

Validation du modèle “Visco-hyperelastic Network Unit” (VENU) pour la prédiction du comportement mécanique de polymères thermoplastiques

J.L. Bouvard, N. Billon

Mines-ParisTech, CEMEF, UMR 7635, BP 207, 06904 Sophia Antipolis cedex, France

Résumé :

Dans cette étude, deux modèles de comportement (Bouvard et al. [2,3] (Modèle 1) et Billon et al. [4,5] (Modèle 2)) sont comparés sur la base d'essais de compression et de traction réalisés à différentes vitesses de déformation et de températures sur un polypropylène isotactique. Cette étude a pour but de caractériser les forces et faiblesses de ces deux approches afin de converger sur l'établissement d'un modèle « commun » plus riche en termes de modélisation thermomécanique d'une matrice thermoplastique. Le Modèle 1 a montré sa capacité à reproduire avec un bon accord les essais de compression et de traction mais ce au prix d'un nombre élevé de paramètres. Le Modèle 2, construit sur le concept de la dynamique des chaînes, a montré sa capacité à reproduire les essais de compression avec un faible nombre de paramètres. Les travaux futurs s'orienteront donc vers une amélioration du Modèle 2 avec par exemple la prise en compte d'une dépendance à l'état de contrainte.

Abstract :

In this study, two different material models (Model 1 from Bouvard et al. [2,3] and Model 2 from Billon et al. [4,5]) are compared on the basis of compression and tensile tests performed on an isotactic polypropylene at different strain rates and temperatures. The purpose of this study is to characterize the strengths and weaknesses of the two previous approaches in order to develop a refined model capable of predicting the thermomechanical behavior of a thermoplastic matrix. Model 1 showed its capability to capture the compression and tensile tests despite a large number of model parameters. Model 2 was established from a Non Gaussian statistical approach and showed its capability to predict the compression tests with only a few number of parameters. Future work will focus on improving the constitutive equation of Model 2, for instance by introducing a dependence to the stress state.

Mots clefs : lois de comportement ; grandes déformations ; viscoélasticité ; viscoplasticité ; thermoplastiques ; semicristallins

1 Introduction

De nouvelles données économiques, telles que la réduction des réserves pétrolières mondiales, obligent les domaines des transports à trouver des solutions rapides afin de diminuer la consommation en essence et les émissions de CO₂ des futurs véhicules. Ceci passe par l'allègement des modèles et l'utilisation de nouveaux matériaux alliant légèreté et résistance. Les matériaux composites, à renforts discontinus ou continus, se sont montrés être une alternative séduisante à ces défis. Le développement de modèles de comportement permettant à la fois de prédire le comportement mécanique complexe du composite et également d'être intégrés dans des codes de calcul éléments finis dans le but de dimensionner des structures à géométries complexes reste un véritable challenge.

L'enjeu de cette étude est, dans un premier temps, l'amélioration de la prédiction du comportement thermomécanique de la matrice via le développement d'un modèle physiquement justifié. Cette loi de comportement sera ensuite incorporée, à l'échelle du composite, dans un modèle plus complet développé par Andriyana et al. [1] dans le but d'affiner la modélisation du comportement macroscopique de composites à renforts discontinus.

Dans la présente étude, nous comparerons, au travers d'une campagne expérimentale menée sur un polypropylène, polymère semi-cristallin, les réponses de deux modèles thermomécaniques développés très

récemment par Bouvard et al. [2,3] (Modèle 1) et Billon et al. [4,5] (Modèle 2) pour des matrices thermoplastiques. Ces deux modèles écrits dans un cadre thermomécanique divergent de par leurs constructions intrinsèques présentées dans la partie 2. Cette étude préliminaire a pour but de caractériser les forces et faiblesses de chacune des deux approches afin de converger sur l'établissement d'un modèle « commun » plus riche.

