



**HAL**  
open science

## Sur un modèle de couplage Thermo-Chimio-Mécanique pour les élastomères chargés

Thien An Nguyen Van, Stéphane Lejeunes, Dominique Eyheramendy, Adnane  
Boukamel

► **To cite this version:**

Thien An Nguyen Van, Stéphane Lejeunes, Dominique Eyheramendy, Adnane Boukamel. Sur un modèle de couplage Thermo-Chimio-Mécanique pour les élastomères chargés. CSMA 2013, 2013, Giens, France. pp.CLE USB. hal-00859623

**HAL Id: hal-00859623**

**<https://hal.science/hal-00859623>**

Submitted on 9 Sep 2013

**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.

---

## Sur un modèle de couplage Thermo-Chimio-Mécanique pour les élastomères chargés

Thien An Nguyen Van <sup>1</sup>, Stéphane Lejeunes <sup>1</sup>, Dominique Eyheramendy <sup>1</sup>, Adnane Boukamel <sup>2</sup>

<sup>1</sup> LMA, CNRS, UPR 7051, Aix-Marseille Univ, Centrale Marseille, F-13451 Marseille, lejeunes@lma.cnrs-mrs.fr

<sup>2</sup> EHTP, Route d'El Jadida, BP 8108 Casablanca, Maroc

---

**Résumé** — Nous présentons dans cette communication un nouveau modèle de comportement couplé pour les élastomères chargés et dissipatifs qui prend en compte une forme d'évolution chimique du matériau. Cette évolution est activée sous sollicitations thermo-mécaniques et impacte fortement le comportement du matériau. Une implémentation éléments-finis de ce modèle est réalisée de manière à pouvoir simuler des tests thermo-mécaniques complexes.

**Mots clés** — grandes déformations, couplages, éléments-finis

---

### 1 Introduction

Les élastomères chargés exhibent un comportement thermo-mécanique complexe de par leur nature multi-physiques et multi-échelles. Les paramètres physico-chimiques des constituants (type de charges, type de gomme, activité surfacique des charges, système de réticulation, etc) ainsi que le procédé de mise en œuvre, influencent directement les propriétés thermiques et mécaniques. Parmi ces paramètres, le taux de réticulation, qui caractérise le nombre de liaisons entre chaînes macro-moléculaires, joue un rôle fondamental. Ce taux est ajusté par les caoutchoutiers lors de la vulcanisation de façon à optimiser les propriétés du matériau : résistance à la fatigue, module dynamique, viscosité, etc. Cependant, il peut être amenée à évoluer au cours de la vie du matériau (vieillesse chimique par exemple). Pour certains élastomères, on observe au cours d'essais cycliques une augmentation de la raideur qui est en contradiction avec les phénomènes d'assouplissements dus à la thermique ou à l'endommagement (voir notamment [4, 5]). Ce raidissement est expliqué par un phénomène de post-réticulation qui est activé par l'auto-échauffement et par les sollicitations mécaniques.

Afin de modéliser ce type de phénomènes, nous proposons un cadre thermodynamique et numérique intégrant un couplage thermo-chimio-mécanique. Nous nous basons sur la thermodynamique des processus irréversibles et sur la notion d'état local. Ceci nous permet d'introduire le taux de réticulation comme une variable interne de nos modèles. Les irréversibilités mécaniques, en grandes transformations, sont également traitées sous forme de variables internes qui sont introduites à partir de la notion d'états intermédiaires. En utilisant une approche phénoménologique pour chacune des physiques, nous déduisons les lois d'états et les lois complémentaires à partir de l'inégalité de Clausius-Duhem. Au final, nous obtenons un système d'équations (équilibre et comportement) fortement couplé et non-linéaire. Ce type d'approche est relativement récent dans la littérature (voir [1, 2]) si bien qu'il existe à l'heure actuelle peu de modèles adaptés aux élastomères. L'originalité du modèle proposé tient au fait que nous cherchons à ne pas négliger certains couplages : dilatation thermique, retrait chimique, influence de la pression hydrostatique sur la cinétique de réticulation, etc. En effet, le caractère incompressible du matériau peut conduire dans certain cas à des niveaux de contraintes importants pour lesquelles les phénomènes de dilatation thermique ou de retrait chimique deviennent non négligeables.

Les équations de notre modèle ont été implémentées dans un logiciel éléments-finis, développé au LMA (voir [3]), à partir d'une formulation variationnelle classique. La dépendance en temps des équations est intégrée à partir de schémas d'Euler implicites (local et global) et la non-linéarité est traitée par une linéarisation de type Newton-Raphson. Au final nous obtenons un schéma E.F. monolithique qui nous permet de qualitativement reproduire les phénomènes observés expérimentalement.

