

Identification des paramètres de modèles viscoplastiques-viscohyperélastiques : application à un polymère semi-cristallin sur une large gamme de cristallinités

H. ABDUL-HAMEED, T. MESSEGER, F. ZAÏRI, M. NAÏT-ABDELAZIZ

Université Lille 1 Sciences et Technologies, Laboratoire de Mécanique de Lille (LML),
UMR CNRS 8107, 59655 Villeneuve d'Ascq cedex, France

Résumé :

Ce travail est dédié aux stratégies d'identification des paramètres de modèles de comportement appliqués aux polymères. Une méthode numérique d'identification, basée sur une procédure d'optimisation évolutionnaire, est présentée. L'application est faite sur un polyéthylène, contenant différents taux de cristallinités, sollicité en grandes déformations à différentes vitesses de déformation vraie. Dans une première approche, les paramètres d'un modèle viscoplastique-viscohyperélastique, permettant de reproduire la réponse mécanique du polymère semi-cristallin, sont identifiés en supposant le matériau homogène. En considérant ensuite le polymère semi-cristallin comme un milieu hétérogène, les résultats de l'identification des paramètres d'un modèle viscoplastique-viscohyperélastique, basé sur une représentation à deux phases de la microstructure, sont présentés et analysés en terme de variations.

Abstract:

This work is dedicated to identification strategies of constitutive model parameters applied to polymers. A numerical method of identification, based on an evolutionary optimization procedure, is presented. The application is performed on a polyethylene, exhibiting various rates of crystallinity, stretched under large deformation at different true strain rates. In a first approach, the parameters of a viscoplastic-viscohyperelastic model, able to describe the mechanical response of the semi-crystalline polymer, are identified assuming the material as a homogeneous medium. Next, considering the semi-crystalline polymer as a heterogeneous medium, the identification results of a viscoplastic-viscohyperelastic model, based on a two-phase representation of the microstructure, are detailed and discussed in terms of variations.

Mots clés : polymères, cristallinité, viscoélasticité-plasticité, identification, algorithme génétique

1 Introduction

La réponse mécanique en grandes déformations des polymères est de type viscoplastique-viscohyperélastique. Outre le développement de modèles mathématiques permettant de reproduire ce comportement, l'identification des paramètres matériaux, n'impliquant aucune ambiguïté dans les résultats, reste une question ouverte. L'identification est assimilable à un problème d'optimisation, fortement non-convexe et formulé en variables mixtes, qui requiert donc le développement d'outils numériques spécifiques permettant de rationaliser et d'automatiser la recherche [1].

Un outil d'identification a ici été développé sur une base d'optimisation évolutionnaire. Deux modèles rhéologiques ont été considérés : le premier est de type "milieu homogène" [2]. Il a été confronté aux résultats issus de sa version modifiée de type "semi-cristallin" [3], différenciant l'influence des phases amorphe et cristalline dans les interactions intermoléculaires. L'analyse a été portée sur une base de données expérimentales obtenue pour trois nuances de polyéthylène sur une large variété de fraction cristalline, permettant ainsi d'évaluer la pertinence de la décomposition amorphe-cristalline en termes d'écart par rapport aux données expérimentales et d'unicité des solutions d'optimisation.

2 Modèles rhéologiques

Deux approches ont été retenues pour modéliser le comportement mécanique en grandes déformations des polymères semi-cristallins : il s'agit du modèle développé par Boyce-Socrate-Liana (modèle BSL) [2] et sa version modifiée (modèle MBSL) proposée par Ayoub et al. [3]. Les représentations rhéologiques correspondantes sont données en Fig. 1. Dans les deux cas, la résistance à la déformation est la somme de deux branches. L'une due aux interactions intermoléculaires (branche A) et l'autre due à l'alignement du réseau moléculaire (branche B). La contrainte totale de Cauchy est donc la somme des contraintes des branches A et B (soit $\mathbf{T} = \mathbf{T}_A + \mathbf{T}_B$), le gradient de déformation de chaque résistance étant égal au gradient total \mathbf{F} (soit $\mathbf{F}_A = \mathbf{F}_B = \mathbf{F}$). Les parties élastique et inélastique du gradient de déformation sont décomposées de manière multiplicative [4]. Comme illustré en Fig. 1, la branche A du modèle MBSL distingue les résistances intermoléculaires amorphe et cristalline, en supposant les gradients de déformation dans les phases amorphe et cristalline, \mathbf{F}_a et \mathbf{F}_c , égaux.

