pas non plus, et en abscisse la durée de vie réduite  $N_{f_r}$  calculée à l'aide du facteur de glissement :

$$N_f = N_{f_r} \times a_T \quad (V.7)$$

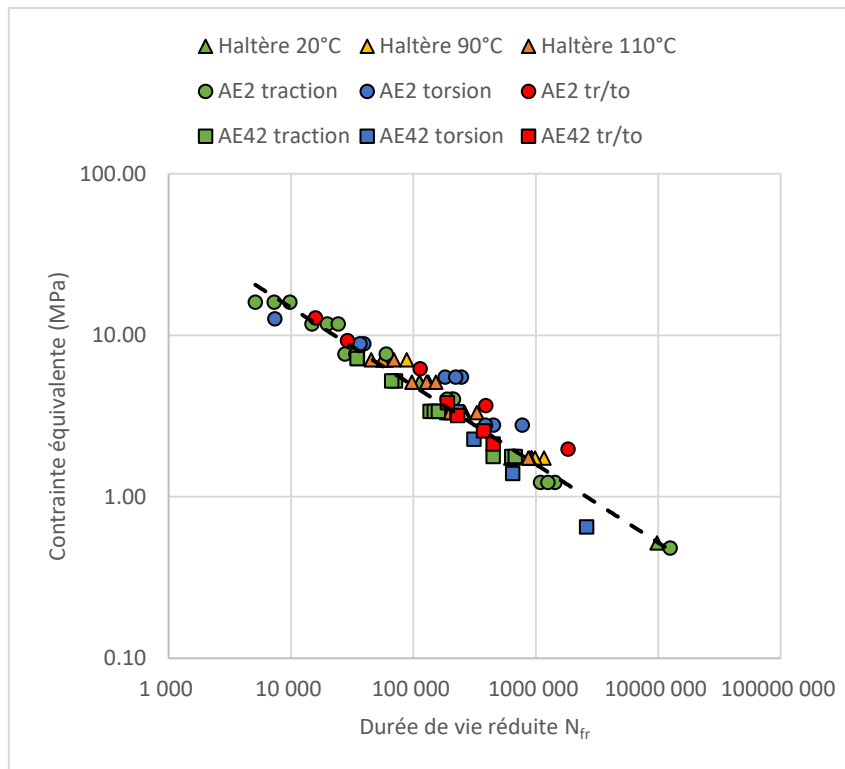


Fig.V.5 : Courbes de Wöhler maître

## V.5 Conclusion du chapitre V

Le but de ce chapitre était de prendre en compte la température dans la prédiction de la durée de vie. Pour ce faire, une enceinte thermique a été greffée au dispositif de fatigue uniaxiale afin de faire des essais à température contrôlée. Les résultats expérimentaux ont montré que la température opère une translation de la courbe de Wöhler vers des durées de vie plus courtes sans agir sur la pente de cette dernière. Par ailleurs, dans le chapitre *III*, il avait été montré que la pente de la courbe de Wöhler est impactée par le vieillissement. Plus les conditions de vieillissement sont rudes, plus la pente est faible. Rappelons que dans le chapitre *II*, les résultats expérimentaux ont montré que les éprouvettes épaisses présentant des auto-échauffements importants ont des durées de vie plus courtes. Leur courbe de Wöhler est parallèle à celles des éprouvettes plus fines mais est translatée vers des durées de vie plus faibles. À la lumière de ces précédents résultats, on peut conclure que, d'une part, aucun vieillissement n'a le temps de se produire lors des essais que nous avons effectués à température contrôlée et, d'autre part, l'auto-échauffement ne génère pas de vieillissement du fait des durées d'essais inférieures au temps d'induction de l'oxydation. En effet, si le chargement mécanique est important il induit un échauffement élevé mais l'essai est trop court pour que le vieillissement thermo-oxydant ne se produise. Si le chargement mécanique est faible, l'essai est suffisamment long pour que le vieillissement thermique se produise mais la température est trop faible.

Pour modéliser les effets de la température, une translation de la courbe de Wöhler par l'intermédiaire d'une équivalence temps-température semble tout indiquée. La loi d'Arrhenius permet de calculer le facteur de glissement afin de définir le nouveau paramètre de la théorie de l'endommagement continu  $A_r = A/a_T$  réduisant la durée de vie à mesure que la température augmente. Pour chaque chargement mécanique et pour chaque éprouvette, la température prédite par le modèle d'auto-échauffement du chapitre *IV* est utilisée pour calculer le paramètre  $A_r$  correspondant permettant une nouvelle estimation de durée de vie prenant en compte les effets de la température. Ces prédictions thermomécaniques ont été comparées aux prédictions isothermes obtenues dans le chapitre *II*. Un gain de précision non négligeable est observé. Le gain est d'autant plus grand que les valeurs d'auto-échauffement sont élevées. L'estimation de l'Erreur Quadratique Relative Moyenne (EQRM) a permis de quantifier ce gain de précision. L'erreur est divisée par 4 pour la géométrie AE42 présentant les échauffements les plus élevés, par 2 pour la géométrie AE2 et elle reste inchangée pour l'haltère dont les échauffements sont

très faibles en raison de la finesse de l'éprouvette. Soulignons le fait que les valeurs d'auto-échauffements utilisées pour améliorer la prédiction sont calculées à l'aide du modèle thermomécanique du chapitre *IV* rendant le modèle de prédiction de durée de vie entièrement prédictif.

Finalement, un tel formalisme permet l'unification des durées de vie de toutes les éprouvettes autour d'une unique courbe de Wöhler indépendamment de la température environnante et indépendamment de l'auto-échauffement. Cette courbe de Wöhler maîtresse apparaît donc comme un prédicteur de durée vie tenant compte de la multiaxialité du chargement et de la température.



# CONCLUSION GENERALE ET PERSPECTIVES

Le présent travail s'inscrit dans le cadre de l'étude du comportement en fatigue des matériaux élastomères et la prédiction de leur durée de vie en prenant en compte les effets de la température et du vieillissement thermo-oxydant.

Dans un premier temps, le choix d'un critère multiaxial de durée de vie était nécessaire. Une étude bibliographique attentive a permis de conclure que les modèles existants sont rarement basés sur des considérations physiques. La théorie de l'endommagement continu combinée à l'hypothèse de la contrainte effective développée par (Lemaitre et Chaboche, 1990) fait figure d'exception. Elle fut ensuite combinée au concept de densité d'énergie de fissuration de (Mars 2002) par (Ayoub et al. 2012) et appliquée aux élastomères permettant des prédictions de durées de vie précises. En revanche, les paramètres du modèle proposé par l'auteur ne sont pas reliés aux paramètres structuraux du matériau ce qui représente naturellement une faiblesse du modèle. Pour pallier cet aspect, une contrainte équivalente faisant apparaître les paramètres du matériau a été développée dans le premier chapitre de ce manuscrit permettant des estimations précises de durées de vie. Finalement, le chargement moyen est pris en compte en utilisant l'amplitude de la contrainte équivalente plutôt que sa valeur maximale faisant de ce critère un outil intéressant de prédiction de durée de vie des élastomères sous sollicitations multiaxiales et non relaxantes. De plus, l'outil développé ne nécessite l'identification que des 2 paramètres de la théorie de l'endommagement continu.