## 2 Cadre Thermodynamique

Comme annoncé dans l'introduction, nous adoptons l'hypothèse de l'état local et nous décrivons les effets d'histoires à l'aide de variables internes. Le comportement est donc défini à partir des variables d'état : le gradient de la transformation, noté  $\mathbf{F}(\mathbf{X}, t)$ , et la température absolue, notée  $\Theta(\mathbf{X}, t)$  et d'un jeu de variable internes. Nous définissons le taux de réticulation  $\xi$  en un point comme étant le rapport de la masse du produit vulcanisé sur la masse total au voisinage de ce point matériel :

$$\xi(\mathbf{X}, t) = \frac{m_{Vu}(\mathbf{X}, t)}{m(\mathbf{X})} \quad \xi(\mathbf{X}, t) \in [0, 1] \quad (1)$$

### 2.1 Cinématique

Afin de prendre en compte le caractère faiblement compressible du matériau nous introduisons la décomposition suivante :

$$\mathbf{F} = \bar{\mathbf{F}}(J^{1/3}\mathbf{I}) \quad \text{avec} \quad J = J_M J_C J_T \quad (2)$$

La variation de volume totale ( $J = \det(\mathbf{F})$ ) est donc composée d'une dilatation thermique,  $J_T$ , d'un retrait chimique,  $J_C$ , et d'une compressibilité mécanique,  $J_M$ . De plus nous considérons les formes suivantes :

$$J_T = (1 + \alpha(\Theta - \Theta_{ref})) \quad J_C = (1 + \beta g(\xi, \xi_{ref})) \quad (3)$$

avec  $\alpha, \beta$  les coefficients de dilatation thermique et de retrait chimique,  $g$  une fonction de retrait. La partie isochore du gradient de la transformation est décomposée en parties élastique et inélastique :

$$\bar{\mathbf{F}} = \bar{\mathbf{F}}_e \bar{\mathbf{F}}_i \quad (4)$$

Nous supposons également qu'il existe un état naturel du matériau qui est libre de contrainte et libre de toute évolution de l'état thermodynamique et pour lequel nous avons :

$$\mathbf{F} = \mathbf{I}, \quad \Theta = \Theta_{ref}, \quad \xi = \xi_{ref} \quad (5)$$

### 2.2 Inégalité de Clausius-Duhem

Pour la suite nous nous plaçons dans un cadre Eulérien et nous supposons que l'énergie libre de Helmholtz,  $\psi$ , est fonction des tenseur de Cauchy-Green gauches  $\bar{\mathbf{B}}$  et  $\bar{\mathbf{B}}_e$ , de la variation de volume  $J$ , de la température  $\Theta$  et du taux de réticulation  $\xi$ . En combinant le premier et second principe thermodynamique, nous pouvons obtenir la forme Eulérienne de la dissipation<sup>1</sup> :

$$\phi = \boldsymbol{\sigma} : \mathbf{D} - \rho \dot{\psi} - \rho s \dot{\Theta} - \mathbf{q} \frac{\text{grad} \Theta}{\Theta} \geq 0 \quad (6)$$

ou  $s$  et l'entropie,  $\mathbf{q}$  le flux de chaleur,  $\boldsymbol{\sigma}$  le tenseur des contraintes de Cauchy et  $\mathbf{D}$  le taux de déformation. La variation d'énergie libre s'écrit :

$$\dot{\psi} = \frac{\partial \psi}{\partial \bar{\mathbf{B}}} : \dot{\bar{\mathbf{B}}} + \frac{\partial \psi}{\partial \bar{\mathbf{B}}_e} : \dot{\bar{\mathbf{B}}}_e + \frac{\partial \psi}{\partial J} \dot{J} + \frac{\partial \psi}{\partial \Theta} \dot{\Theta} + \frac{\partial \psi}{\partial \xi} \dot{\xi} \quad (7)$$

avec :

$$\dot{\bar{\mathbf{B}}} = \mathbf{L}\bar{\mathbf{B}} + \bar{\mathbf{B}}\mathbf{L}^T - \frac{2}{3}(\mathbf{1} : \mathbf{D})\bar{\mathbf{B}}; \quad \dot{\bar{\mathbf{B}}}_e = \mathbf{L}\bar{\mathbf{B}}_e + \bar{\mathbf{B}}_e\mathbf{L}^T - \frac{2}{3}(\mathbf{1} : \mathbf{D})\bar{\mathbf{B}}_e - 2\bar{\mathbf{V}}_e \bar{\mathbf{D}}_i^0 \bar{\mathbf{V}}_e; \quad \dot{J} = J(\mathbf{1} : \mathbf{D}) \quad (8)$$

ou  $\mathbf{L}$  est le gradient eulérien des vitesses,  $\bar{\mathbf{V}}_e$  est un tenseur de déformation pure qui provient de la décomposition polaire de  $\bar{\mathbf{F}}_e$  et  $\bar{\mathbf{D}}_i^0$  est un taux de déformation inélastique, objectif<sup>2</sup>. En intégrant les eqs.

1. la notation grad correspond au gradient eulérien par opposition à la notation GRAD qui correspond au gradient lagrangien.