2 Lois de comportement de la matrice thermoplastique

2.1 Modèle 1

Bouvard et al. [1,2] ont récemment établi un modèle thermomécanique à variables internes développé en grandes déformations. L'approche suit un formalisme similaire à celui utilisés par Anand et al. [6] et Richeton et al. [7]. Ce modèle a été développé afin de rendre compte des effets du temps, de la température et des états de contrainte sur le comportement mécanique du polymère. Une présentation complète du modèle peut être trouvée dans [2].

Le modèle de comportement a été construit en suivant les étapes ci-après:

- 1) **Détermination des variables internes du modèle à partir d'une stratégie multi-échelle** : trois variables internes ont été sélectionnées afin de rendre compte du glissement des chaînes de polymères les unes par rapport aux autres (qui induit un adoucissement du matériau), de l'élongation et de la réorientation de ces chaînes dans la direction du chargement (qui induit un durcissement du matériau)
- 2) **Détermination de la cinématique du modèle en grandes déformations** : les observations d'essais de compression en charge/décharge pour différents niveaux de déformation mais également à différentes vitesses de déformation et températures suggèrent une décomposition du gradient de transformation total \mathbf{F} suivant :

$$\mathbf{F} = \mathbf{F}^e \mathbf{F}^p \mathbf{F}^0 \quad (1)$$

où \mathbf{F}^e est le gradient de transformation élastique relatif aux mécanismes viscoélastiques réversibles, \mathbf{F}^p est le gradient de transformation plastique relatif aux mécanismes de dissipation tels que le glissement des chaînes de polymères et \mathbf{F}^0 est un gradient de transformation d'origine thermique.

- 3) **Écriture du cadre thermodynamique** : Les première et seconde lois de la thermodynamique écrites en grandes déformations sont utilisées pour établir l'inégalité de Clausius-Duhem. Cette inégalité est essentielle dans la formulation des quantités de contrainte, d'entropie du système et de contraintes internes associées aux variables d'état. Elle permet également d'établir l'équation de la chaleur qui décrit l'évolution de la température au sein du matériau.
- 4) **Écriture des équations 3D du modèle**: La loi de comportement est établie par la prise en compte: i) de la viscoplasticité du matériau, ii) des lois d'évolution des variables internes du modèle qui traduisent l'évolution de la microstructure du polymère au cours de sa déformation, iii) du couplage thermomécanique qui permet de décrire l'adoucissement thermique du matériau.

Ce modèle, implémenté dans le code élément fini ABAQUS, a été validé pour des polymères amorphes à l'état vitreux, soumis à des chargements de traction, compression, fluage, torsion et d'impact à différentes vitesses de déformation et à différentes températures. Il a également été utilisé pour décrire le comportement d'un polycarbonate lors d'essais de compression à grande vitesse de déformation (simulation d'un dispositif de barres Hopkinson). Le couplage thermomécanique a permis de modéliser l'adoucissement thermique du matériau observé expérimentalement à partir de vitesses de déformation de l'ordre de 0.1/s.

2.2 Modèle 2

Billon et al. [4,5] ont développé un modèle thermomécanique à variables d'état (qui s'inscrit dans un cadre thermodynamique) établi à partir du modèle hyperélastique d'Edwards Vilgis [8]. Ce dernier modèle représente le polymère comme un réseau de chaînes non gaussiennes reliées à la fois par des points de réticulation ou nœuds figés (caractérisés par leur densité N_c) et des points d'enchevêtrement ou nœuds mobiles (caractérisés par leur densité N_s et un degré de liberté η).

Aux deux densités de points de réticulation et de points d'enchevêtrement s'ajoutent le potentiel d'extensibilité, α et, donc, la mesure du glissement potentiel dans les nœuds d'enchevêtrement, η . Si ce dernier paramètre vaut $\eta=0$, alors il n'y a plus de glissement autorisé et les points d'enchevêtrement sont des points de réticulation. Au contraire une valeur de η élevée correspondra à un degré de glissement des points d'enchevêtrement important.