Dans un second temps, les effets du vieillissement thermo-oxydant sur le comportement en fatigue ont été étudiés. L'étude bibliographique a révélé un manque en matière de résultats expérimentaux et d'outils prédictifs à ce sujet faisant des présents travaux les pionniers de ce champ d'étude. Des essais de fatigue sur des éprouvettes vieilles ont été menés révélant une dépendance complexe du comportement en fatigue à l'histoire du chargement thermique. Pour modéliser un tel phénomène, un couplage entre la microstructure du matériau et les paramètres du modèle de prédiction de durée de vie développé dans le chapitre II, est nécessaire. D'abord, l'évolution de la microstructure du matériau en fonction des conditions de vieillissement a été décrite par l'intermédiaire d'une équivalence temps-température appliquée à la densité de chaîne de la matrice élastomère. Ensuite, les paramètres de la théorie de l'endommagement continu ont été ajustés sur les courbes de Wöhler obtenues pour chaque condition de

vieillessement. Il apparaît alors que l'un des paramètres est indépendant du vieillissement, alors que le second, la pente de la courbe de Wöhler, est inversement proportionnelle à la longueur des chaînes. Une telle modélisation permet une estimation de durée de vie quelle que soit les conditions de vieillissement testées. Pour prouver le caractère prédictif du modèle, celui-ci a été testé sur d'autres conditions de vieillissement impliquant des températures n'ayant pas été utilisées pour l'ajustement des paramètres. Compte tenu de la dispersion souvent observée lors d'essais de fatigue, les prédictions du modèle sont très satisfaisantes.

Le troisième chapitre consistait à développer un modèle de prédiction de l'auto-échauffement des élastomères sous chargements multiaxiaux. Les modèles existants dans la littérature sont bien souvent empiriques à l'exception de celui proposé par (Ovalle Rodas et al. 2016). Ce dernier nécessitait un couplage thermomécanique fort menant à des temps de calculs décourageants. De plus, le modèle a été testé uniquement sur des essais de traction uniaxiale cycliques. Pour pallier ceci, un modèle thermomécanique multiaxial à couplage faible a été développé dans ce troisième chapitre. Un tel couplage est justifié par la différence significative entre le temps caractéristique du problème mécanique et celui du problème thermique. Le modèle nécessite d'abord l'évaluation, grâce à une loi de comportement viscoélastique, de la densité d'énergie dissipée supposée constante sur toute la durée de l'essai quel que soit le trajet de chargement. Ensuite, cette densité d'énergie dissipée est utilisée comme donnée d'entrée dans la simulation du problème thermique. Le couplage faible impose l'utilisation de la configuration non déformée du matériau. Pour tenir compte des variations de surface externes impactant l'évacuation de chaleur, le coefficient de transfert thermique convectif est rendu dépendant de la déformation de sorte que son produit avec la surface externe soit maintenu égal à celui normalement obtenu dans la configuration déformée. Finalement, les simulations de la montée en température du matériau reproduisent correctement les données expérimentales à l'exception de celles mesurées sur l'éprouvette AE2. Pour cette raison, l'hypothèse que la fraction d'énergie dissipée réellement convertie en chaleur varie avec l'état de triaxialité est soulevée. Enfin, puisque le modèle prédit la quantité d'énergie dissipée localement, il est capable d'évaluer l'évolution complète du champ de température permettant une estimation de la température interne de l'échantillon qui peut être significativement plus élevée lors de l'utilisation de pièces massives. Par ailleurs, le modèle développé dans ce manuscrit a été comparé au modèle proposé par (Ovalle Rodas et al. 2016) pour opposer les couplages faible et fort. Les résultats des deux modèles sont équivalents mais seulement quelques minutes de

calcul sont nécessaires pour un couplage faible alors qu'un couplage fort nécessite plusieurs heures de simulation.

Finalement, le quatrième chapitre consistait à évaluer et prédire l'impact de l'auto-échauffement sur le comportement en fatigue des élastomères. Les études proposées dans la littérature sont principalement d'ordre expérimental et ne mentionnent pas d'outil prédictif. Une fois encore, les travaux réalisés dans cette thèse de doctorat semblent être les premiers en la matière. Des essais de fatigue réalisés à température contrôlée ont montré que la température a un impact négatif sur la durée de vie en fatigue. Cependant, la pente de la courbe de Wöhler ne semble pas dépendre de la température de l'essai ce qui laisse entendre que, pour nos conditions d'essais, aucun vieillissement thermique n'a le temps de se produire (chapitre *III*). Notons que l'auto-échauffement des pièces massives lors de sollicitations cycliques semble avoir le même impact (chapitre *II*). En effet, si le chargement mécanique est important, il induit un échauffement élevé mais le matériau rompt avant que le vieillissement thermo-oxydant ne se produise. Si le chargement mécanique est faible, l'essai est suffisamment long pour que le vieillissement thermique se produise mais la température est trop faible. Pour modéliser ce phénomène, une translation de la courbe de Wöhler par l'intermédiaire d'une équivalence temps-température semble pertinente. Pour chaque chargement mécanique et pour chaque éprouvette, la température prédite par le modèle d'auto-échauffement du chapitre *IV* est utilisée pour calculer le facteur de glissement correspondant permettant une nouvelle estimation de durée de vie prenant en compte les effets de la température. Ces prédictions thermomécaniques ont été comparées aux prédictions isothermes obtenues dans le chapitre *II*. Un gain de précision non négligeable est observé. Ce gain est d'autant plus grand que l'échauffement est élevé. Soulignons le fait que les valeurs d'auto-échauffements utilisées pour améliorer la prédiction sont calculées à l'aide du modèle thermomécanique du chapitre *IV* rendant le modèle thermomécanique de prédictions de durées de vie entièrement prédictif. Finalement, un tel formalisme permet l'unification des durées de vie de toutes les éprouvettes autour d'une unique courbe de Wöhler indépendamment de la température environnante et indépendamment de l'auto-échauffement. Cette courbe de Wöhler maîtresse apparaît donc comme un prédicteur de durée vie tenant compte de la multiaxialité du chargement et de la température.

Pour conclure, ces trois années de recherche ont permis de développer un outil puissant de prédiction de durée des élastomères basé uniquement sur des considérations microstructurales. Cet outil prédictif prend en compte un bon nombre de phénomènes physiques mis en jeu dans

la fatigue des élastomères à savoir, la multiaxialité et la non-relaxation du chargement mécanique, la température d'utilisation du matériau et le vieillissement thermo-oxydant. Ces travaux ont également soulevé des interrogations. L'impact de la multiaxialité sur la quantité d'énergie dissipée réellement convertie en chaleur pourrait faire l'objet d'une étude approfondie afin d'en comprendre les mécanismes sous-jacents. D'autre part, des essais de fatigue entrecoupés de période de vieillissement permettraient d'étudier le caractère cumulatif de la variable d'endommagement lorsque les paramètres  $A$  et  $a$  de la théorie de l'endommagement continu sont rendus dépendant de la température et des conditions de vieillissement respectivement. Finalement, reprendre les bases posées par ce modèle et y implémenter les effets de la cristallisation sous-tension permettrait de prendre en compte tous les phénomènes physiques impliqués dans la fatigue des élastomères.

## VI. Annexes

### VI.1 Annexe 1

Montrons que la modèle de Gent est équivalent au modèle Néo-Hookéen dans le cas de petites déformations.

