

# Influence de la formulation et de la mise en œuvre des mousses polyuréthanes sur les paramètres d'un modèle non-linéaire à dérivées fractionnaires

B. Jebali<sup>a</sup>, T. Weisser<sup>a</sup>, R. Dupuis<sup>a</sup>

a. IRIMAS (EA7499), Université de Haute-Alsace, 12 rue des frères Lumière, 68093 Mulhouse, France

## Résumé :

*Cet article vise à comprendre l'influence de la composition chimique initiale, avant moussage, des mousses polyuréthanes (MPU) sur leur réponse dynamique, à travers l'excitation à la base d'un système mousse/masse-libre. Les résultats obtenus sont l'évolution des paramètres d'un modèle rhéologique à dérivées fractionnaires, en fonction de quatre facteurs : le taux d'eau, le taux de polyol greffé, le poids liquide injecté (PLI) et l'index de la formulation. Le modèle retenu traduit le comportement élastique non-linéaire ainsi que le comportement viscoélastique de la mousse. Le premier est représenté par une fonction polynomiale tandis que le second est modélisé par un terme fractionnaire. Une solution par balance harmonique est développée pour approximer le régime établi de la réponse dynamique. Une procédure d'identification basée sur cette résolution est présentée et appliquée à des données expérimentales collectées à partir de différents plans d'expériences mettant en jeu les paramètres de formulations et de processus des MPU. Enfin, une interprétation des résultats à travers une étude de corrélation et une analyse en composantes principales est réalisée.*

## Abstract:

*The aim of this article is to understand the influence of the initial chemical composition, before foaming, on the dynamic response of polyurethane foams (PU), through a free mass-foam system with a harmonic base excitation. Results obtained are parameters evolution of a rheological model based on fractional derivative with regard to four factors: the water content, the grafted polyol level, the injected liquid weight and the formulation index. The chosen model expresses both nonlinear elastic and viscoelastic behaviors of the foam. The first one is represented by a polynomial function while the second one is modelled by a single fractional derivative term. A harmonic balance solution is developed to approximate the established regime of the dynamic response. An identification procedure based on this resolution is proposed and applied to the experimental data collected from a design of experiments involving both formulation and process parameters of PU foam. Finally, an interpretation of the results through a correlation study and a principal component analysis is performed.*

**Mots clefs : mousse polyuréthane, comportement dynamique des polymères, modèle fractionnaire non-linéaire, identification, propriétés physico-chimiques**

# 1 Introduction

Les mousses polyuréthanes (MPU) sont couramment utilisées dans divers secteurs d'applications allant de l'isolation thermique à l'absorption des chocs et des vibrations. Elles possèdent un grand spectre de propriétés morphologiques et mécaniques intéressantes et exploitables dans de nombreux domaines [1]. Elles se distinguent en deux grandes classes : les mousses rigides et les mousses souples. L'intérêt dans cet article est porté sur la seconde classe pour des applications de confort de moyens d'assise dans l'automobile. En effet, l'enjeu est d'avoir le contrôle sur la formulation chimique des MPU afin de prédire leurs comportements mécaniques.

La synthèse des mousses polyuréthanes se déroule selon deux réactions chimiques simultanées [2]:

- 1- Une réaction Isocyanate-Polyol : la fonction alcool du polyol réagit avec le groupement isocyanate pour former la structure de base du pré-polymère PU. Le rapport entre le nombre de ces groupements définit un facteur principal dans la formulation chimique qui est **l'index de formulation**. La quantité de polyol présente dans le mélange aqueux initial et sa classe d'alcool lui permettent d'agir comme régulateur de la réaction. Ainsi, on définit deux autres facteurs principaux qui sont **le taux de polyol greffé** et **le taux d'eau**.
- 2- Une réaction Isocyanate-Polyol activé-eau : elle permet le dégagement du CO<sub>2</sub> et de la chaleur, provoquant l'expansion de la mousse et son durcissement. Plus la quantité du mélange Isocyanate-Polyol activé injectée dans l'aqueux est importante, plus l'espace d'expansion est limité et moins les bulles de gaz carbonique formées pourront se développer. Il en résulte une influence sur la densité finale de la mousse. On définit ainsi un dernier facteur principal qui est **le poids liquide injecté**.