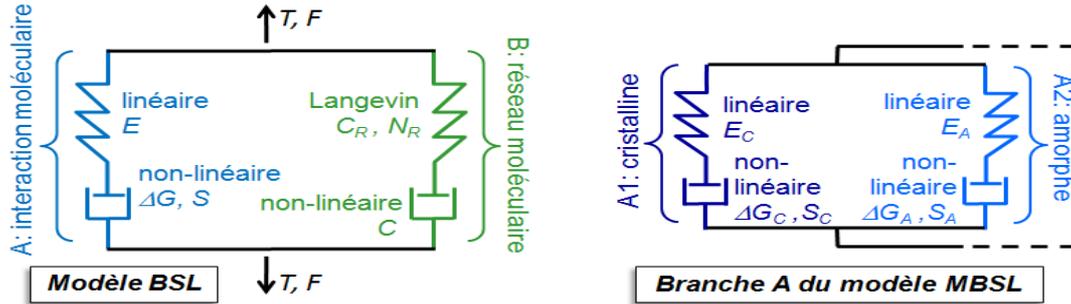


FIG. 1 – Représentation rhéologique des modèles de comportement.

2.1 Modèle BSL

Comme illustré en Fig. 1, la résistance A est constituée d'une raideur élastique linéaire en série avec un amortisseur viscoplastique. La contrainte de Cauchy \mathbf{T}_A est donnée par :

$$\mathbf{T}_A = J_A^{-1} \mathbf{C}_A^e \ln(V_A^e) \quad (1)$$

où J_A est le Jacobien, $\ln(V_A^e)$ est la déformation de Hencky et \mathbf{C}_A^e est le tenseur de rigidité élastique. La vitesse de déformation viscoplastique $\dot{\gamma}_A^p$ s'exprime sous la forme :

$$\dot{\gamma}_A^p = \dot{\gamma}_{oA} \exp[-\Delta G(1 - \tau_A/S)/(k\theta)] \quad (2)$$

avec $\dot{\gamma}_{oA}$ un facteur pré-exponentiel, ΔG l'énergie d'activation, S la résistance au cisaillement, k la constante de Boltzmann et θ la température. Le terme τ_A désigne la contrainte équivalente : $\tau_A = (\mathbf{T}'_A \cdot \mathbf{T}'_A / 2)^{1/2}$ où \mathbf{T}'_A est la contrainte déviatorique.

La résistance B comporte un ressort non-linéaire de Langevin en série avec un amortisseur visqueux. La contrainte de Cauchy s'exprime sous la forme suivante [2] :

$$\mathbf{T}_B = J_B^{-1} \frac{C_R}{3} \frac{\sqrt{N_R}}{\bar{\lambda}_e} \ell^{-1} \left(\frac{\bar{\lambda}_e}{\sqrt{N_r}} \right) \left[\bar{\mathbf{B}}^e - \bar{\lambda}_e^2 \mathbf{I} \right] \quad (3)$$

où J_B est le Jacobien, C_R est le module caoutchoutique, N_R est le nombre de liens rigides entre enchevêtrements, ℓ^{-1} est la fonction de Langevin inverse, $\bar{\lambda}_e = [\text{trace}(\bar{\mathbf{B}}^e/3)]^{1/2}$ est l'étirement moyen des chaînes du réseau et $\bar{\mathbf{B}}^e$ est le tenseur de Cauchy-Green élastique. La viscosité de la branche B est régie par l'équation suivante :

$$\dot{\gamma}_B^p = C \left[1 / (\lambda_B^p - 1) \right] \tau_B \quad (4)$$

où C est un paramètre de viscosité et $\tau_B = (\mathbf{T}'_B \cdot \mathbf{T}'_B / 2)^{1/2}$ est la contrainte équivalente, \mathbf{T}'_B étant la contrainte déviatorique.