Billon et al. [4,5] ont étendu le modèle d'Edwards Vilgis [8] en donnant tout d'abord une cinétique d'évolution propre à la grandeur η . Les auteurs ont choisi une cinétique d'évolution fonction de l'énergie élastique stockée dans le réseau. En effet, plus cette énergie stockée est importante, plus le réseau sera contraint et plus il aura tendance à se désenchevêtrer rapidement.

Ce désenchevêtrement est également la source de mécanismes dissipatifs qui peuvent être à l'origine de l'anélasticité du matériau (telle que viscoélasticité et viscoplasticité) et de mécanismes de dissipation de chaleur tels qu'observé par [5].

Dans cette première approche un coefficient de Taylor-Quinney permet d'introduire la fraction du travail anélastique convertie en chaleur.

La dépendance avec la vitesse de déformation et la température sont introduites de manière couplée via le facteur de glissement de WLF, $aT/R0$. Ainsi les paramètres mécaniques sont écrits (quelle que soit la température T) en fonction de $a_{T/T_0} \cdot \dot{\epsilon}$ qui est la vitesse équivalente à la température de référence T0. Cette écriture du modèle a l'avantage de réunir en un seul terme la double sensibilité du matériau en temps et en température. Sa validité est vérifiée expérimentalement pour chaque polymère.

Enfin l'équation de la chaleur a été établie par les auteurs et validée pour des observations thermomécaniques réalisées en traction et en cisaillement sur un polyamide 6.6 (PA6.6) [5,9]

Ce modèle a été validé dans le cas d'un PMMA, d'un PS, d'un PET et d'un PA 6.6 mais n'a jamais été appliqué dans le cas d'un PP.

Une présentation complète du modèle peut être trouvée dans [4,5].

3 Confrontation modèles/essais

3.1 Procédure d'essais

Le polymère thermoplastique sélectionné pour cette étude est un polypropylène isostatique (PP100 series) commercialisé par la société ExxonMobil. La température de transition vitreuse de ce PP a été estimée via des analyses de mécanique dynamique à 10°C (pour une fréquence de sollicitation de 1 Hz en flexion trois points).

Des essais de traction et de compression ont été réalisés sur une machine de traction électromécanique INSTRON 5882. Ces essais ont été réalisés à vitesse de déformation nominale contrôlée via l'utilisation d'un extensomètre INSTRON 2630-110. Les essais à différentes températures ont été réalisés via l'utilisation d'un four régulé. Un thermocouple situé à proximité de l'éprouvette a été utilisé afin d'assurer une température constante dans l'enceinte thermique.

Dans le cas de la compression et dans le but de minimiser les mécanismes de friction, des plaques de téflon ont été placées entre l'éprouvette et les plateaux. Un lubrifiant a été également utilisé entre les plaques et les plateaux de compression. La géométrie des éprouvettes de compression a été choisie cylindrique de 5 mm de diamètre et 2.5 mm d'épaisseur. Ces éprouvettes ont été usinées à partir de disque de 10 mm d'épaisseur. La géométrie des éprouvettes de traction a été établie à partir de la norme ASTM D638-03 pour une géométrie de type I. Ces éprouvettes ont été usinées dans des plaques de 3 mm d'épaisseur.

3.2 Résultats

Cette partie présente une confrontation des essais expérimentaux avec les réponses des deux modèles de comportement sélectionnés. Les simulations ont été réalisées à partir d'une implémentation 1D des modèles dans le code de calcul MATLAB.

La figure 1 présente les réponses des Modèles 1 et 2 pour la simulation d'essais de compression réalisée sur le PP à trois différentes vitesses de déformation (0.0005/s, 0.01/s et 0.1/s) et trois températures (-20°C, 25°C et 70°C). On remarque un bon accord essais/modélisations numériques. La dépendance du matériau à la vitesse de déformation et à la température est correctement reproduite par les deux modèles. On peut également noter des réponses assez similaires pour ces deux derniers.