Le choix de la composition chimique initiale ainsi que des ratios volumiques initiaux va donc impacter directement la formation et le taux de réticulation entre les segments formant la structure interne de la mousse et par conséquent le comportement mécanique des MPU. Dans cette étude, on se propose d'approfondir le sujet en analysant la réponse dynamique d'un système mousse/masse-libre par rapport à ces facteurs principaux.

Dans un premier temps, une présentation du matériau ainsi que du plan d'expériences permettant l'obtention des échantillons testés est effectuée. Ensuite, une description du dispositif d'essai ainsi que de la méthode de mesure est proposée. Puis, une modélisation de ce système résonnant est réalisée, traduisant les efforts existants dans la mousse et donc son comportement mécanique. La résolution de ce modèle en régime établi est obtenue par la méthode de balance harmonique. Une procédure d'identification en découle, permettant d'extraire les paramètres souhaités à partir des mesures. Enfin, une étude de corrélation ainsi qu'une analyse en composantes principales (ACP) entre les différentes variables (paramètres du modèle et facteurs de formulation) sont réalisées dans le but de dégager des liens entre celles-ci.

## 2 Méthode expérimentale

### 2.1 Matériaux testés

Les MPU utilisées dans ce travail sont des mousses à porosité ouverte. Elles sont issues d'une technologie dite « TDI faible densité » (comprise entre 35 et 50 kg/m<sup>3</sup>), en référence à l'isocyanate (Toluène DIsocyanate) utilisé lors de la production. Elles ont été réalisées dans les mêmes conditions de processus de fabrication (débit de coulée, temps de polymérisation, température du moule, agent démoulant).

Les formulations chimiques pour la formation des mousses polyuréthanes font intervenir de nombreux paramètres comme :

- le type d'isocyanate ;
- la quantité de polyol copolymère ;
- la quantité d'eau ;
- les agents d'expansion, les catalyseurs, les surfactants, les réticulants...

Ainsi les facteurs principaux dont nous allons tenir compte dans notre plan d'expérience sont : le taux d'eau (en %), le taux de polyol copolymère (CCP, en %), l'index de formulation et le poids liquide injecté (PLI, en g).

Afin d'obtenir des formulations chimiques différentes, le plan d'expériences, présenté dans le tableau 1, est adopté des travaux de thèse antérieurs réalisée au sein de notre équipe [3] :

Facteurs	Nbres de niveaux	Déf. des niveaux
Taux CCP (%)	3	[15, 30, 55]
Taux H2O (%)	5	[2.5, 2.8, 3.0, 3.5, 4.0]
Index (%)	4	[70, 80, 90, 100]
PLI (g)	4	[405,460, 570,725]

Tableau 1 - Plan d'expérience : TDI faible densité

Ainsi avec ces quatre facteurs on obtient :  $5^1 \times 4^2 \times 3^1 = 240$  lots de mousses. Par souci de faisabilité, on se propose de ne retenir que 9 lots de mousses qui engendreront 58 échantillons de formulations différentes.

## 2.2 Description du dispositif d'essai

Les essais présentés dans cet article ont été menés à l'aide d'un système vibratoire "masse-libre" (voir figure 1) conçu pour une machine de type INSTRON 8800 K5608. Il est composé d'un échantillon de mousse de section carrée ( $100 \times 100 \times 40$  mm), placé entre deux plateaux ayant un mouvement de translation verticale l'un par rapport à l'autre. Deux colonnes montées dans des paliers à air imposent ce mouvement unidirectionnel et permettent de limiter au maximum les frottements. La base du montage est installée sur le vérin de la machine afin de réaliser une excitation sinusoïdale. Son amplitude est fixée à 1 mm et sa fréquence varie de 1 à 20 Hz par incrément de 0,5 Hz et de 0,1 Hz dans la bande  $[f_{resonance} - 2, f_{resonance} + 2]$  Hz ou  $f_{resonance}$  correspond à la fréquence de résonance d'amplitude du système.