2.2 Modèle MBSL

Ce modèle, basé sur l'approche précédente, possède une branche B identique à celle du modèle BSL. La branche A est elle décomposée en partie amorphe et cristalline agissant en parallèle (Fig. 1). Chacune est constituée d'une raideur élastique linéaire en série avec un amortisseur visqueux. Comme détaillé en Ref. [3], la contrainte de Cauchy \mathbf{T}_A s'exprime en fonction de la contrainte de Cauchy de la partie amorphe et cristalline, \mathbf{T}_A^a et \mathbf{T}_A^c , comme suit :

$$\mathbf{T}_A = (\chi_{cv})^\beta \mathbf{T}_A^c + (1 - \chi_{cv})^\beta \mathbf{T}_A^a \quad (5)$$

où χ_{cv} est la fraction volumique de la phase cristalline et β est un paramètre traduisant l'interaction entre les deux phases. Les vitesses de déformation viscoplastique des parties cristalline $\dot{\gamma}_A^{p-c}$ et amorphe $\dot{\gamma}_A^{p-a}$ sont elles données par :

$$\dot{\gamma}_A^{p-c} = \dot{\gamma}_{oa}^c \exp\left[-\Delta G_c (1 - \tau_A^c / S_c) / (k\theta)\right] \quad \dot{\gamma}_A^{p-a} = \dot{\gamma}_{oa}^a \exp\left[-\Delta G_a (1 - \tau_A^a / S_a) / (k\theta)\right] \quad (6)$$

où les indices c et a désignent les paramètres matériaux associés aux phases cristalline et amorphe, respectivement. Contrairement au modèle initial d'Ayoub et al. [3], S_c et S_a sont supposés ici constant afin de minimiser le nombre de paramètres.

3 Stratégie d'identification

Pour un matériau donné, la base de données expérimentales dont nous disposons est constituée de N_V courbes d'essais expérimentaux, obtenues pour différentes vitesses de déformation. Chacune de ces courbes comporte $N_{P,L}$ (pour la $L^{\text{ième}}$ vitesse, soit donc $1 \leq L \leq N_V$) points expérimentaux notés $T_{L,K}^{Exp}$ ($1 \leq K \leq N_{P,L}$). L'identification consiste à déterminer les paramètres d'un modèle rhéologique afin de reproduire "au mieux" ces données expérimentales. Elle peut ainsi être énoncée comme un problème d'optimisation : recherche du jeu de variables $X = \{E; \Delta G; S; C_R; N_R; C\}$ minimisant l'écart entre les valeurs numériques $T_{L,K}^{Num} = T_{L,K}^{Num}(X)$ issues de ce modèle et les valeurs expérimentales $T_{L,K}^{Exp}$ correspondantes. La fonction objectif, à minimiser, considérée est alors la suivante :

$$f(X) = \frac{1}{N_V} \sum_{L=1}^{N_V} \left(\frac{1}{N_{P,L}} \sum_{K=1}^{N_{P,L}} \|T_{L,K}^{Num} - T_{L,K}^{Exp}\| \right) \quad (7)$$

les termes $1/N_{P,L}$ et $1/N_V$ normalisant le calcul des écarts par rapport aux nombres de points et de vitesses [1]. Compte tenu de la non-convexité de ce type de problème discret d'optimisation [1], fonction d'un jeu de variables mixtes (entières et réelles) X , un outil d'identification sur base d'Algorithme Génétique (AG) schématisé en Fig. 2 a été développé.