Toutefois, il est à noter que le choix, qui a été fait dans le Modèle 2, d'introduire l'équivalence temps/température comme principale dépendance de certains paramètres à la température a l'intérêt d'avoir à identifier seulement deux paramètres C1 et C2 de la loi WLF. Ce choix permet également une modélisation assez fine du comportement du polymère en température. Le Modèle 1 qui utilise une dépendance linéaire de ces paramètres à la température a l'inconvénient d'avoir à utiliser une identification plus lourde (au total 6 paramètres à identifier).

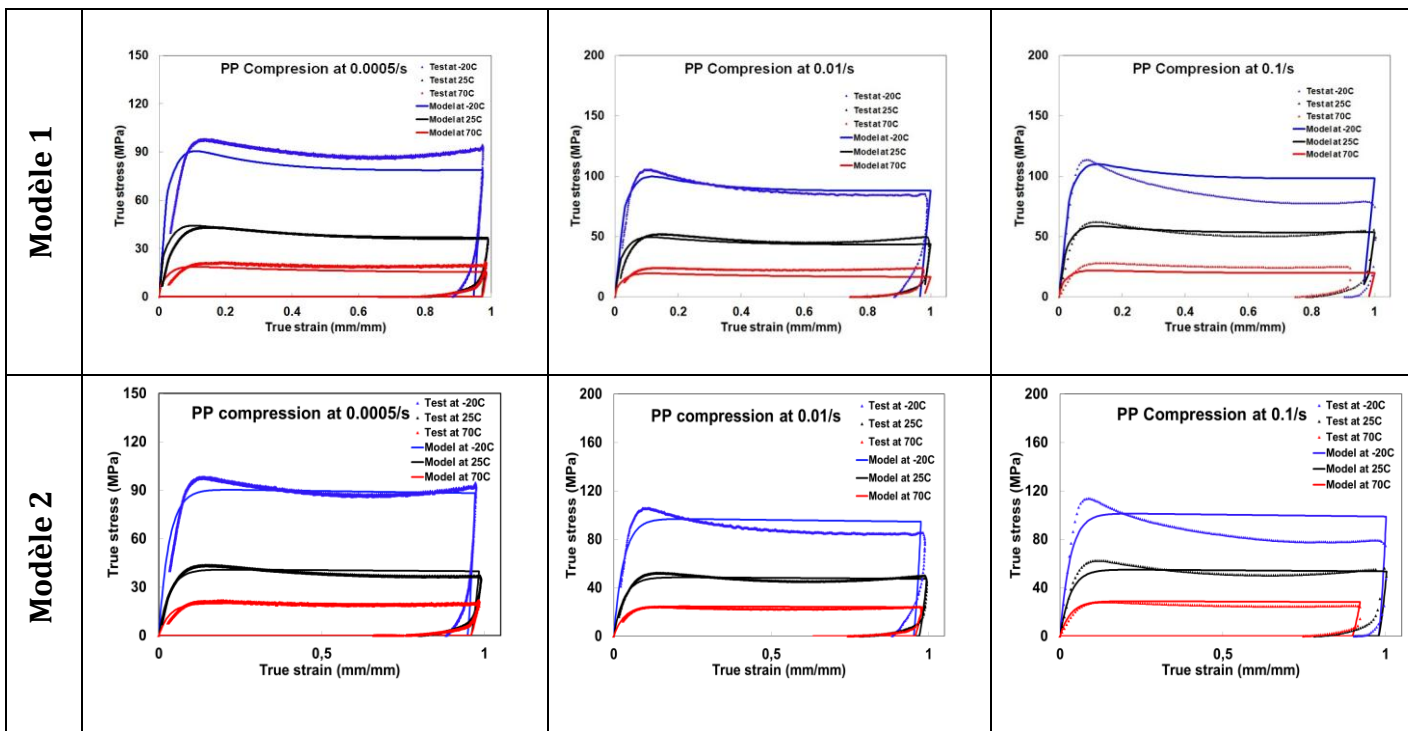


FIG. 1 – Comparaison essais et modèle pour des sollicitations de compression à différentes vitesses de déformation et à différentes températures.