Rappelons que la modèle de Gent s'écrit :

$$W_{GENT} = -\frac{\mu J_m}{2} \ln \left( 1 - \frac{I_1 - 3}{J_m} \right)$$

Et que le modèle Néo-Hookéen s'écrit :

$$W_{NEO} = C_0 (I_1 - 3)$$

Avec  $C_0 = \frac{\mu}{2}$

Le développement en séries de Taylor au voisinage de 0 de  $\ln(1 - u)$  est :

$$\ln(1 - u) = -u - \frac{u^2}{2} - \frac{u^3}{3} - \dots - \frac{u^n}{n} + o(u^n)$$

Dans l'hypothèse des petites déformations, seul le terme d'ordre 1 est significatif. En remplaçant  $u$  par  $\frac{I_1 - 3}{J_m}$ , on obtient :

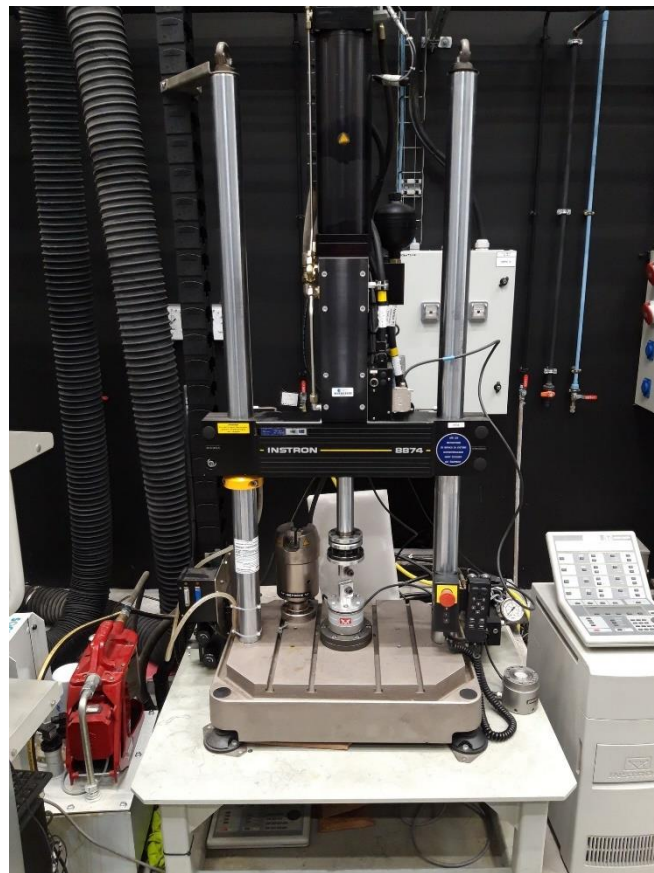
$$\begin{aligned} \ln \left( 1 - \frac{I_1 - 3}{J_m} \right) &\simeq -\frac{I_1 - 3}{J_m} \\ -\frac{\mu J_m}{2} \ln \left( 1 - \frac{I_1 - 3}{J_m} \right) &\simeq +\frac{\mu}{2} (I_1 - 3) \end{aligned}$$

$$W_{GENT} \simeq W_{NEO}$$

## VI.2 Annexe 2

Cette annexe comporte les photographies et les détails techniques des dispositifs utilisés pour la campagne expérimentale réalisée durant cette thèse de doctorat.

### VI.2.1 Dispositif d'essais de fatigue multiaxiaux



*Fig.VI.1 : Dispositif d'essais de fatigue multiaxiaux Instron 8874®*

Le dispositif d'essais de fatigue multiaxiaux Instron 8874® a été équipé d'une cellule de force multiaxiale de  $1\text{ kN}$  et  $25\text{ N.m}$ . La course du vérin d'hydraulique est de  $120\text{ mm}$  en translation et  $270^\circ$  en rotation. Les mors hydrauliques d'origine n'ont pas été utilisés car leur masse importante ( $17\text{ kg}$ ) génère des efforts inertiels qui faussent les mesures dynamiques lors des essais de fatigue. De nouveaux mors légers en aluminium ont été conçus afin d'obtenir des

mesures plus précises. Le plan de ses mors, réalisés sur le logiciel de Conception Assistée par Ordinateur (CAO) SolidWorks®, sont donnés par la figure (Fig.VI.2). Ils ont été conçus spécialement pour les éprouvettes diabolos (AE2 et AE42) qui y sont fixées à l'aide d'une goupille de diamètre  $\varnothing 10\text{ mm}$  dans le perçage prévu à cet effet.

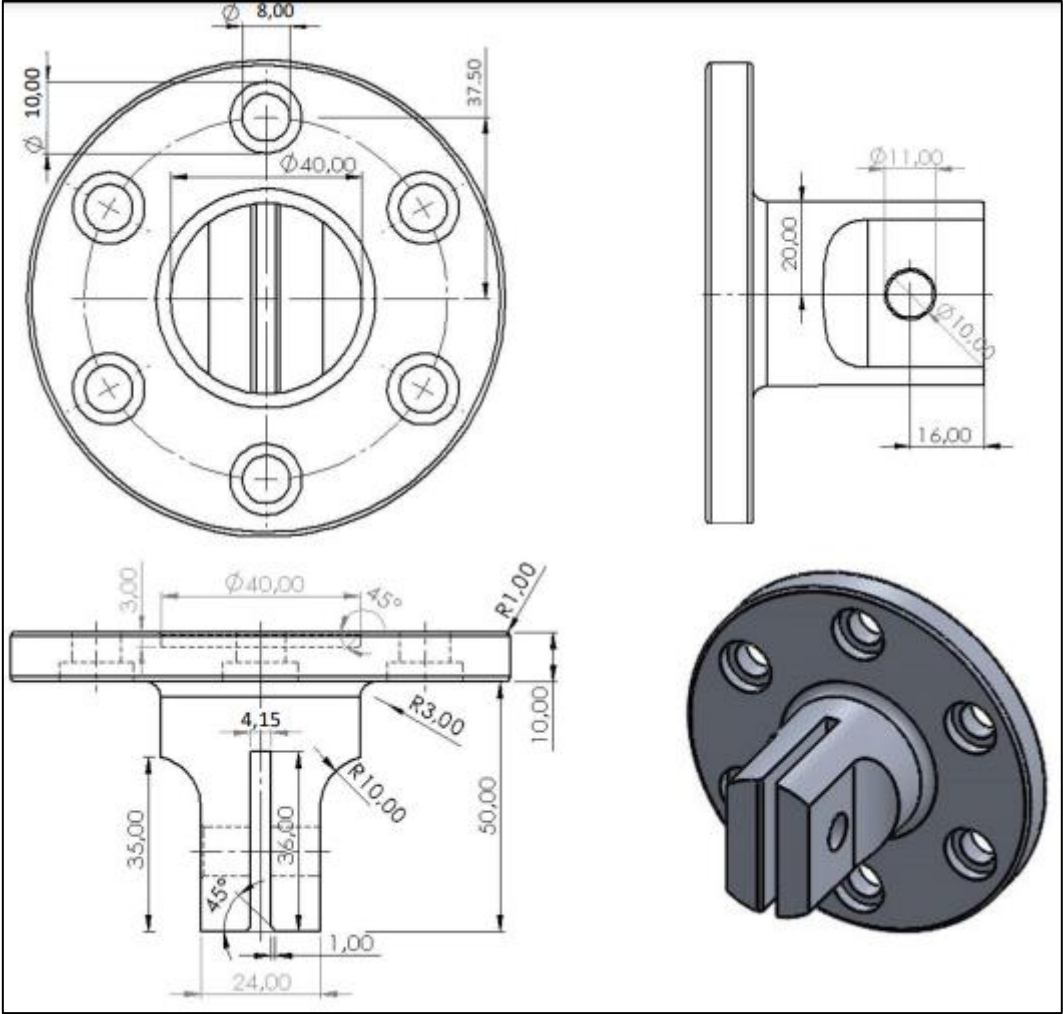


Fig.VI.2 : Plan des mors pour éprouvettes diabolo (AE2 et AE42) en aluminium adaptable à l'Instron8874

## VI.2.2 Dispositif d'essais de fatigue uniaxiaux



Fig.VI.3 : Dispositif d'essais de fatigue uniaxiaux Instron Electropuls 3000®

Le dispositif d'essais de fatigue uniaxiaux Instron Electropuls 3000® a été équipé d'une cellule de force de 1  $kN$ . Les mors d'origine en acier, à serrage manuel, ont été utilisés. Leur masse relativement faible (3  $kg$ ) n'a pas posée de problème pour l'acquisition des données. Enfin, la course du vérin est de 60  $mm$ .