Une pré-charge de 3 kg est appliquée sur la mousse afin d'avoir une compression moyenne de  $300 \text{ kg/m}^2$ . Ce choix de pré-charge a été effectué afin de reproduire la contrainte moyenne exercée par un conducteur assis sur un siège automobile [4]. La prise de mesure est effectuée en déplacement sur le plateau supérieur à l'aide d'un capteur LVDT.

A chaque incrément de fréquence, le signal d'excitation sinusoïdale effectue 200 cycles. Durant l'essai, on mesure sur les 100 derniers cycles de chaque incrément de fréquence l'amplitude d'excitation et l'amplitude de la réponse. Cela permet de considérer que les efforts au sein de la mousse se sont stabilisés et que le régime transitoire est passé. On récupère ainsi l'évolution de l'amplitude de déplacement de la mousse en termes de partie réelle et partie imaginaire en fonction de la fréquence.

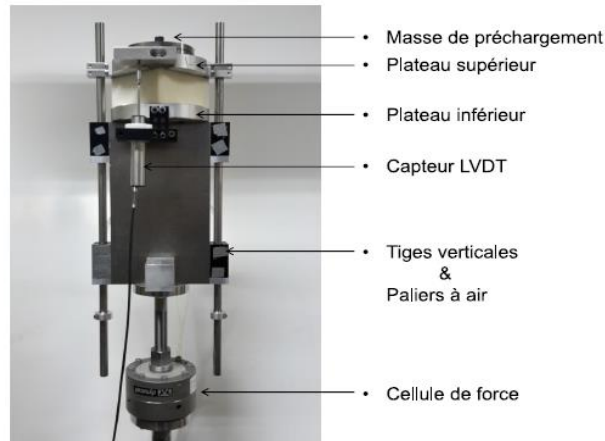


Figure 1 - Dispositif d'essai mousse/masse-libre

### 3 Modélisation numérique

#### 3.1 Modélisation du système résonant

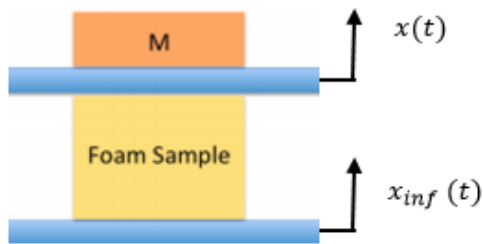


Figure 2 - Schéma du système résonant

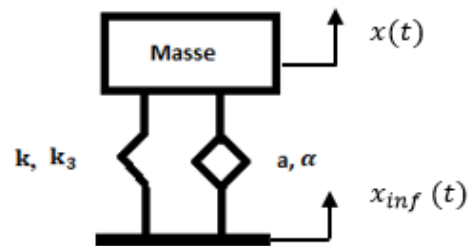


Figure 3 – Schéma rhéologique

Le modèle, représentant le comportement dynamique unidirectionnel du système mousse/masse-libre, est comme suit :

$$m\ddot{x} + kx + k_3x^3 + aD^\alpha x = -m\ddot{x}_{inf} \quad (1)$$

Avec,  $D^\alpha = \frac{d^\alpha}{dt^\alpha}$  définit comme une dérivée fractionnaire [5] avec  $0 < \alpha < 1$ .

Où  $x$  décrit le déplacement relatif du plateau supérieur et  $x_{inf} = G * \cos(\omega t)$ , le déplacement du plateau inférieur d'amplitude d'excitation  $G$ . La mousse, soumise au chargement de la masse  $m$  est modélisée par les éléments rhéologiques suivants : un ressort non-linéaire de raideurs  $k$  et  $k_3$  respectivement d'ordre 1 et 3 en déplacement et un élément viscoélastique fractionnaire dont les paramètres sont  $a$  et  $\alpha$ . Si  $\alpha$  vaut 1, le comportement décrit est un amortissement visqueux pur et si  $\alpha$  vaut 0 le comportement décrit est élastique. L'avantage de ce modèle est de décrire fidèlement le comportement dynamique des matériaux mous avec un minimum de paramètres matériaux [6]. On suppose ainsi que toute forme de dissipation est traduite par le terme aux dérivées fractionnaires.