2. La décomposition (4) est définie à une rotation près, le tenseur  $\bar{\mathbf{D}}_i$  n'est donc pas objectif contrairement au tenseur  $\bar{\mathbf{D}}_i^0 = \bar{\mathbf{R}}_e \bar{\mathbf{D}}_i \bar{\mathbf{R}}_e^T$

(8) dans l'eq. (7) et en utilisant certain propriétés de symétrie, nous pouvons classiquement déduire les relations suivantes :

$$\begin{cases} s = -\frac{\partial \Psi}{\partial \Theta} \\ \sigma = \left( 2\rho \bar{\mathbf{B}} \frac{\partial \Psi}{\partial \bar{\mathbf{B}}} + 2\rho \bar{\mathbf{B}}_e \frac{\partial \Psi}{\partial \bar{\mathbf{B}}_e} \right)^D + \rho J \frac{\partial \Psi}{\partial J} \mathbf{I} \end{cases} \quad (9)$$

Nous pouvons également identifier une dissipation thermique, une dissipation chimique et une dissipation mécanique tel que :  $\phi = \phi_M + \phi_C + \phi_T \geq 0$  avec :

$$\phi_M = 2\rho \left( \bar{\mathbf{B}}_e \frac{\partial \Psi}{\partial \bar{\mathbf{B}}_e} \right)^D : \bar{\mathbf{D}}_i; \quad \phi_C = -\rho \frac{\partial \Psi}{\partial \xi} \dot{\xi}; \quad \phi_\Theta = -\mathbf{q} \cdot \frac{\text{grad} \Theta}{\Theta} \quad (10)$$

Nous faisons l'hypothèse que les dissipations précédentes sont indépendamment positives ou nulles. Nous pouvons ainsi par la suite nous placer dans le cadre des matériaux standards généralisés et introduire des pseudo-potentiels de dissipation pour chacune des physiques.

### 3 Modèle de comportement

Le modèle de comportement est entièrement défini par la donnée du potentiel d'énergie libre et des pseudo-potentiels de dissipation. Nous faisons les choix suivants :

$$\Psi = \Psi_{eq}(\bar{\mathbf{B}}, \Theta, \xi) + \Psi_{neq}(\bar{\mathbf{B}}_e, \Theta, \xi) + \Psi_{vol}(J, \Theta, \xi) + \Psi_T(\Theta) + \Psi_C(\Theta, \xi) \quad (11)$$

$$\varphi^* = \varphi_M^*(\sigma, \Theta, \xi) + \varphi_T^*\left(\frac{\text{grad} \Theta}{\Theta}\right) + \varphi_C^*(A_C) \quad (12)$$

avec  $\varphi^*$  le pseudo potentiel de dissipation dual (défini à partir des forces thermodynamiques) et  $A_C$  la force chimique qui est définie par :

$$A_C = -\rho \frac{\partial \Psi}{\partial \xi} \quad (13)$$

On ne considère dans la suite que des comportement isotropes et par conséquent nous utilisons des potentiels définis à partir des invariants d'un tenseur de déformation.

#### 3.1 Partie mécanique

A titre d'exemple, nous nous plaçons dans un cadre viscoplastique et nous définissons un domaine élastique à partir d'une fonction seuil  $f(\sigma_{neq})$  qui correspond à un écoulement classique de type J2 :  $f(\sigma_{neq}) = \|\sigma_{neq}\| - \chi(\Theta, \xi)$ . On adopte les formes suivantes<sup>3</sup> :

$$\Psi_{eq} = C_{10}(\Theta, \xi)(\bar{I}_1 - 3) + C_{01}(\Theta, \xi)(\bar{I}_2 - 3); \quad \Psi_{vol} = \frac{K_v}{2}(J_M - 1)^2; \quad (14)$$

$$\Psi_{neq} = G(\Theta, \xi)(\bar{I}_{1e} - 3); \quad \varphi_M^* = \frac{1}{2} \frac{\langle f(\sigma_{neq}) \rangle^2}{\eta(\Theta, \xi)} \quad (15)$$

ou  $\chi$  est le seuil de plasticité,  $\eta$  une viscosité,  $K_v$  le module de compressibilité,  $G$  un module élastique lié à la partie dissipative,  $C_{10}$  et  $C_{01}$  des paramètres de rigidité correspondant à la partie purement élastique du modèle. En utilisant le principe de normalité force/flux et l'équation (9), on obtient les équations constitutives mécanique :

$$\begin{cases} \sigma = \sigma_{eq} + \sigma_{neq} - p\mathbf{I} \\ \sigma_{eq} = 2\rho \left( \bar{\mathbf{B}} \frac{\partial \Psi_{eq}}{\partial \bar{\mathbf{B}}} \right)^D; \quad \sigma_{neq} = 2\rho \left( \bar{\mathbf{B}}_e \frac{\partial \Psi_{neq}}{\partial \bar{\mathbf{B}}_e} \right)^D; \quad p = -\rho J \frac{\partial \Psi_{vol}}{\partial J} \end{cases} \quad (16)$$

et la loi complémentaire qui régit l'écoulement viscoplastique :

$$\dot{\bar{\mathbf{B}}}_e = \mathbf{L}\bar{\mathbf{B}}_e + \bar{\mathbf{B}}_e\mathbf{L}^T - \frac{2}{3}(\mathbf{I} : \mathbf{D})\bar{\mathbf{B}}_e - \frac{2 \langle f(\sigma_{neq}) \rangle}{\eta(\Theta, \xi)} \frac{\sigma_{neq}}{\|\sigma_{neq}\|} \bar{\mathbf{B}}_e \quad (17)$$