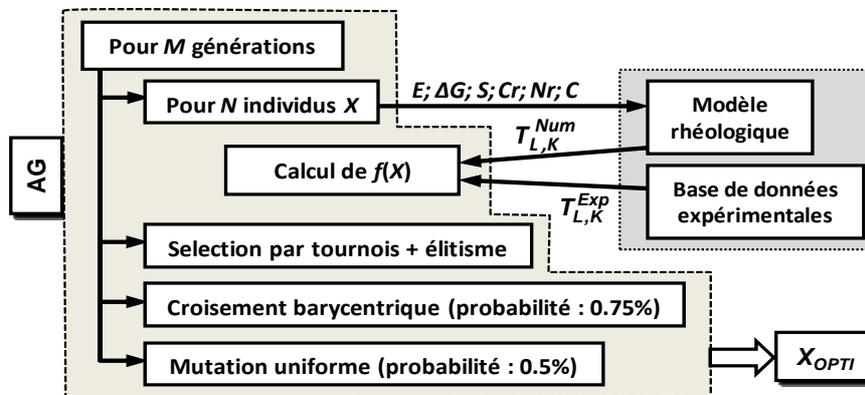


FIG. 2 – Principe de l'outil numérique d'identification.

Rappelons que les AG sont des processus stochastiques évolutionnaires d'optimisation globale, inspirés par les mécanismes de sélection et d'adaptation naturels [5] : à chaque génération, l'AG manipule une population de solutions potentielles X , chacune caractérisée par une mesure de sa performance (l'adaptation)

ici égale à $1/f(X)$. L'étape de sélection confère aux individus les mieux adaptés une probabilité accrue de devenir "parents". L'opérateur de croisement permet ensuite le brassage de leurs "patrimoines génétiques". Enfin, des mutations génétiques peuvent apparaître afin de diversifier le processus d'exploration. Ce processus d'évolution simulée est répété lors de générations successives. L'espace de recherche est ainsi exploré quelque soit la nature des variables d'optimisation, sans calcul de gradient et de façon globale par une population de solutions. L'AG ici codé est de type canonique, manipulant directement les jeux de variables réelles et entières X . La population initiale est générée aléatoirement. Les opérateurs génétiques retenus sont la sélection élitiste par tournois, le croisement barycentrique et la mutation uniforme, tels que détaillés en Ref. [5]. Comme illustré en Fig. 2, l'AG renvoie au terme du processus le meilleur individu X_{OPTI} rencontré au cours du processus d'évolution simulé. Compte tenu de l'aspect stochastique des stratégies évolutionnaires, chaque problème d'identification étudié a fait l'objet de 10 évaluations successives afin de vérifier la reproductibilité des résultats issus de cet outil numérique.

4 Application au polyéthylène

4.1 Matériaux et protocole expérimental

Les trois nuances de polyéthylène (PE) considérées pour cette étude couvrent une large gamme de fraction volumique de phase cristalline : 15,1%, 30% et 72,4% pour le ULDPE (ultra low density PE), le LDPE (low density PE) et le HDPE (high density PE), respectivement. L'augmentation en cristallinité conduit au passage du comportement caractéristique des élastomères à celui plus typique des thermoplastiques. Le comportement en grandes transformations a été caractérisé en traction uniaxiale à l'aide d'une machine électromécanique équipée d'un dispositif vidéo permettant l'acquisition des déformations et le contrôle de la vitesse de déformation axiale vraie. Pour chaque nuance de PE, les essais ont été réalisés pour $N_V = 3$ vitesses de déformation : 10^{-2} , 10^{-3} et 10^{-4} s⁻¹. Chacune des courbes expérimentales correspondantes comporte $N_{P,L} \approx 2000$ points.

4.2 Résultats d'identification et discussion

Tout en considérant les données de la littérature [2,3], les intervalles de recherche des paramètres matériaux ont volontairement été choisis "larges", de façon à procéder à une identification en quasi-aveugle et donc à évaluer les performances de l'outil numérique d'identification. Ces intervalles sont précisés, pour les différents paramètres des modèles BSL et MBSL, par le Tab. 1.