La figure 2 présente la réponse des Modèles 1 et 2 pour la simulation d'essais de traction réalisés à trois différentes vitesses de déformation (0.0005/s, 0.007/s et 0.1/s) et températures (-20°C, 25°C et 70°C). On remarque que :

- les deux modèles capturent correctement le régime viscoélastique du matériau,
- le modèle 1 reproduit correctement le régime viscoplastique en temps et en température,
- le modèle 2 surestime ce dernier.

Ces deux derniers points peuvent être expliqués par l'utilisation d'une dépendance à l'état de contrainte dans la loi inélastique du Modèle 1 au travers d'un terme de pression hydrostatique. Ce dernier terme, initialement utilisé par Boyce [10] permet de modéliser le comportement mécanique du matériau pour différents modes de chargement (compression, traction et torsion). Le Modèle 2 dont les paramètres ont été identifiés sur les essais de compression ne reproduit pas cette dépendance à l'état de contrainte. Ce modèle est donc en train d'être enrichi afin de mieux capter la sensibilité du matériau à l'état de contrainte.

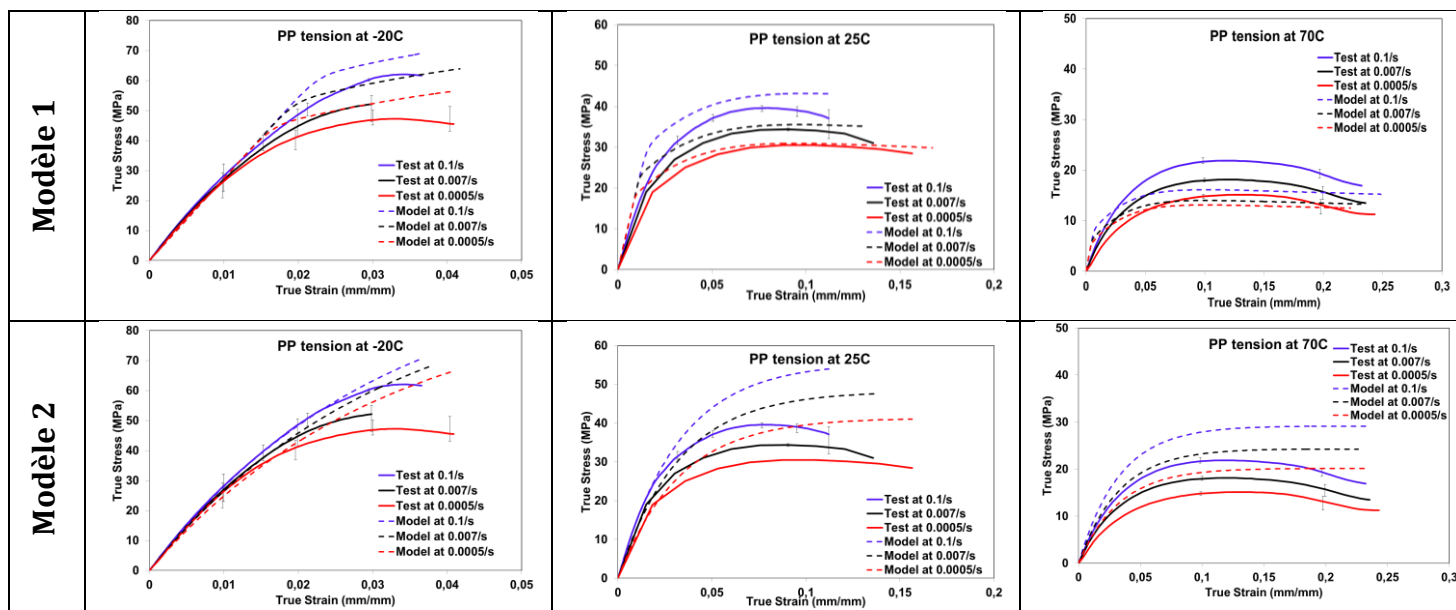


FIG. 2 – Comparaison essais et modèle pour des sollicitations de traction à différentes vitesses de déformation et à différentes températures.