3. Les crochets  $\langle . \rangle$  signifient partie positive de la fonction concernée.

### 3.2 Partie thermique

On prend les potentiels suivants :

$$\Psi_T = C_0 \left( \Theta - \Theta_{ref} - \Theta \ln \left( \frac{\Theta}{\Theta_{ref}} \right) \right) - \frac{C_1}{\Theta_{ref}} \frac{(\Theta - \Theta_{ref})^2}{2} \quad (18)$$

$$\varphi_T^* = \frac{k}{2\Theta} \text{grad}\Theta \text{grad}\Theta \quad (19)$$

avec  $C_0$  et  $C_1$  qui sont respectivement la partie constante et linéaire (vis à vis de la température) de la capacité calorifique,  $k$  est un coefficient<sup>4</sup> de conductivité thermique. En utilisant la normalité, nous retrouvons la loi de Fourier :

$$\mathbf{q} = -k \text{grad}\Theta \quad (20)$$

### 3.3 Partie chimique

Pour la partie chimique on adopte un point de vue purement phénoménologique, l'avancé des réactions chimiques qui impliquent plusieurs espèces est décrite par une équation rhéologique. Ces réactions sont supposées suivre un comportement arrhénien. De plus on suppose également qu'il n'y a pas de réversion<sup>5</sup> chimique, le taux de réticulation est donc strictement positif ou nul. On adopte les formes suivantes :

$$\Psi_C = \left( a(\Theta) \frac{(1-\xi)^{n+1}}{n+1} + a(\Theta_{ref}) \xi (1-\xi_{ref})^n \right) - \Psi_{Cref} \quad (21)$$

$$\varphi_C^* = \frac{1}{2h(\Theta, \xi)} \langle A_C \rangle^2 \quad (22)$$

ou  $\Psi_{Cref}$  désigne un terme constant tel que l'énergie libre soit nulle à l'état de référence (état naturel),  $h$  est un coefficient chimique assimilable à un temps caractéristique,  $a(\Theta)$  est la loi d'Arrhenius :

$$a(\Theta) = a_0 \exp\left(\frac{-E_a}{R\Theta}\right) \quad (23)$$

avec  $R = 8.314 \text{ J/mol/K}$ ,  $E_a$  est l'énergie d'activation,  $a_0$  est un coefficient de vitesse de réaction. En utilisant la définition de la force chimique, eq. (13) et le principe de normalité, nous obtenons :

$$A_C = \rho a(\Theta) (1-\xi)^n - \rho a(\Theta_{ref}) (1-\xi_{ref})^n - \beta \rho \frac{\partial g}{\partial \xi} \frac{J}{J_C} p - \rho \frac{\partial C_{10}}{\partial \xi} (\bar{I}_1 - 3) - \rho \frac{\partial C_{01}}{\partial \xi} (\bar{I}_2 - 3) - \rho \frac{\partial G}{\partial \xi} (\bar{I}_e - 3) \quad (24)$$

$$\xi = \frac{1}{h(\Theta, \xi)} \langle A_C \rangle \quad (25)$$

La force chimique est donc dépendante de la mécanique (partie isochore et pression hydrostatique), de plus le signe de la pression hydrostatique et la dépendance des paramètres mécaniques à la chimie peuvent jouer un rôle favorable ou défavorable sur l'avancé des réactions. Cette propriété est bien en accord avec constats expérimentaux. En particulier, on sait qu'une compression a un rôle favorable sur la vulcanisation alors qu'un état de traction ne l'est pas.

La fonction de retrait  $g$ , doit respecter un certain nombre de conditions pour que le modèle soit admissible. Tout d'abord nous devons avoir  $g(\xi = \xi_{ref}) = 0$  et  $\beta g(\xi) > -1 \forall \xi$  de manière à garantir que la variation de volume chimique soit nulle à l'origine et à conserver l'orientation d'un volume de matière ( $J_c > 0$ ). Pour tenir compte d'un effet de retrait nous devons avoir  $g \leq 0$ . Enfin à  $\xi = 1$  nous souhaitons

4. On suppose pour simplifier que le comportement thermique est isotrope, le tenseur de conductivité s'écrit donc :  $k\mathbf{I}$

5. Expérimentalement on peut constater sous certaines conditions une sorte de réversion chimique. Cependant ces phénomènes sont de notre point de vue surtout liées à des phénomènes de dégradations thermique ou mécanique qui peuvent éventuellement être pris en compte avec des modèles d'endommagement.

obtenir une saturation de l'évolution chimique et donc nous devons avoir  $g'(\xi = 1) \leq 0$ . Au final nous avons retenu la forme suivante :

$$g(\xi) = -\frac{\exp(-(1-\xi)^m) - \exp(-(1-\xi_{ref})^m)}{\exp(-(1-\xi_{ref})^m)} \quad (26)$$

avec  $m$  un paramètre du modèle chimique.