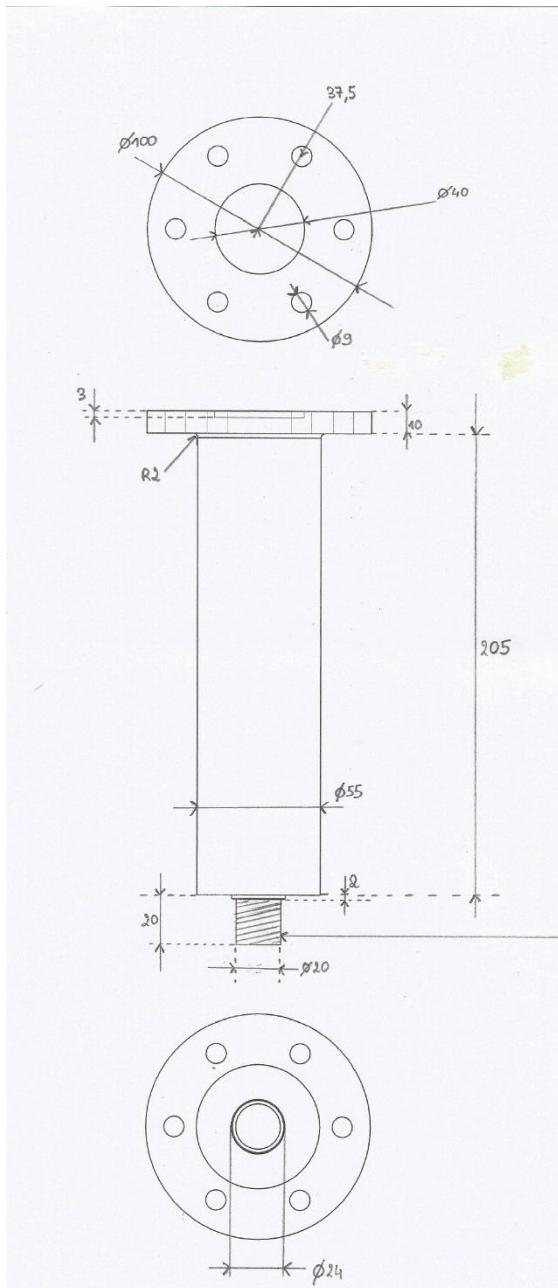
### VI.2.3 Dispositif d'essais de fatigue à température contrôlée

Les essais de fatigue à température contrôlée ont été réalisés sur la machine Instron Electropuls 3000® à laquelle nous avons greffé une enceinte thermique Instron 1198®.

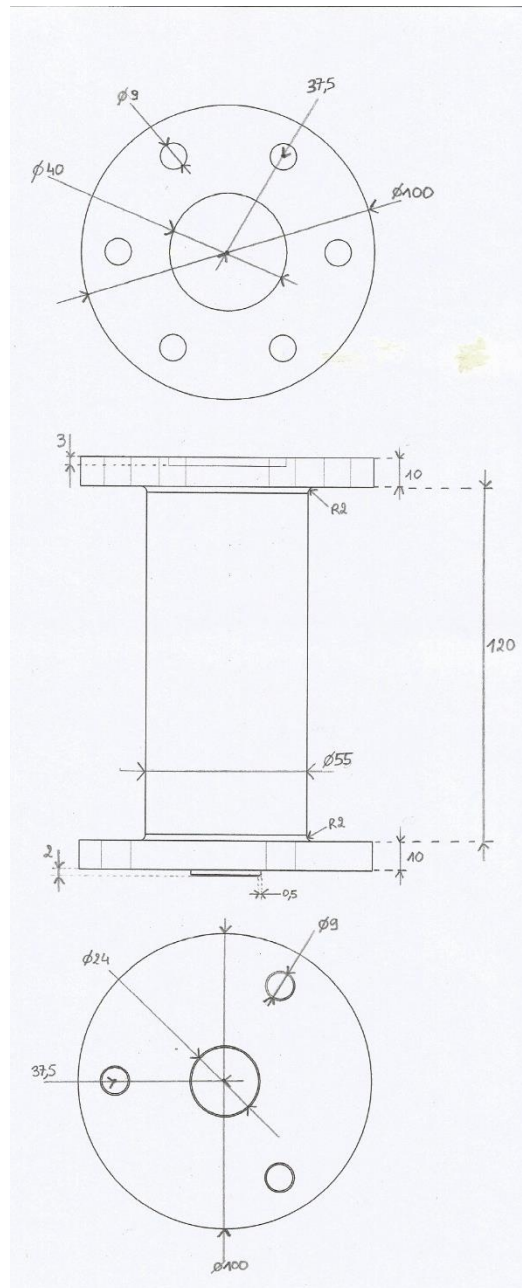


*Fig.VI.4 : Enceinte thermique Instron 1198® pour les essais de fatigue à température contrôlée*

Afin de conserver les vérins de la machine à l'abri de la température, des rallonges en aluminium ont été usinées. Par conséquent, seuls les mors et l'éprouvette se trouvaient dans l'enceinte thermique. Les plans des rallonges sont donnés par la figure (Fig.VI.5).



(a)



(b)

Fig.VI.5 : Plan des rallonges utilisées dans l'enceinte thermique

(a) Rallonge basse

(b) Rallonge haute

## VI.2.4 Dispositif de vieillissement accéléré

Le vieillissement accéléré a été réalisé dans une étuve *FranceEtuve XU490*®. Ce dispositif permet un renouvellement d'air de 100% afin d'apporter en permanence de l'oxygène pour assurer un vieillissement thermo-oxydant.



*Fig.VI.6 : Étuve FranceEtuve XU490® utilisée pour le vieillissement accéléré.*

## VI.3 Annexe 3

Dans cette annexe, nous expliquons le choix de négliger la pression hydrostatique et de n'utiliser que la partie volumétrique de la densité d'énergie de déformation dans le calcul de la

contrainte équivalente pour l'élaboration d'un critère de durée de vie en fatigue multiaxiale. Les figures (Fig.VI.7a) et (Fig.VI.7b) illustrent les courbes de Wöhler des éprouvettes haltères, AE2 et AE42 obtenues avec la contrainte déviatorique et la contrainte de Cauchy respectivement. Dans le cas de l'utilisation de la contrainte de Cauchy, l'éprouvette AE42 présente une tendance parallèle mais significativement inférieure à celles des éprouvettes AE2 et haltères. Ce résultat a déjà été observé dans la littérature et est la conséquence de l'auto-échauffement qui est plus important pour les éprouvettes massives (Ayoub et al. 2012). En revanche, lors de l'utilisation de la contrainte déviatorique comme critère de durée de vie, l'écart entre les deux tendances est réduit permettant une meilleure unification des données. Rappelons que la contrainte déviatorique est issue uniquement de la partie isochore de la densité d'énergie de déformation. Par conséquent, négliger la partie volumétrique de la densité d'énergie de déformation dans le calcul de la contrainte équivalente permet, d'une part, de se prémunir de l'identification numérique de la pression hydrostatique et, d'autre part, d'améliorer l'unification des données.