4 Conclusion

Dans cette étude, deux modèles de comportement développés très récemment par Bouvard et al. [2,3] (Modèle 1) et Billon et al. [4,5] (Modèle 2) sont comparés sur la base d'essais de compression et de traction réalisés à différentes vitesses de déformation et de températures sur un PP. Cette étude a pour but de caractériser les forces et faiblesses de chacune de ces deux approches afin de converger sur l'établissement d'un modèle « commun » plus riche en termes de modélisation thermomécanique d'une matrice thermoplastique.

Le Modèle 1 a montré sa capacité à reproduire avec un bon accord les essais de compression et de traction à différentes vitesses de déformation et de température. Même si une procédure d'identification des paramètres a été développée, ce modèle reste caractérisé par un nombre de paramètres beaucoup plus important que le Modèle 2. Il est ainsi intéressant de noter la capacité du Modèle 2 à prédire les essais de compression avec un faible nombre de paramètres. Ce modèle, construit sur le concept de dynamique des chaînes, se caractérise par une approche originale qui rend compte de la physique du polymère.

Les travaux futurs s'orienteront vers la prise en compte de la microstructure cristalline dans le Modèle 2 ainsi que de l'introduction d'une dépendance à l'état de contrainte. Cette loi de comportement sera ensuite incorporée dans le modèle composite développé par Andriyana et al. [1] et confronté à des essais de traction et de cisaillement réalisés sur composites à renforts discontinus à différentes vitesses de déformation, température et orientation du matériau.

References

- [1] Andriyana A., Billon N., Silva L., Mechanical response of a short fiber-reinforced thermoplastic: Experimental investigation and continuum mechanical modeling, *European Journal of Mechanics A/Solids*, doi:10.1016/j.euromechsol.2010.07.001, 2010.
- [2] Bouvard J.L., Ward D.K., Hossain D., Marin E.B., Bammann D.J. and Horstemeyer M.F., A General Inelastic Internal State Variables Model for amorphous glassy polymers, *Acta Mechanica*, 213(1), 71-96, 2010.
- [3] Bouvard J.L., Francis D.K., Tschopp M.A., Marin E.B., Bammann D.J. and Horstemeyer M.F., An internal state variable material model for predicting the time, thermomechanical, and stress state dependence of amorphous glassy polymers under large deformation, *International Journal of Plasticity*, *International Journal of Plasticity*, 42, 168-193, 2013.
- [4] Billon N., New constitutive modeling for time-dependent mechanical behavior of polymers close to

- glass transition: Fundamentals and experimental validation, *Journal of Applied Polymer Science*, 125, 4390-4401, 2012.
- [5] Maurel-Pantel A., Baquet E., Bikard J., Billon N., Coupled thermo mechanical characterisation of polymers based on inverse analyses and IR measurements, *Appl. Mech. Mater.* 70, 393-398, 2011.
- [6] Ames N.M., Srivastava V., Chester S.A., Anand L., A thermomechanically coupled theory for large deformations of amorphous polymers. Part II : applications. *Int. J. Plast.*, 25, 1495–1539, 2009
- [7] Richeton J., Ahzi S., Vecchio K.S., Jiang F.C., Makradi A., Modeling and validation of the large deformation inelastic response of amorphous polymers over a wide range of temperatures and strain rates. *Int. J. Solids Struct.* 44, 7938–7954, 2007
- [8] Edwards S. F. and Vilgis T., “The effect of entanglements in rubber elasticity,” *Polymer*, 27, 483–492, 1986.
- [9] Baquet E., Modélisation thermomécanique visco-hyperélastique du comportement d’un polymère semi-cristallin: application au cas d’une matrice polyamide 6.6, thèse de doctorat, Mines ParisTech, 2011.
- [10] Boyce M.C., Parks D.M., Argon, A.S., Large inelastic deformation of glassy deformation of glassy polymers Part I: rate dependent constitutive model. *Mech. Mater.* 7, 15–33, 1988.