## 4 Equations bilans et formulation variationnelle

L'équilibre est classiquement défini par les équations de conservation de la masse, de conservation de la résultante et du moment dynamique et l'équation de la chaleur qui est déduite du premier principe thermodynamique.

### 4.1 Equations d'équilibre

Dans la suite nous considérons uniquement un problème quasi-statique. De plus, étant donné que nous ne faisons pas de bilan d'espèces chimiques et que nous ne considérons pas de phénomènes de diffusions la conservation de la masse nous donne :  $\rho = J^{-1}\rho_0$ . L'équilibre thermo-mécanique, dans la configuration Eulérienne, s'exprime donc comme suit :

$$\begin{cases} \operatorname{div} \boldsymbol{\sigma} + \rho \mathbf{f}_{\text{vol}} = 0 & \text{dans } \Omega \\ \rho C \dot{\Theta} - \phi_M - \phi_C - l_M - l_C - \rho r + \operatorname{div} \mathbf{q} = 0 & \text{dans } \Omega \end{cases} \quad (27)$$

avec les conditions aux limites et initiales suivantes :

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\sigma} \mathbf{n} &= \mathbf{f}_{\text{surf}} & \text{sur } \partial\Omega_f & & \mathbf{u} &= \mathbf{u}_0 & \text{sur } \partial\Omega_u \\ \mathbf{q} \mathbf{n} &= q_0 & \text{sur } \partial\Omega_q & & \Theta &= \Theta_0 & \text{sur } \partial\Omega_\Theta \\ \Theta(t=0) &= \Theta_{\text{init}} & \text{dans } \Omega & & & & \end{aligned}$$

ou  $r$  est une source volumique externe de chaleur,  $C$  est la capacité calorifique,  $l_M$  et  $l_C$  sont des termes de chaleur latente :

$$C = -\Theta \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \Theta^2}; \quad l_M = \Theta \left( \frac{\partial \sigma_{eq}}{\partial \Theta} + \frac{\partial \sigma_{neq}}{\partial \Theta} \right) : \mathbf{D} - \Theta \frac{\partial p}{\partial \Theta} \operatorname{tr} \mathbf{D} - \Theta \left( \frac{\partial \sigma_{neq}}{\partial \Theta} \right) : \bar{\mathbf{D}}_1^o; \quad l_C = -\Theta \frac{\partial A_c}{\partial \Theta} \dot{\xi} \quad (28)$$

Ces termes sont des fonctions (non-linéaires) de la température, de la déformation, du taux de réticulation. Au final le problème à résoudre se résume par les équations (27), (25), (20), (17) et (16).

### 4.2 Formulation variationnelle

Pour des raisons d'implémentation numérique (homogénéité vis à vis des développements existants), nous reformulons le problème d'équilibre dans la configuration mixte. Les intégrations définis sur le domaine actuel sont ramenés au domaine de référence, le tenseur des contraintes de Cauchy est transporté par la relation suivante :  $\boldsymbol{\Pi} = J \boldsymbol{\sigma} \mathbf{F}^{-T}$ , ou  $\boldsymbol{\Pi}$  est le premier tenseur des contraintes de Piola-Kirchhoff. Enfin le vecteur flux de chaleur est également exprimé dans la configuration de référence :  $\mathbf{Q} = J \mathbf{F}^{-1} \mathbf{q}$ , de manière à pouvoir remplacer la divergence eulérienne (notée  $\operatorname{div}$ ) par une divergence lagrangienne (notée  $\operatorname{DIV}$ ) dans les équations (27).

Nous faisons également le choix d'une formulation variationnelle multi-champs ou en plus des variables naturelles du problème que sont  $\mathbf{u}$ ,  $\Theta$  et  $\xi$  nous introduisons les deux champs, scalaires, supplémentaires  $p$  et  $dp$ . Le premier correspond à la pression hydrostatique qui est défini à l'équation (16), le second correspond à la variation première de cette pression vis à vis de la température. Cette dernière intervient dans les équations (28). En effet, l'introduction de ces variables et donc la vérification sous forme faible de loi de compressibilité nous permet de relâcher la contrainte de quasi-incompressibilité. L'originalité de cette formulation tient à l'introduction de la variable  $dp$ , puisque nous proposons de vérifier la relation liant  $\partial p / \partial \Theta$  à  $\xi, u$  et  $\Theta$  de manière faible.