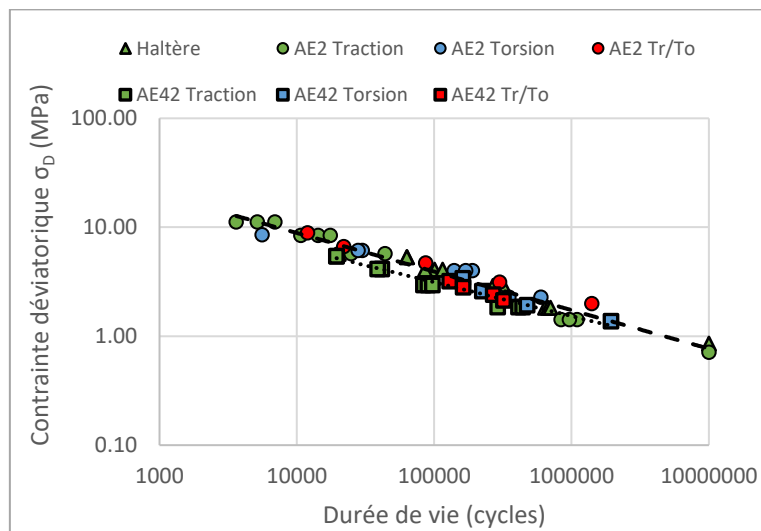


Fig.VI.7a : Courbe de Wöhler obtenue en utilisant la contrainte déviatorique (MPa)

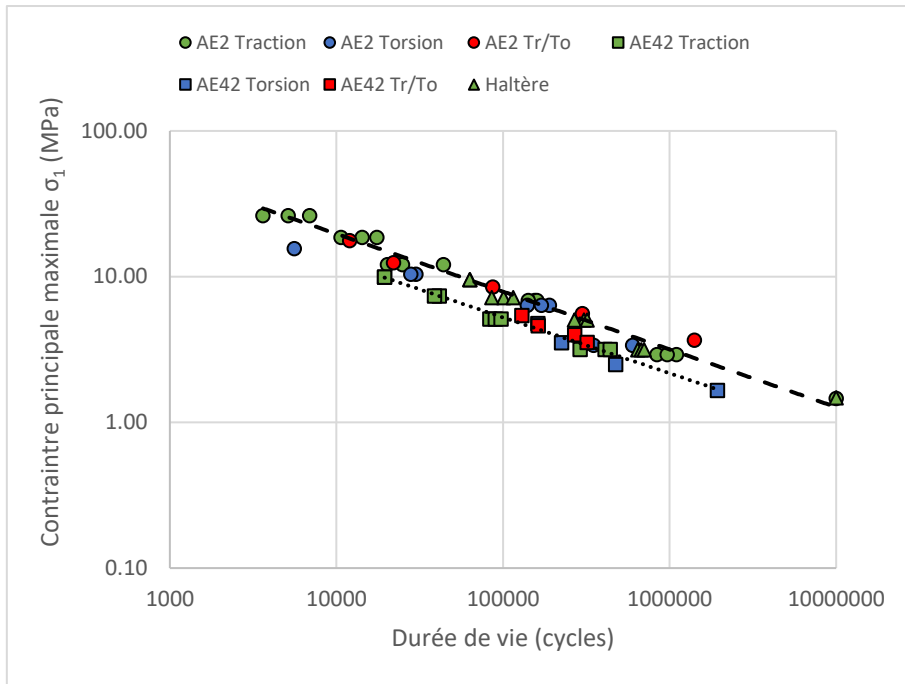


Fig.VI.7b : Courbe de Wöhler obtenue en utilisant la contrainte de cauchy (MPa)

## VII. Références

- Abraham, F., T. Alshuth, et S. Jerrams. 2005. « The effect of minimum stress and stress amplitude on the fatigue life of non strain crystallising elastomers ». *Special Issue: Tribology* 26 (3): 239-45. <https://doi.org/10.1016/j.matdes.2004.02.020>.
- Andre, Ng, Georges Cailletaud, et Roland Piques. 1999. « Haigh diagram for fatigue crack initiation prediction of natural rubber components ». *Kautschuk Gummi Kunststoffe* 52: 120-23.
- Arruda, Ellen M., et Mary C. Boyce. 1993. « A three-dimensional constitutive model for the large stretch behavior of rubber elastic materials ». *Journal of The Mechanics and Physics of Solids* 41: 389-412.
- Arruda, Ellen M., Mary C. Boyce, et R. Jayachandran. 1995. « Effects of strain rate, temperature and thermomechanical coupling on the finite strain deformation of glassy polymers ». *Mechanics of Materials* 19 (2): 193-212. [https://doi.org/10.1016/0167-6636\(94\)00034-E](https://doi.org/10.1016/0167-6636(94)00034-E).
- Assink, Roger A., Kenneth T. Gillen, et Briana Sanderson. 2002. « Monitoring the Degradation of a Thermally Aged EPDM Terpolymer by <sup>1</sup>H NMR Relaxation Measurements of Solvent Swelled Samples ». *Polymer* 43 (4): 1349-55. [https://doi.org/10.1016/S0032-3861\(01\)00661-9](https://doi.org/10.1016/S0032-3861(01)00661-9).
- Ayoub, G. 2010. « Comportement en grandes déformations et fatigue des polymères. Modélisation constitutive et prédiction de la durée de vie », 248.
- Ayoub, G., M. Naït-Abdelaziz, et F. Zaïri. 2014. « Multiaxial fatigue life predictors for rubbers: Application of recent developments to a carbon-filled SBR ». *International Journal of Fatigue* 66 (septembre): 168-76. <https://doi.org/10.1016/j.ijfatigue.2014.03.026>.
- Ayoub, G., M. Naït-Abdelaziz, F. Zaïri, J.M. Gloaguen, et P. Charrier. 2011. « A Continuum Damage Model for the High-Cycle Fatigue Life Prediction of Styrene-Butadiene Rubber under Multiaxial Loading ». *International Journal of Solids and Structures* 48 (18): 2458-66. <https://doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2011.04.003>.
- . 2012. « Fatigue Life Prediction of Rubber-like Materials under Multiaxial Loading Using a Continuum Damage Mechanics Approach: Effects of Two-Blocks Loading and R Ratio ». *Mechanics of Materials* 52 (septembre): 87-102. <https://doi.org/10.1016/j.mechmat.2012.03.012>.
- Behnke, Ronny, Michael Kaliske, et Manfred Klüppel. 2016. « THERMO-MECHANICAL ANALYSIS OF CYCLICALLY LOADED PARTICLE-REINFORCED ELASTOMER COMPONENTS: EXPERIMENT AND FINITE ELEMENT SIMULATION ». *Rubber Chemistry and Technology* 89: 154-76.
- Ben Hassine, M., M. Naït-Abdelaziz, F. Zaïri, X. Colin, C. Tourcher, et G. Marque. 2014. « Time to failure prediction in rubber components subjected to thermal ageing: A combined approach based upon the intrinsic defect concept and the fracture mechanics ». *Mechanics of Materials* 79 (décembre): 15-24. <https://doi.org/10.1016/j.mechmat.2014.07.015>.
- Bennani, Amine. 2006. « Elaboration, Comportement et Durée de vie en Fatigue du Caoutchouc Naturel chargé de Silice ». <http://www.theses.fr/2006ENMP1403/document>.
- Bergström, Jörgen S., et Mary C. Boyce. 1998. « Constitutive modeling of the large strain time-dependent behavior of elastomers ». *Journal of The Mechanics and Physics of Solids* 46: 931-54.