Il n'existe aucune forme de solution exacte pour cette équation non-linéaire aux dérivées fractionnaires. Pour une résolution en régime établi, on considère une solution par balance harmonique avec une seule harmonique. La réponse du système peut alors s'exprimer sur une base de Fourier, telle que :

$$x(t) = A e^{i\omega t} + \bar{A} e^{-i\omega t} \quad (2)$$

où  $A = A_r + iA_i$  représente l'amplitude complexe de la réponse et  $\bar{A}$  son complexe conjugué. En injectant cette solution dans l'équation (1), en équilibrant les deux membres suivant la partie réelle de l'excitation et en séparant suivant la partie réelle et la partie imaginaire de l'amplitude de la réponse, on obtient les deux équations suivantes [7] :

$$F_1(\omega, z) = p(\omega, z)|A|^2 + \frac{mG}{2} A_r \quad (3)$$

$$F_2(\omega, z) = q(\omega, z)|A|^2 - \frac{mG}{2} A_i \quad (4)$$

avec,

$$p(\omega) = -m\omega^2 + a\omega^\alpha \cos\left(\frac{\pi}{2}\alpha\right) + k + 3k_3|A|^2 \quad (5)$$

$$q(\omega) = a\omega^\alpha \sin\left(\frac{\pi}{2}\alpha\right) \quad (6)$$

En élevant au carré les équations (3) et (4) et en les additionnant on obtient :

$$\begin{aligned} & [20(-m\omega^2 + k + 9k_3^2)]|A|^6 + 6k_3 \left[ -m\omega^2 + a\omega^\alpha \cos\left(\frac{\pi}{2}\alpha\right) + k \right] |A|^4 \\ & + \left[ \left( -m\omega^2 + a\omega^\alpha \cos\left(\frac{\pi}{2}\alpha\right) + k \right)^2 + \left( a\omega^\alpha \sin\left(\frac{\pi}{2}\alpha\right) \right)^2 \right] |A|^2 - \frac{(mG)^2}{4} = 0 \end{aligned} \quad (7)$$

L'équation (7) est un polynôme de degré 3 en  $|A|^2$ . Les solutions positifs générés permettent ainsi d'avoir l'amplitude de la réponse en fonction de la fréquence, en connaissant les paramètres matériaux.

### 3.2 Procédure d'identification

La procédure d'identification du vecteur des paramètres matériaux  $\mathbf{z} = [k \ k_3 \ a \ \alpha]^T$  est basée une fonction erreur formulée à partir des équations (3) et (4). Elle s'écrit comme suit :

$$\mathcal{E} = \sum_{n=1}^M (|F_1(\omega_n, z)|^2 + |F_2(\omega_n, z)|^2) \quad (8)$$

Donc en se donnant un ensemble de mesures, avec  $M$  points fréquentiels, des parties réelles et imaginaires, respectivement  $A_r$  et  $A_i$ , en fonction de  $\omega$ , la procédure d'identification revient à résoudre le problème de minimisation suivant :

$$\begin{cases} \min_z \mathcal{E}(\omega_n, z) \\ \text{avec } lb \leq z \leq ub \end{cases} \quad (9)$$

où :

- $lb$  et  $ub$  sont respectivement la borne inférieure et la borne supérieure imposée au vecteur des inconnues  $\mathbf{z}$ .

- $k$  est définie comme une quantité strictement positive, vu que les valeurs négatives n'ont pas de sens physique.
- $k_3$  est limitée à des valeurs négatives vu que la mousse tend vers un comportement assouplissant lors de l'apparition de la non-linéarité aux alentours de la résonance.
- $\alpha$  est compris entre 0 et 1, par définition.
- $a$  peut a priori prendre n'importe quelle valeur.