En utilisant les conditions aux limites et le théorème de la divergence, Le problème sous forme faible s'écrit donc :

$$\text{trouver } (\mathbf{u}, \Theta, \xi, p, dp) \text{ tq. } \forall (\delta \mathbf{u}, \delta \Theta, \delta \xi, \delta p, \delta dp)$$

$$\int_{\Omega_0} (\mathbf{\Pi}_{eq} + \mathbf{\Pi}_{neq} - p \mathbf{J} \mathbf{F}^{-T}) : (\text{GRAD} \delta \mathbf{u}) d\Omega - \int_{\Omega_0} \mathbf{f}_{vol} \delta \mathbf{u} d\Omega - \int_{\partial \Omega_0} \mathbf{\Pi} \mathbf{N} \delta \mathbf{u} dS = 0 \quad (29)$$

$$\int_{\Omega_0} (\rho_0 C \dot{\Theta} - J \Phi_M - J \Phi_C - J l_M - J l_C - \rho_0 r) \delta \Theta d\Omega$$

$$+ \int_{\Omega_0} J k (\text{GRAD} \Theta \cdot \mathbf{C}^{-1} \cdot \text{GRAD} \delta \Theta) d\Omega + \int_{\partial \Omega_0} \mathbf{Q} \mathbf{N} \delta \Theta dS = 0 \quad (30)$$

$$\int_{\Omega_0} J \left( \dot{\xi} - \frac{1}{h} \langle A_c \rangle \right) \delta \xi d\Omega = 0 \quad (31)$$

$$\int_{\Omega_0} \left( -\frac{p}{K_v} - (J_M - 1) J_T^{-1} J_C^{-1} \right) \delta p d\Omega = 0 \quad (32)$$

$$\int_{\Omega_0} \left( -\frac{dp}{K_v} - \alpha (1 - 2J_M) J_T^{-2} J_C^{-1} \right) \delta dp d\Omega = 0 \quad (33)$$

Les équations (38) et (39) sont écrites dans le cas particulier du choix de l'équation (14) pour  $\Psi_{vol}$ .

## 5 Eléments Finis et résultats de simulation

Nous faisons, dans la suite, le choix dans la suite d'utiliser un couplage fort pour la formulation numérique. Ce choix est guidé d'une part par le fait que nous souhaitons prendre en compte l'ensemble des termes de couplage liés à notre modèle de comportement, et d'autre part, nous n'avons d'à priori sur le type de problème à résoudre et donc nous ne pouvons pas distinguer les échelles de temps caractéristiques des différentes physiques.

### 5.1 Discrétisation et linéarisation du problème variationnel

Pour résoudre numériquement les équations précédentes, nous faisons le choix de discrétiser en temps l'équation de la chaleur et l'équation d'évolution chimique à l'aide d'un schéma d'Euler implicite sur un intervalle de temps  $[t_n, t_{n+1}]$ . Les champs inconnus sont ensuite approximé par une discrétisation éléments finis classique, tel que <sup>6</sup> :

$$\mathbf{u}_h^{n+1} = \sum_e [N_u^e] \{u_e^{n+1}\}; \quad \Theta_h^{n+1} = \sum_e [N_\Theta^e] \{\Theta_e^{n+1}\}; \quad \xi_h^{n+1} = \sum_e [N_\xi^e] \{\xi_e^{n+1}\};$$

$$p_h^{n+1} = \sum_e [N_p^e] \{p_e^{n+1}\}; \quad dp_h^{n+1} = \sum_e [N_{dp}^e] \{dp_e^{n+1}\} \quad (34)$$

Nous choisissons également d'approximer de manière continue entre éléments les champs  $\mathbf{u}, \Theta$  et de manière discontinue les champs  $\xi, p, dp$ . Le problème variationnel est donc réécrit sous la forme suivante :

sur un intervalle de temps  $[t_n, t_n + 1]$  trouver les degrés de liberté

$$\{u_e^{n+1}, \Theta_e^{n+1}, \xi_e^{n+1}, p_e^{n+1}, dp_e^{n+1}\} \text{ tq.}$$

$$\mathcal{A} \left( \int_{\Omega_e} \left[ \mathbf{\Pi}_{eq}^{n+1} + \mathbf{\Pi}_{neq}^{n+1} - p_h^{n+1} J^{n+1} \mathbf{F}^{-T^{n+1}} \right] [B_u^e] d\Omega - \int_{\Omega_e} \{\mathbf{f}_{vol}^{n+1}\} [N_u^e] d\Omega - \int_{\partial \Omega_e} \{\mathbf{f}_{surf}^{n+1}\} [N_u^e] dS \right) = 0 \quad (35)$$

$$\mathcal{A} \left( \int_{\Omega_e} \left( \rho_0 C^{n+1} \frac{\Theta_h^{n+1} - \Theta_h^n}{\Delta t} - J^{n+1} (\Phi_M^{n+1} + \Phi_C^{n+1} + l_M^{n+1} + l_C^{n+1}) - \rho_0 r^{n+1} \right) [N_\Theta^e] d\Omega \right.$$

$$\left. + \int_{\Omega_e} J^{n+1} k \{ \Theta_e^{n+1} \} [B_\Theta^e]^T [\mathbf{C}^{-1^{n+1}}] [B_\Theta^e] d\Omega + \int_{\partial \Omega_0} Q_0 [N_\Theta^e] dS \right) = 0 \quad (36)$$