- . 2000. « Large strain time-dependent behavior of filled elastomers ». *Mechanics of Materials* 32: 627-44.
- Blanchard, Anthony, et D. Parkinson. 1952. « Breakage of Carbon-Rubber Networks by Applied Stress ». *Rubber Chemistry and Technology* 25: 808-42.
- Boyce, Mary C. 1986. « Large inelastic deformation of glassy polymers ». In .
- Bueche, F. 1960. « Molecular basis for the mullins effect ». *Journal of Applied Polymer Science* 4: 107-14.
- Cadwell, Sidney M., Rierrill, R A, C. M. Sloman, et F. L. Yost. 1940. « Dynamic Fatigue Life of Rubber », 5.
- Candau, Nicolas, Rabia Laghmach, Laurent Chazeau, Jean-Marc Chenal, Catherine Gauthier, Thierry Biben, et Etienne Munch. 2015. « Temperature Dependence of Strain-Induced Crystallization in Natural Rubber: On the Presence of Different Crystallite Populations ». *Polymer* 60 (mars): 115-24. <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2015.01.029>.
- Charrier, Pierre, Yann Marco, Vincent Le Saux, et R. K. P. S. Ranaweera. 2011. « On the influence of heat ageing on filled NR for AVS automotive applications. », septembre.
- Chung, J., et N. H. Kim. 2016. « Numerical methods of multiaxial fatigue life prediction for elastomers under variable amplitude loadings ». *Fatigue & Fracture of Engineering Materials & Structures* 39 (7): 866-76. <https://doi.org/10.1111/ffe.12401>.
- Clavreul, R. 1997. « Evolution of Ethylene Propylene Copolymers Properties during Ageing ». *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 131 (1-4): 192-97. [https://doi.org/10.1016/S0168-583X\(97\)00139-0](https://doi.org/10.1016/S0168-583X(97)00139-0).
- Cohen, Arie. 1991. « A Padé approximant to the inverse Langevin function ». *Rheologica Acta* 30: 270-73.
- Colin, X., L. Audouin, et J. Verdu. 2007. « Kinetic Modelling of the Thermal Oxidation of Polyisoprene Elastomers. Part 1: Unvulcanized Unstabilized Polyisoprene ». *Polymer Degradation and Stability* 92 (5): 886-97. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2007.01.017>.
- Colin, X., L. Audouin, J. Verdu, et M. Le Huy. 2007. « Kinetic Modelling of the Thermal Oxidation of Polyisoprene Elastomers. Part 2: Effect of Sulfur Vulcanization on Mass Changes and Thickness Distribution of Oxidation Products during Thermal Oxidation ». *Polymer Degradation and Stability* 92 (5): 898-905. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2007.01.004>.
- Cruanes, C., M.-P. Deffarges, F. Lacroix, et S. Méo. 2019. « Modeling of the Thermomechanical Behavior of Rubbers during Fatigue Tests from Infrared Measurements ». *International Journal of Fatigue* 126 (septembre): 231-40. <https://doi.org/10.1016/j.ijfatigue.2019.04.035>.
- Cruanes, Christophe. 2015. « Étude du comportement en fatigue d'un élastomère synthétique relation entre endommagement, renforcement et auto-échauffement », 170.
- Dluzneski, Peter R. 2001. « Peroxide vulcanization of elastomers ». *Rubber Chemistry and Technology* 74: 451-92.
- Fukahori, Yoshihide. 2005. « New progress in the theory and model of carbon black reinforcement of elastomers ». *Journal of Applied Polymer Science* 95: 60-67.
- Gac, Pierre-Yves Le, Pierre-Antoine Albouy, Bruno Fayolle, et Jacques Verdu. 2021. « Relationship between Macromolecular Network and Fatigue Properties of Unfilled Polychloroprene Rubber ». *Polymer Degradation and Stability* 192 (octobre): 109669. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2021.109669>.

- Gamonpilas, Chaiwut, et Ryan C. McCuiston. 2012. « A non-linear viscoelastic material constitutive model for polyurea ». *Polymer* 53: 3655-58.
- Gent, Alan N. 1996. « A New Constitutive Relation for Rubber ». *Rubber Chemistry and Technology* 69: 59-61.
- Guo, Qiang. 2019. « Réponse thermo-mécanique des élastomères sous chargement cyclique : modélisation constitutive et expérience ». <http://www.theses.fr/2019LILUI023/document>.
- Guo, Qiang, et Fahmi Zaïri. 2020. « A Physically-Based Thermo-Mechanical Model for Stretch-Induced Crystallizable Rubbers: Crystallization Thermodynamics and Chain-Network Crystallization Anisotropy ». *International Journal of Plasticity* 131 (août): 102724. <https://doi.org/10.1016/j.ijplas.2020.102724>.
- Guo, Qiang, Fahmi Zaïri, et Xing-lin Guo. 2018. « A thermo-viscoelastic-damage constitutive model for cyclically loaded rubbers. Part I: Model formulation and numerical examples ». *International Journal of Plasticity* 101: 106-24.
- Guth, E. 1945. « Theory of Filler Reinforcement ». *Journal of Applied Physics* 16: 20-25.
- Guth, E., et O. Gold. 1938. « On Hydrodynamical Theory of the viscosity of suspensions ». *Physical Review*, 1938.
- Hanson, David E., Marilyn E. Hawley, Robert J. Houlton, Kiran Chitanvis, Philip John Rae, Edward B. Orlor, et Debra A. Wroblewski. 2005. « Stress softening experiments in silica-filled polydimethylsiloxane provide insight into a mechanism for the Mullins effect ». *Polymer* 46: 10989-95.
- Harbour, Ryan J., Ali Fatemi, et Will V. Mars. 2007. « Fatigue crack growth of filled rubber under constant and variable amplitude loading conditions ». *Fatigue & Fracture of Engineering Materials & Structures* 30 (7): 640-52. <https://doi.org/10.1111/j.1460-2695.2007.01143.x>.
- Harbour, Ryan J., Ali Fatemi, et William V. Mars. 2008a. « Fatigue crack orientation in NR and SBR under variable amplitude and multiaxial loading conditions ». *Journal of Materials Science* 43: 1783-94.
- . 2008b. « Fatigue life analysis and predictions for NR and SBR under variable amplitude and multiaxial loading conditions ». *International Journal of Fatigue* 30: 1231-47.
- Hassine, Mouna Ben. 2013. « Modélisation du vieillissement thermique et mécanique d'une protection externe en EPDM de jonctions rétractables à froid », 252.
- Horgan, Cornelius O., et Giuseppe Saccomandi. 2002. « A Molecular-Statistical Basis for the Gent Constitutive Model of Rubber Elasticity ». *Journal of Elasticity* 68: 167-76.
- Houwink, R. H. 1956. « Slipping of Molecules during the Deformation of Reinforced Rubber ». *Rubber Chemistry and Technology* 29: 888-93.
- James, H. Maxwell, et Eugene Guth. 1943. « Theory of the Elastic Properties of Rubber ». *Journal of Chemical Physics* 11: 455-81.
- Jernigan, Robert L., et Paul J. Flory. 1969. « Distribution Functions for Chain Molecules ». *Journal of Chemical Physics* 50: 4185-4200.
- Johlitz, Michael, Benedikt Dippel, et Alexander Lion. 2016. « Dissipative heating of elastomers: a new modelling approach based on finite and coupled thermomechanics ». *Continuum Mechanics and Thermodynamics* 28: 1111-25.
- Kachanov, L. M., et Dusan Krajcinovic. 1986. « Introduction to continuum damage mechanics ». In .
- Kadri, R., M. Nait Abdelaziz, B. Fayolle, M. Ben Hassine, et J.F. Witz. 2022. « A unified mechanical based approach to fracture properties estimates of rubbers subjected to