Paramètres BSL	E (MPa)	ΔG (J)	S (MPa)	C_R (MPa)	C (MPa.s) ⁻¹	N_R
Limite inférieure	3000	$2.07 \cdot 10^{-19}$	100	15	10^{-3}	750
Limite supérieure	5	$8.97 \cdot 10^{-20}$	2	0.1	10^{-10}	200

Paramètres MBSL	ΔG_c (J)	ΔG_a (J)	S_c (MPa)	S_a (MPa)	C_R (MPa)	C (MPa.s) ⁻¹	N_R
Limite inférieure	$2.761 \cdot 10^{-19}$	$2.761 \cdot 10^{-19}$	90	90	15	10^{-3}	600
Limite supérieure	$1.035 \cdot 10^{-19}$	$6.903 \cdot 10^{-22}$	2	0.01	0.1	10^{-15}	5

TAB. 1 – Intervalles de recherche des paramètres des modèles BSL et MBSL.

Considérant les recommandations de la littérature et suite à des tests préliminaires, la recherche par AG a été effectuée sur $M = 25000$ générations comportant $N = 450$ individus. Premièrement, l'identification des paramètres matériaux du modèle BSL a été réalisée pour chacune des trois nuances de PE. Les résultats correspondants sont donnés dans le Tab. 2. Soulignons que, pour 10 lancements successifs d'AG, les valeurs obtenues n'ont affiché que d'infimes variations, le taux de reproductibilité des résultats étant quasiment égal à 100%. De par la grande variété de fraction cristalline des nuances étudiées, l'identification des variables du modèle MBSL a, elle, été réalisée uniquement pour la nuance HDPE. Considérant les indications de [3], les modules d'Young cristallin E_c et amorphe E_a ont été fixés à 4.5 et 4500 MPa, respectivement. La meilleure solution obtenue, pour 10 lancements d'AG, est détaillée par le Tab. 3. Contrairement aux résultats issus du modèle BSL, les calculs d'optimisation réalisés avec le modèle MBSL ont abouti à des solutions qui, bien qu'ayant des adaptations quasi-identiques, induisent parfois des variations importantes des valeurs de paramètres matériaux. Le Tab. 4 présente ainsi deux solutions (notées 1 et 2) de mêmes valeurs f mais dont les variations relatives de certains paramètres s'avèrent très élevées. Cependant, les courbes issues de ces différentes solutions d'optimisation conduisent à des courbes contrainte-déformation pour le HDPE tout à

fait similaires, superposables.

Paramètres BSL	E (MPa)	ΔG (J)	S (MPa)	C_R (MPa)	C (MPa.s) ⁻¹	N_R
HDPE (72.4%)	796	$1.24 \cdot 10^{-19}$	52.6	4.136	$7.867 \cdot 10^{-12}$	200
LDPE (30%)	65.3	$9.43 \cdot 10^{-20}$	25.2	5.638	$3.017 \cdot 10^{-7}$	514
ULDPE (15.1%)	6.40	$1.16 \cdot 10^{-19}$	3.43	1.353	$1.770 \cdot 10^{-7}$	319

TAB. 2 – Résultats d'identification des paramètres matériaux du modèle BSL.

Paramètres MBSL	ΔG_c (J)	ΔG_a (J)	S_c (MPa)	S_a (MPa)	C_R (MPa)	C (MPa.s) ⁻¹	N_R
HDPE (72.4%)	$5.96 \cdot 10^{-20}$	$3.8 \cdot 10^{-20}$	1.008	21.07	1.783	$1.19 \cdot 10^{-8}$	20

TAB. 3 – Résultats d'identification des paramètres matériaux du modèle MBSL.

Paramètres MBSL	ΔG_c (J)	ΔG_a (J)	S_c (MPa)	S_a (MPa)	C_R (MPa)	C (MPa.s) ⁻¹	N_R
Solution 1	$6.94 \cdot 10^{-20}$	$3.8 \cdot 10^{-19}$	1.005	22.02	1.802	$9.288 \cdot 10^{-9}$	21
Solution 2	$4.13 \cdot 10^{-20}$	$3.77 \cdot 10^{-19}$	1.003	18.41	1.780	$1.187 \cdot 10^{-8}$	20
% de variation	40.5	0.8	0.2	16.4	1.2	27.7	4.8

TAB. 4 – Exemple de variations des paramètres matériaux du modèle MBSL.