Ce problème de minimisation au sens des moindres carrés peut être résolu par un algorithme dit « de région de confiance » implémenté dans la fonction Matlab *Lsqnonlin*. Cet algorithme nécessite une phase d'initialisation afin de démarrer un processus itératif pour la recherche d'un optimum. Pour effectuer un bon choix du point initial, on se propose d'effectuer une première phase d'optimisation à l'aide d'un algorithme génétique, avec un échantillonnage par la méthode Latin Hyper Cube. Cette première phase d'optimisation est initialisée à l'aide des paramètres calculés graphiquement sur la courbe de la réponse expérimentale. Par exemple, la raideur élastique  $k$  est estimée à partir de la fréquence de résonance. Une fois la solution optimale de cette première phase d'optimisation obtenue, celle-ci est utilisée comme point initial pour le solveur *Lsqnonlin*. Les critères d'arrêt de chaque processus d'optimisation sont réglés après plusieurs essais, par rapport à la convergence de l'erreur relative à chaque itération.

Cette procédure d'identification est illustrée à partir de mesures de l'amplitude de la réponse dynamique d'un échantillon de mousse de technologie TDI issu du plan d'expérience. On retrouve dans le tableau 2 les valeurs optimales identifiées. La convergence a été assurée pour une tolérance sur la fonction objectif de l'ordre de  $10^{-6}$ . Sur la figure 4, la reconstruction de l'amplitude identifiée ainsi que l'amplitude expérimentale sont représentées. La qualité du résultat obtenu permet de valider la procédure d'identification proposée.

Paramètres	$k_{op}$	$k_{3op}$	$\alpha_{op}$	$\alpha_{op}$
Unités	[N/m]	[N/m <sup>3</sup> ]	[N/m <sup><math>\alpha</math></sup> ]	[S]
Valeurs	3630.6	-5.0041e07	123.7	0.5815

Tableau 2 – Paramètres optimaux issus de la procédure d'identification

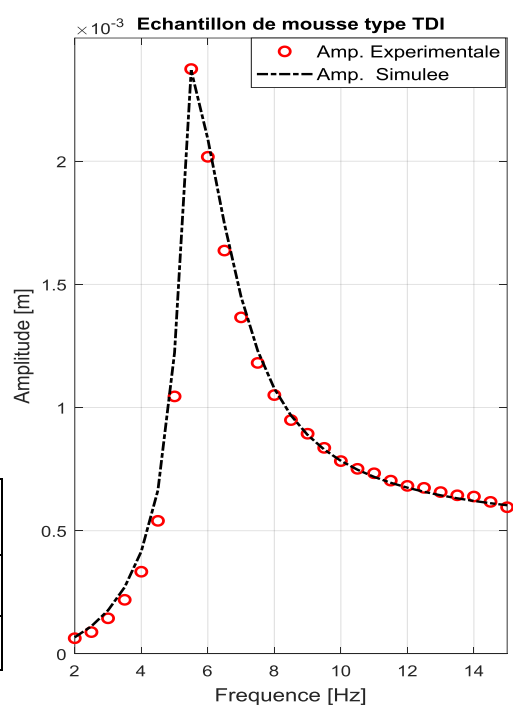


Figure 4 – Amplitude mesurée (en rouge) et amplitude identifiée (en noir)

## 4 Application au plan d'expérience et corrélations

Dans cette partie, la procédure d'identification est appliquée à chaque lot de MPU et les paramètres matériaux décrits par le modèle sont identifiés. En considérant comme variables les facteurs de la formulation chimique et les paramètres matériaux, une analyse en composantes principales est réalisée. Cette technique statistique permet l'analyse de données multidimensionnelles d'une manière descriptive et qualitative. Elle permet de réduire la dimension de l'espace des variables, en limitant la perte

d'information et en préservant les relations existant déjà entre celles-ci [8]. Elle peut donc être utilisée dans cette étude afin de corrélérer et de qualifier les liens existants entre les différentes variables.