- aging ». *International Journal of Solids and Structures* 234-235 (janvier): 111305. <https://doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2021.111305>.
- Kraus, Gerard, Clifford W. Childers, et Kent W. Rollmann. 1966. « Stress softening in carbon black-reinforced vulcanizates. Strain rate and temperature effects ». *Journal of Applied Polymer Science* 10: 229-44.
- Kuhn, Werner, et F. Grün. 1942. « Beziehungen zwischen elastischen Konstanten und Dehnungsdoppelbrechung hochelastischer Stoffe ». *Kolloid-Zeitschrift* 101 (3): 248-71. <https://doi.org/10.1007/BF01793684>.
- Lake, G. J., et P. B. Lindley. 1965a. « Role of ozone in dynamic cut growth of rubber ». *Journal of Applied Polymer Science* 9: 2031-45.
- . 1965b. « The mechanical fatigue limit for rubber ». *Journal of Applied Polymer Science* 9: 1233-51.
- Lamni, H., M. Nait Abdelaziz, G. Ayoub, X. Colin, et U. Maschke. 2021. « Experimental Investigation and Modeling Attempt on the Effects of Ultraviolet Aging on the Fatigue Behavior of an LDPE Semi-Crystalline Polymer ». *International Journal of Fatigue* 142 (janvier): 105952. <https://doi.org/10.1016/j.ijfatigue.2020.105952>.
- Le Cam, J.-B., Bertrand Huneau, et Erwan Verron. 2013. « Fatigue damage in carbon black filled natural rubber under uni- and multiaxial loading conditions ». *International Journal of Fatigue* 52: 82-94.
- Le Cam, J.-B., Bertrand Huneau, Erwan Verron, et Laurent Gornet. 2004. « Mechanism of Fatigue Crack Growth in Carbon Black Filled Natural Rubber ». *Macromolecules* 37: 5011-17.
- Le Chenadec, Yohan. 2008. « Autoéchauffement, fatigue thermomécanique des élastomères », 269.
- Lemaître, Jean, et Jean Louis Chaboche. 1990. « Mechanics of Solid Materials ». In .
- Li, Fanzhu, Jun Liu, Haibo Yang, Yonglai Lu, et Liqun Zhang. 2016. « Numerical Simulation and Experimental Verification of Heat Build-up for Rubber Compounds ». *Polymer* 101 (septembre): 199-207. <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2016.08.065>.
- Lion, Alexander. 1997. « On the Large Deformation Behaviour of Reinforced Rubber at Different Temperatures ». *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 45 (11-12): 1805-34. [https://doi.org/10.1016/S0022-5096\(97\)00028-8](https://doi.org/10.1016/S0022-5096(97)00028-8).
- LU, CHUMING. 1991. « Etude du comportement mecanique et des mecanismes d'endommagement des elastomeres en fatigue et en fissuration par fatigue ».
- Luo, Wenbo, Boyuan Yin, Xiaoling Hu, Zheng Zhou, Yan Deng, et Kui Song. 2018. « Modeling of the Heat Build-up of Carbon Black Filled Rubber ». *Polymer Testing* 69 (août): 116-24. <https://doi.org/10.1016/j.polymertesting.2018.05.017>.
- Machado, Guilherme, Grégory Chagnon, et Denis Favier. 2012. « Induced anisotropy by the Mullins effect in filled silicone rubber ». *Mechanics of Materials* 50: 70-80.
- Marckmann, G., et E. Verron. 2006. « Comparison of Hyperelastic Models for Rubber-Like Materials ». *Rubber Chemistry and Technology* 79 (5): 835-58. <https://doi.org/10.5254/1.3547969>.
- Mars, William. 2002. « Cracking Energy Density as a Predictor of Fatigue Life under Multiaxial Conditions ». *Rubber Chemistry and Technology* 75 (mars): 1-17. <https://doi.org/10.5254/1.3547670>.
- Medalia, Avrom I. 1970. « Morphology of aggregates: VI. Effective volume of aggregates of carbon black from electron microscopy; Application to vehicle absorption and to die swell of filled rubber ». *Journal of Colloid and Interface Science* 32 (1): 115-31. [https://doi.org/10.1016/0021-9797\(70\)90108-6](https://doi.org/10.1016/0021-9797(70)90108-6).

- Miner, Milton A. 1945. « Cumulative Damage in Fatigue ». *Journal of Applied Mechanics* 12 (3): A159-64. <https://doi.org/10.1115/1.4009458>.
- Mohammadi, Hamid, et Roozbeh Dargazany. 2019. « A Micro-Mechanical Approach to Model Thermal Induced Aging in Elastomers ». *International Journal of Plasticity* 118 (juillet): 1-16. <https://doi.org/10.1016/j.ijplas.2018.12.009>.
- Moon, Seong-In, Il-Je Cho, Chang Woo, et Wan-Doo Kim. 2011. « Study on determination of durability analysis process and fatigue damage parameter for rubber component ». *Journal of Mechanical Science and Technology* 25 (mai): 1159-65. <https://doi.org/10.1007/s12206-011-0221-6>.
- Mooney, Melvin. 1940. « A Theory of Large Elastic Deformation ». *Journal of Applied Physics* 11: 582-92.
- . 1951. « The viscosity of a concentrated suspension of spherical particles ». *Journal of Colloid Science* 6: 162-70.
- Mullins, L. 1969. « Softening of Rubber by Deformation ». *Rubber Chemistry and Technology* 42 (1): 339-62. <https://doi.org/10.5254/1.3539210>.
- Nait Abdelaziz, M., G. Ayoub, X. Colin, M. Benhassine, et M. Mouwakeh. 2019. « New developments in fracture of rubbers: Predictive tools and influence of thermal aging ». *International Journal of Solids and Structures* 165 (juin): 127-36. <https://doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2019.02.001>.
- Naït-Abdelaziz, M., F. Zaïri, Z. Qu, A. Hamdi, et N. Aït Hocine. 2012. « J integral as a fracture criterion of rubber-like materials using the intrinsic defect concept ». *Mechanics of Materials* 53 (octobre): 80-90. <https://doi.org/10.1016/j.mechmat.2012.05.001>.
- Naroei, K., et M. Arman. 2018. « Generalization of Exponential Based Hyperelastic to Hyper-Viscoelastic Model for Investigation of Mechanical Behavior of Rate Dependent Materials ». *Journal of the Mechanical Behavior of Biomedical Materials* 79 (mars): 104-13. <https://doi.org/10.1016/j.jmbbm.2017.12.019>.
- Neuhaus, Christoph, Alexander Lion, Michael Jöhlich, Paul Heuler, Matthias Barkhoff, et Frank Duisen. 2017. « Fatigue Behaviour of an Elastomer under Consideration of Ageing Effects ». *International Journal of Fatigue* 104 (novembre): 72-80. <https://doi.org/10.1016/j.ijfatigue.2017.07.010>.
- Ogden, Ray W. 1972. « Large deformation isotropic elasticity – on the correlation of theory and experiment for incompressible rubberlike solids ». *Proceedings of the Royal Society of London. A. Mathematical and Physical Sciences* 326: 565-84.
- Ovalle Rodas, C. 2014. « Thermo-mechanical coupling and heat build-up of filled rubbers under fatigue », 185.
- Ovalle Rodas, C., F. Zaïri, M. Naït-Abdelaziz, et P. Charrier. 2015. « Temperature and filler effects on the relaxed response of filled rubbers: Experimental observations on a carbon-filled SBR and constitutive modeling ». *International Journal of Solids and Structures* 58 (avril): 309-21. <https://doi.org/10.1016/j.ijsolstr.2014.11.001>.
- . 2016. « A thermo-visco-hyperelastic model for the heat build-up during low-cycle fatigue of filled rubbers: Formulation, implementation and experimental verification ». *International Journal of Plasticity* 79 (avril): 217-36. <https://doi.org/10.1016/j.ijplas.2015.01.001>.
- Payne, Arthur Robert. 1963. « The Dynamic Properties of Carbon Black-Loaded Natural Rubber Vulcanizates. Part I ». *Journal of Applied Polymer Science* 6: 57-63.
- Rabotnov, Yu N., Frederick A. Leckie, et William Prager. 1969. « Creep problems in structural members ». In .
- Rajeev, R.S, S.K De, Anil K Bhowmick, et Baby John. 2003. « Studies on Thermal Degradation of Short Melamine Fibre Reinforced EPDM, Maleated EPDM and Nitrile Rubber