La Fig. 3 présente les comparaisons des courbes contrainte-déformation expérimentales et déduites des modèles. Les courbes BSL sont issues des résultats détaillés en Tab. 2. On constate une bonne adéquation des allures correspondantes avec les données expérimentales, en notant néanmoins quelques écarts sensibles sur la plus faible vitesse (10^{-4} s⁻¹). Les courbes MBSL pour le HDPE, déduites de l'identification présentée en Tab. 3, s'avèrent très proches des courbes d'essais.

Les courbes MBSL concernant le LDPE sont, elles aussi, issues des résultats d'identification sur le HDPE (Tab. 3). On constate ainsi la forte influence des effets du taux de cristallinité : les écarts avec les points expérimentaux sont alors très marqués. Afin d'intégrer ces effets pour les courbes de la nuance ULDPE, les courbes MBSL correspondantes ont été obtenues par modification des variables N_R et C_R liées au taux de cristallinité. Suivant le modèle proposée par Ayoub et al. [6], les évolutions de ces paramètres peuvent être décrites par :

$$C_R = \sum_{i=0}^2 C_i \chi_{cv} \quad N_R = \sum_{i=0}^2 N_i \chi_{cv} \quad (8)$$

où C_i et N_i sont les constantes matériau précisées en Ref. [6]. On constate en Fig. 3 que les courbes MBSL s'avèrent désormais très proches de l'expérimental, démontrant ainsi la nécessité de définir précisément (pour la nuance considérée) les paramètres "cristallins" du modèle MBSL. Enfin, soulignons que, tout comme pour la nuance HDPE, les différents jeux de paramètres MBSL optimisés (cf. Tab. 3 et 4) conduisent à des allures contrainte-déformation toutes identiques, tant pour le LDPE que pour le ULDPE.

5 Conclusions

Ce travail d'identification de paramètres rhéologiques, pour des polyéthylènes de cristallinité très variées (de 15 à 72.4%), permet de constater que :

- les résultats BSL, identifiés à partir de trois nuances matériau, conduisent à une bonne approximation des données d'essais. Par ailleurs, la reproductibilité de ces résultats s'est avérée parfaite, validant ainsi la robustesse de l'outil numérique d'optimisation.
- le modèle MBSL nécessite d'ajuster précisément les paramètres intégrant les effets de taux de cristallinité : les résultats obtenus pour le HDPE produisent de grands écarts avec l'expérimental lorsqu'on les applique à une nuance moins "cristalline" (LPDE).
- l'identification des variables MBSL pour une seule nuance de polyéthylène a conduit à des solutions d'optimisation différentes mais produisant pourtant les mêmes courbes contrainte-déformation. L'unicité de la solution pour ce modèle à grand nombre de paramètres ne peut être ainsi obtenue. La procédure d'identification développée pour cette étude sera appliquée prochainement à l'analyse de données expérimentales d'essais de traction cycliques, à grands nombres de cycles.