Pour y procéder, la matrice des données est formulée de sorte que les variables (*CCP*, *H<sub>2</sub>O*, *Index*, *PLI*, *k*, *k<sub>3</sub>*, *a*, *α*) soient en colonnes et que les 58 formulations (observations) retenues soient arrangées suivant les lignes de cette matrice. Donc la matrice des données *X* est de dimension ( $n = 58 * p = 8$ ). Afin d'appliquer l'ACP, on procède classiquement par 4 étapes :

- 1- Centrer et réduire les données :

$$X_n = (X - I * \bar{X}) ./ \sigma(X) \quad (10)$$

- 2- Calculer la matrice de corrélation :

$$X_{corr} = \frac{1}{n} * X'_n * X_n \quad (11)$$

- 3- Calculer les valeurs et vecteurs propres :

$$X_{corr}^T * X_{corr} * V = \lambda * V \quad (12)$$

- 4- Projeter les observations :

$$U = X_n * V \quad (13)$$

Avec :

- *X* : la matrice des données de dimension  $n * p$ .
- $\bar{X}$  : le vecteur des moyennes de chaque colonne de *X*.
- *I* : la matrice identité.
- $\sigma(X)$  : le vecteur des écart type de chaque colonne de *X*.
- *X<sub>corr</sub>* : la matrice de corrélation des variables de *X*.
- *V*,  $\lambda$  : respectivement les vecteurs propres et les valeurs propres de *X<sub>corr</sub>*.
- *U* : les observations projetées le nouvel espace.

On précise ici qu'on a choisi d'effectuer cette étude en se basant sur les valeurs propres et les vecteurs propres de la matrice de corrélation *X<sub>corr</sub>*. Elle est représentée sur la figure 5 :

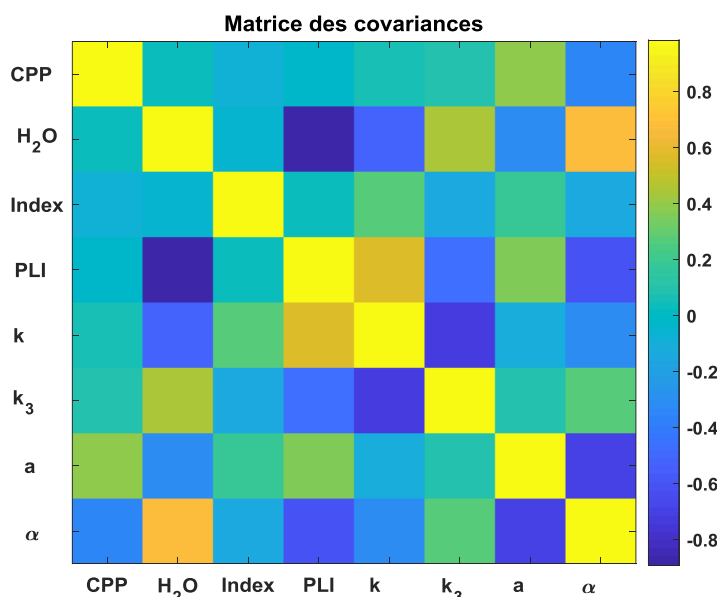


Figure 5 – La matrice de corrélations des variables

La matrice de corrélation nous indique la qualité de liaison qui existe entre les variables. On peut observer en première lecture que les paramètres élastiques  $k$  et  $k_3$  sont moyennement corrélés aux taux de CPP. On note que la raideur élastique  $k_3$  est fortement impactée par la quantité d'eau. L'exposant fractionnaire  $\alpha$  l'est aussi. Le paramètre fractionnaire  $a$  est principalement corrélé au taux de CPP et au taux de PLI, responsable de la génération de la structure de la MPU.

Une fois les 4 étapes appliquées, la déduction des composantes principales est basée sur le classement décroissant des valeurs propres de cette matrice de corrélation. Elles sont présentées, ainsi que leurs variabilités cumulées, dans le tableau 3.