6. Dans la notation adoptée l'exposant désigne le temps

$$\mathcal{A} \left( \int_{\Omega_e} J^{n+1} \left( \frac{\xi_h^{n+1} - \xi_h^n}{\Delta t} - \frac{1}{h} \langle A_c^{n+1} \rangle \right) [N_\xi^e] d\Omega \right) = 0 \quad (37)$$

$$\mathcal{A} \left( \int_{\Omega_e} \left( -\frac{p_h^{n+1}}{K_v} - (J_M^{n+1} - 1) J_T^{-1n+1} J_C^{-1n+1} \right) [N_p^e] d\Omega \right) = 0 \quad (38)$$

$$\mathcal{A} \left( \int_{\Omega_e} \left( -\frac{dp_h^{n+1}}{K_v} - \alpha(1 - 2J_M^{n+1}) J_T^{-2n+1} J_C^{-1n+1} \right) [N_p^e] d\Omega \right) = 0 \quad (39)$$

ou  $\mathcal{A}$  désigne l'opérateur d'assemblage,  $[B_u^e]$  et  $[B_\Theta^e]$  les opérateur gradient élémentaires. Le problème est ensuite linéarisé au temps  $t_{n+1}$  en considérant comme nulle les variations du type :  $\partial(\bullet)^n / \partial(\bullet)^{n+1}$ . Au final nous obtenons une matrice tangente élémentaire de la forme :

$$K^e = \begin{bmatrix} K_{uu} & K_{u\Theta} & K_{u\xi} & K_{up} & 0 \\ K_{\Theta u} & K_{\Theta\Theta} & K_{\Theta\xi} & 0 & K_{\Theta dp} \\ K_{\xi u} & K_{\xi\Theta} & K_{\xi\xi} & K_{\xi p} & 0 \\ K_{pu} & K_{p\Theta} & K_{p\xi} & K_{pp} & 0 \\ K_{dpu} & K_{dp\Theta} & K_{dp\xi} & 0 & K_{dpdp} \end{bmatrix} \quad (40)$$

Le système d'équation est classiquement condensé au niveau élémentaire de manière à éliminer les inconnues  $\xi, p, dp$ . Le système global à résoudre ne concerne plus que les inconnues  $\mathbf{u}, \Theta$ . Enfin l'intégration de l'équation d'évolution mécanique (17) est réalisé localement, en chaque point de gauss, à l'aide d'un schéma implicite spécifique qui est décrit dans [6]. Ce schéma utilise une méthode de sous-discrétisation en temps sur l'intervalle  $[t_n, t_{n+1}]$ .

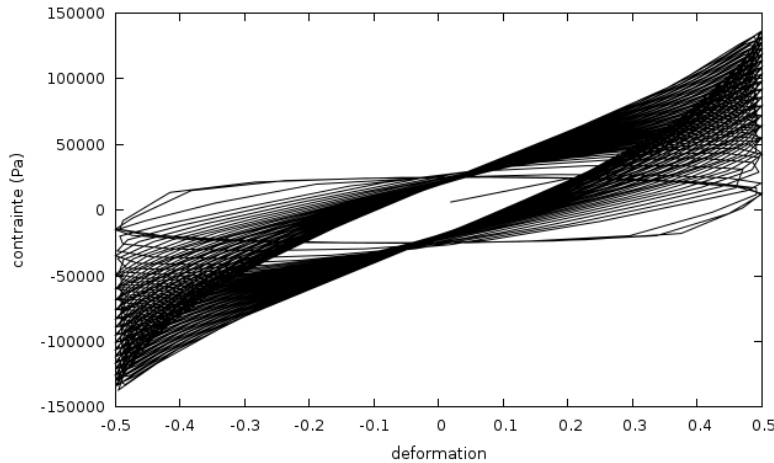


Fig. 1 – Évolution du comportement mécanique

## 5.2 Exemple de simulation : cisaillement cyclique d'un bloc d'élastomère

A titre d'exemple, nous présentons les résultats d'une simulation d'un glissement simple adiabatique. Un bloc d'élastomère est soumis à un chargement mécanique sinusoïdale de 50% à 3Hz. Le taux de réticulation initial est homogène et égale à  $\xi_{ref} = 0.2$ . La température initiale est également homogène et fixée à 293K. Les bords du bloc n'échangent pas de chaleur avec l'extérieur (conditions adiabatiques sur le bord). Le bloc est en déformation plane. Lors des deux premiers cycles mécaniques, un chargement thermique volumique est imposé de manière à élever la température du bloc juste en dessous de la température d'activation chimique. Ce chargement thermique est immédiatement relâché de manière à ce que seul l'auto-échauffement mécanique puisse déclencher l'activation de la réticulation.