- Composites ». *Polymer Degradation and Stability* 79 (3): 449-63. [https://doi.org/10.1016/S0141-3910\(02\)00361-0](https://doi.org/10.1016/S0141-3910(02)00361-0).
- Raoult, Ida. 2010. « Structures élastomères sous chargement cyclique : Comportement – Fatigue – Durée de vie ».
- Rey, Thierry, Grégory Chagnon, J.-B. Le Cam, et Denis Favier. 2013. « Influence of the temperature on the mechanical behaviour of filled and unfilled silicone rubbers ». *Polymer Testing* 32: 492-501.
- Rivaton, A., S. Cambon, et J.-L. Gardette. 2005. « Radiochemical Ageing of EPDM Elastomers. 3. Mechanism of Radiooxidation ». *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* 227 (3): 357-68. <https://doi.org/10.1016/j.nimb.2004.09.009>.
- Rivlin, R. S., et Eric Keightley Rideal. 1948. « Large elastic deformations of isotropic materials IV. further developments of the general theory ». *Philosophical Transactions of the Royal Society of London. Series A, Mathematical and Physical Sciences* 241 (835): 379-97. <https://doi.org/10.1098/rsta.1948.0024>.
- Rivlin, Ronald S., et A. G. Thomas. 1953. « Rupture of rubber. I. Characteristic energy for tearing ». *Journal of Polymer Science* 10: 291-318.
- Roach, J.F., et A.N. Gent. 1982. *Crack Growth in Elastomers Under Biaxial Stresses: A Dissertation Presented to the Graduate Faculty of the University of Akron*. ProQuest. <https://books.google.fr/books?id=NNCNtwAACAAJ>.
- Rosa, G La, et A Risitano. 2000. « Thermographic Methodology for Rapid Determination of the Fatigue Limit of Materials and Mechanical Components ». *International Journal of Fatigue*.
- Rublon, Pierre, Bertrand Huneau, Erwan Verron, Nicolas Saintier, Stéphanie Beurrot, Adrien Leygue, Cristian Mocuta, Dominique Thiaudière, et Daniel Berghezan. 2014. « Multiaxial deformation and strain-induced crystallization around a fatigue crack in natural rubber ». *Engineering Fracture Mechanics* 123: 59-69.
- Ruellan, B., J.-B. Le Cam, I. Jeanneau, F. Canévet, F. Mortier, et E. Robin. 2019. « Fatigue of Natural Rubber under Different Temperatures ». *International Journal of Fatigue* 124 (juillet): 544-57. <https://doi.org/10.1016/j.ijfatigue.2018.10.009>.
- Saintier, Nicolas. 2001. « Fatigue multiaxiale dans un élastomère de type NR : mécanismes d'endommagement et critère local d'amorçage de fissure ». <http://www.theses.fr/2001ENMP1089/document>.
- Samaca Martinez, J.R., J.-B. Le Cam, X. Balandraud, E. Toussaint, et J. Caillard. 2013. « Mechanisms of Deformation in Crystallizable Natural Rubber. Part 2: Quantitative Calorimetric Analysis ». *Polymer* 54 (11): 2727-36. <https://doi.org/10.1016/j.polymer.2013.03.012>.
- Smallwood, Hugh M. 1944. « Limiting Law of the Reinforcement of Rubber ». *Journal of Applied Physics* 15: 758-66.
- Tosaka, Masatoshi, Shinzo Kohjiya, Syozo Murakami, Sirilux Poompradub, Yuko Ikeda, Shigeyuki Toki, Igors \vSics, et Benjamin S. Hsiao. 2004. « Effect of Network-Chain Length on Strain-Induced Crystallization of NR and IR Vulcanizates ». *Rubber Chemistry and Technology* 77: 711-23.
- Trabelsi, Sourour, and Pierre A. Albouy, et Jacques Rault. 2003. « Crystallization and Melting Processes in Vulcanized Stretched Natural Rubber ». *Macromolecules* 36: 7624-39.
- Treloar, L. R. G. 1943. « The elasticity of a network of long-chain molecules—II ». *Trans. Faraday Soc.* 39 (0): 241-46. <https://doi.org/10.1039/TF9433900241>.

- Volokh, Konstantin. 2016. *Mechanics of Soft Materials*. *Mechanics of Soft Materials*. <https://doi.org/10.1007/978-981-10-1599-1>.
- Volokh, K.Y. 2007. « Hyperelasticity with softening for modeling materials failure ». *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 55 (10): 2237-64. <https://doi.org/10.1016/j.jmps.2007.02.012>.
- . 2010. « On Modeling Failure of Rubber-like Materials ». *Mechanics Research Communications* 37 (8): 684-89. <https://doi.org/10.1016/j.mechrescom.2010.10.006>.
- . 2017. « Loss of Ellipticity in Elasticity with Energy Limiters ». *European Journal of Mechanics - A/Solids* 63 (mai): 36-42. <https://doi.org/10.1016/j.euromechsol.2016.10.003>.
- Wang, Bo, Hongbing Lu, et Gyu-ho Kim. 2002. « A damage model for the fatigue life of elastomeric materials ». *Mechanics of Materials* 34 (8): 475-83. [https://doi.org/10.1016/S0167-6636\(02\)00175-8](https://doi.org/10.1016/S0167-6636(02)00175-8).
- Whicker, D., A. L. Browne, D. J. Segalman, et L. E. Wickliffe. 1981. « A Thermomechanical Approach to Tire Power Loss Modeling ». *Tire Science and Technology* 9 (1): 3-18. <https://doi.org/10.2346/1.2151023>.
- Woo, Chang-Su, Wan-Doo Kim, Seong-Hoon Lee, Byung-Ik Choi, et Hyun-Sung Park. 2009. « Fatigue Life Prediction of Vulcanized Natural Rubber Subjected to Heat-Aging ». *Procedia Engineering* 1 (1): 9-12. <https://doi.org/10.1016/j.proeng.2009.06.004>.
- Wood, Lawrence A., et Norman Bekkedahl. 1946. « Crystallization of Unvulcanized Rubber at Different Temperatures ». *Rubber Chemistry and Technology* 19 (4): 1145-62. <https://doi.org/10.5254/1.3543253>.
- Wu, Peidong, et Erik van der Giessen. 1993. « On Improved Network Models for Rubber Elasticity and Their Applications to Orientation Hardening in Glassy Polymers ». *Journal of The Mechanics and Physics of Solids* 41: 427-56.
- Yeoh, Oon Hock. 1993. « Some Forms of the Strain Energy Function for Rubber ». *Rubber Chemistry and Technology* 66: 754-71.
- Zaïri, Fahmi, M. Naït-Abdelaziz, Jean-Michel Gloaguen, et Jean-Marc Lefebvre. 2010. « Constitutive modelling of the large inelastic deformation behaviour of rubber-toughened poly(methyl methacrylate): Effects of strain rate, temperature and rubber-phase volume fraction ». *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering* 18 (mai): 055004. <https://doi.org/10.1088/0965-0393/18/5/055004>.
- Zanotto, Edgar Dutra. 1998. « Do cathedral glasses flow ». *American Journal of Physics* 66: 392-95.