	Valeurs propres	Variabilité cumulée
<b>F1</b>	3.3966	43.203
<b>F2</b>	1.7668	65.675
<b>F3</b>	1.0359	78.851
<b>F4</b>	0.89758	90.267
<b>F5</b>	0.3804	95.106
<b>F6</b>	0.19297	97.56
<b>F7</b>	0.13446	99.27
<b>F8</b>	0.05736	100

Tableau 3 – Valeurs propres et leurs variabilités cumulées (leurs inerties)

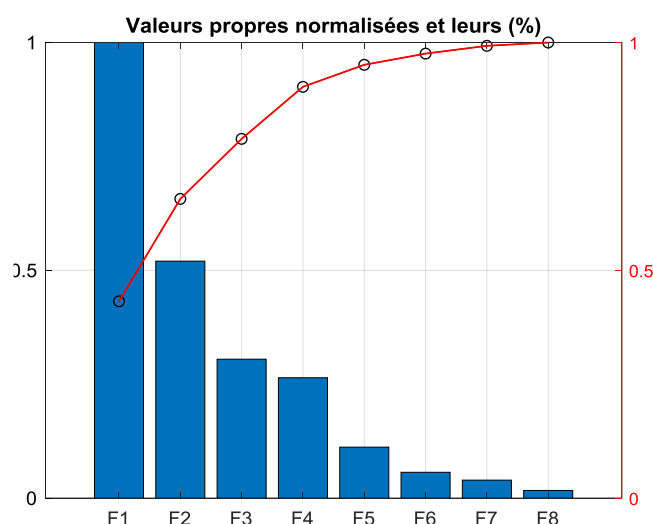


Figure 6 – Diagramme de la décroissance des valeurs propres (en bar) et leurs variabilités cumulées normalisées (en -o-)

Ainsi le tableau 3 montre une variabilité cumulée des trois premières valeurs propres de 78.9%. Cela indique que les 3 trois premiers axes (vecteurs propres) portent à eux trois 78.9% de l'inertie totale du nuage des observations. Néanmoins, en regard de la figure 6, on a tendance à adopter la quatrième composante et la retenir comme principale. Dans un premier temps de notre étude, on ne retiendra que la première et la deuxième valeur propre. Les vecteurs propres associées à ces valeurs propres représentent donc la première composante principale ainsi que la deuxième et peuvent décrire 65,6% de l'inertie totale. La répartition des observations ainsi que la répartition des variables, suivant ces deux directions, sont présentées respectivement sur la figure 7 et la figure 8.

La figure 7 représente les observations projetées dans le nouvel espace de l'analyse, suivant les deux premières composantes principales. Il n'y a pas d'apparition de nuages ou de regroupements des observations particuliers suivant une direction distincte. Néanmoins, un regroupement d'observations par rapport à la seconde composante principale apparaît.

Le cercle de corrélation présent sur la figure 8 nous renseigne sur la qualité de la représentation des variables dans l'espace réduit. Plus celle-ci est proche du cercle unitaire, meilleure est la qualité de sa représentation. Ici, la qualité de représentation des variables est à peu près égale vu quelles sont à distance égale du cercle. On ne constate donc pas de distinction significative, a priori.