La figure 1 montre la rigidification du comportement mécanique au cours des cycles. Le taux de réticulation évolue donc au fur et à mesure que l'auto-échauffement contribue à l'élévation de la température. La figure 2, présente les isovaleurs des champs solutions du problème thermo-chimio-mécanique à la fin du test. On constate une réticulation relativement homogène, qui semble calqué sur la carte de température avec un valeur finale dans la zone homogène  $\xi = 0.34$ .



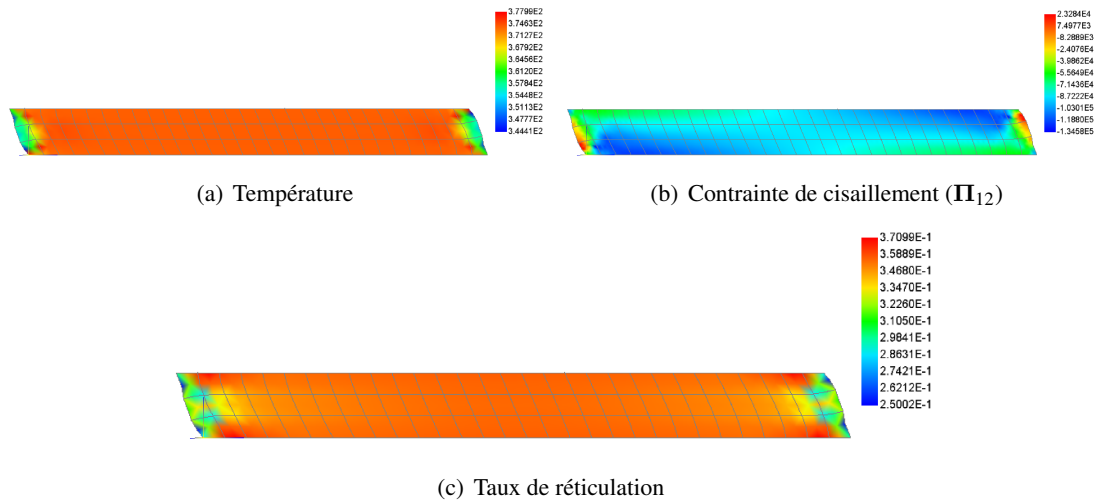


Fig. 2 – Isovaleur des champs solutions

## 6 Conclusion

Nous avons développé un cadre à la fois théorique et numérique pour décrire l'évolution du comportement thermo-mécanique d'élastomères dissipatifs sous sollicitations. Ce cadre qui couple la thermique, la mécanique et une évolution chimique simplifiée, s'inscrit à la fois dans une démarche originale (peu de contributions dans la littérature à l'heure actuelle) et dans l'objectif de mieux reproduire les phénomènes physico-chimiques complexes en jeux au sein de ces matériaux. Ce cadre est général et nous permet de construire différents modèles de comportements (voir [7]). Les résultats numériques nous montrent que ce type de modèle est capable de décrire qualitativement les constats expérimentaux. Il reste cependant de nombreuses questions ouvertes (aussi bien sur le modèle que sur la physique du matériau) avant de pouvoir mener une démarche de validation quantitative par confrontations numérique/expérimentale. En particulier, la question de l'identification des paramètres matériaux et de leur dépendance aux différentes physiques reste à investiguer.

## Références

- [1] A. Lion, P. Hofer *On the phenomenological representation of curing phenomena in continuum mechanics*, Archives of Mechanics, 59-89, 2007.
- [2] K. Kannan, K. Rajagopal *A thermodynamical framework for chemically reacting systems*, ZAMP, 1-33, 2011.
- [3] D. Eyheramendy, D. Guibert *A Java approach for Finite Elements Computational Mechanics*, ECCOMAS Jyvaskyla Finland, 2004.
- [4] P. Garnier, J.-B. Le Cam, M. Grédiac *The influence of cyclic loading conditions on the viscoelastic properties of filled rubber*, Mechanics of Materials, 56, 84-94, 2013.
- [5] J. Grandcoinq *Contribution à la modélisation du comportement dissipatif des élastomères chargés : D'une modélisation micro-physiquement motivée vers la caractérisation de la fatigue*, Rapport de thèse, 2008.
- [6] S. Lejeunes, A. Boukamel, S. Méo *Finite element implementation of nearly-incompressible rheological models based on multiplicative decompositions*, Computers & Structures, 89, 411-421, 2011.
- [7] T.A. N'Guyen *Sur la modélisation et la simulation du couplage thermo-chimio-mécanique au sein des élastomères chargés*, Rapport de thèse, 2012.