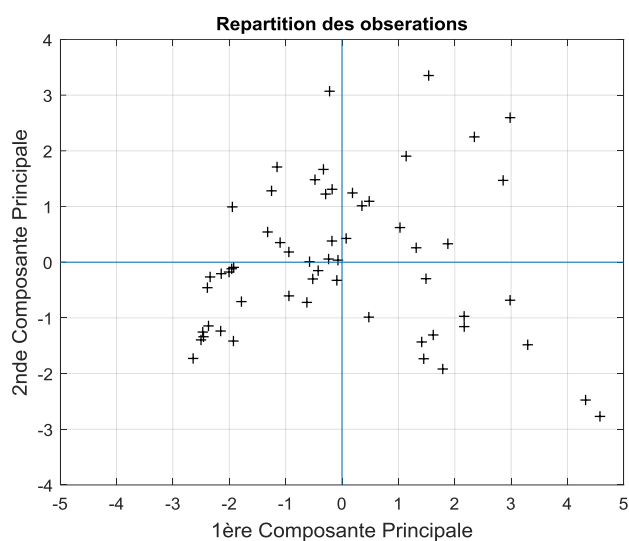


Figure 7 – Répartition des observations dans l'espace réduit

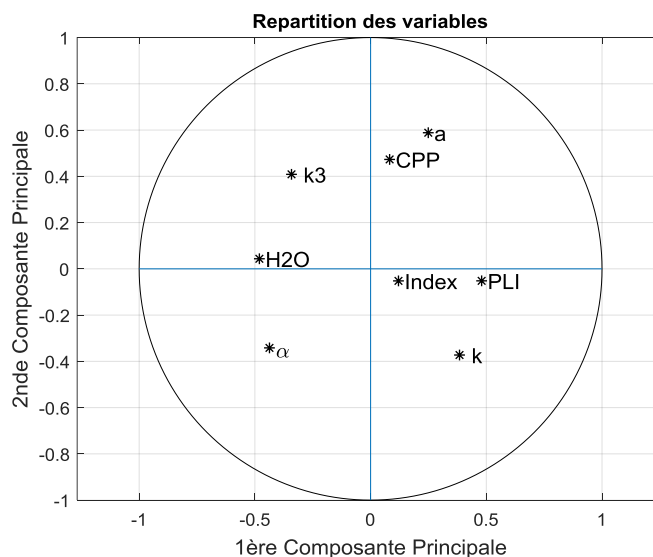


Figure 8 – Répartition des variables dans l'espace réduit

## 5 Conclusion

Une procédure pour l'étude de l'influence de la formulation chimique des mousses polyuréthanes sur le comportement dynamique de celle-ci est développé dans cet article. Dans un premier lieu, un système résonant à un degré de liberté, permettant de solliciter le comportement dynamique en basse fréquence à une faible amplitude du matériau retenu est présenté. Ensuite une équation de mouvement est déduite à travers un modèle rhéologique simplifié de ce système. Le modèle décrit les effets élastiques dans la mousse à travers un ressort non linéaire en déplacement, ainsi que les efforts viscoélastiques comme un élément rhéologique fractionnaire à un terme. Il a été montré que ce modèle décrit correctement le comportement dynamique des MPU. Le régime établi de la réponse dynamique de la mousse est décrit à travers une solution par balance harmonique. Un système d'identification est mis en place comportant à la fois un algorithme génétique et un algorithme par région de confiance. Il a permis d'identifier les paramètres matériaux à partir des mesures de l'amplitude de la réponse. Enfin, une analyse en composantes principales est exposée en retenant les quatre facteurs de la formulation chimique et les quatre paramètres matériaux. Toutefois, une étude plus approfondie de l'ensemble des résultats obtenus semble encore nécessaire, afin de dégager des corrélations entre les paramètres contrôlant la réponse dynamique des MPU et leurs formulations chimiques.

## Références

- [1] Gibson, L. J., & Ashby, M. F. (1999). Cellular solids: structure and properties. Cambridge university press.
- [2] Cerdan, F. (2017). Etude du vieillissement hydrique et des effets de couplages hygro-thermo-mécaniques sur le comportement d'une mousse polyuréthane renforcée par des fibres de verre au sein d'une membrane Mark III (Doctoral dissertation, ISAE-ENSMA Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique-Poitiers).

- [3] Duboeuf, O. (2017). Contribution à l'optimisation du confort dynamique de sièges automobiles par la compréhension des mousses de polyuréthanes (Thèse de Doctorat, Mulhouse).
- [4] Barbeau, R. (2018) Characterization and modeling of automotive seat dynamics: toward the robust optimization of vibrational comfort (Thèse de Doctorat, Mulhouse).
- [5] Bagley, R. L., & TORVIK, J. (1983). Fractional calculus-a different approach to the analysis of viscoelastically damped structures. *AIAA journal*, 21 (5), 741-748.
- [6] Deng, R., Davies, P., & Bajaj, A. K. (2003). Flexible polyurethane foam modelling and identification of viscoelastic parameters for automotive seating applications. *Journal of Sound and Vibration*, 262(3), 391-417.
- [7] Nayfeh, A. H., & Mook, D. T. (1979). *Nonlinear oscillations*. John Wiley & Sons.
- [8] J. Shlens A Tutorial on PCA. <http://www.brainmapping.org/NITP/PNA/Readings/pca.pdf>