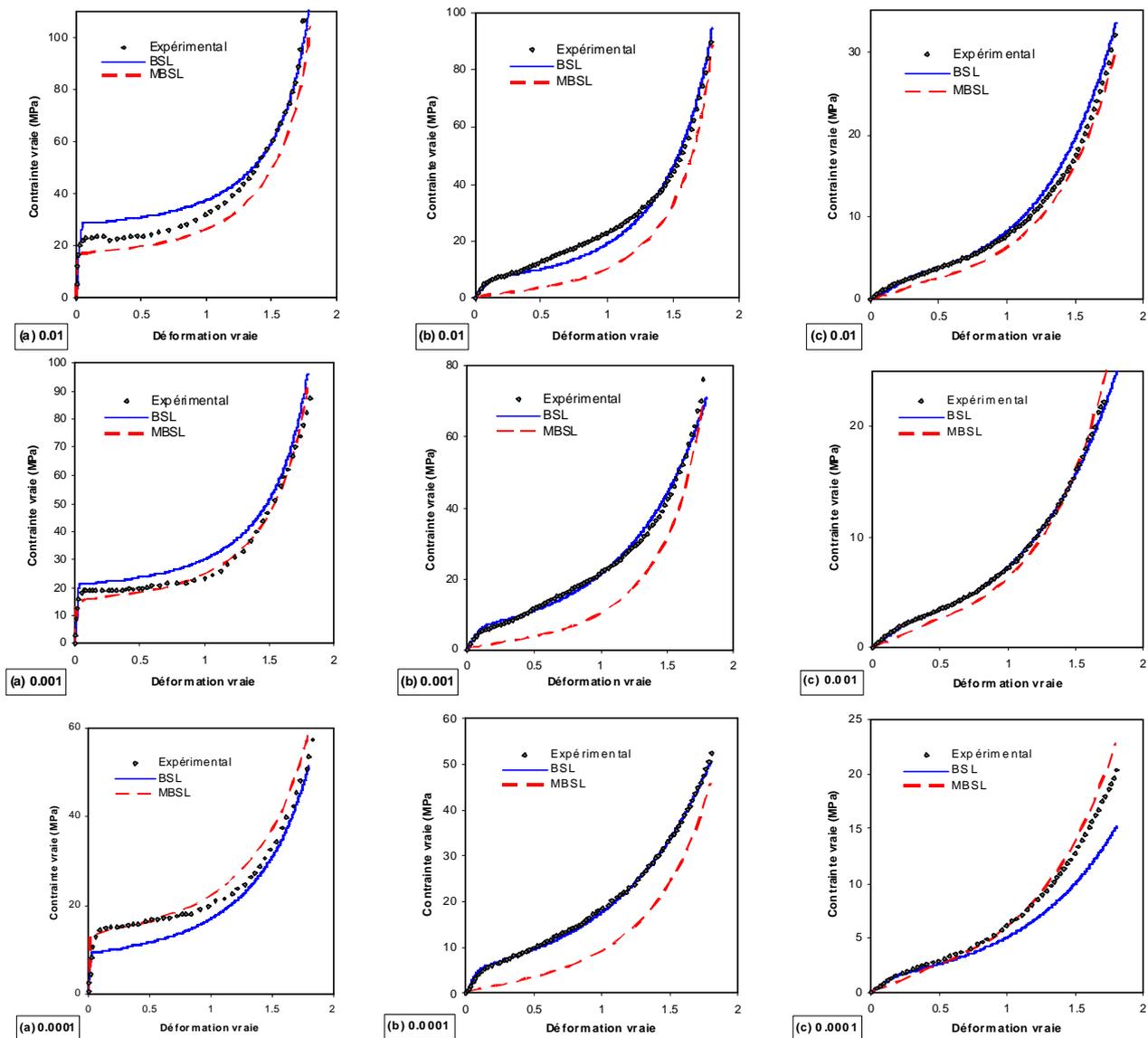


FIG. 3 – Courbes contrainte-déformation issues des données expérimentales et des modèles BSL et MBSL pour des vitesses de 0.01, 0.001 et 0.0001 s⁻¹ : (a) HDPE, (b) LDPE, (c) ULDPE.

Références

- [1] Pyrz M., Zaïri F., Identification of viscoplastic parameters of phenomenological constitutive equations for polymers by deterministic and evolutionary approach, *Modeling and Simulation in Materials Science and Engineering* 15, 85-103, 2007.
- [2] Boyce M.C., Socrate S., Llana P.G., Constitutive model for finite deformation stress-strain behavior of poly(ethylene terephthalate) above the glass transition, *Polymer* 41, 2183-2201, 2000.
- [3] Ayoub G., Zaïri F., Frédérix C., Gloaguen J.M., Naït-Abdelaziz M., Seguela R., Lefebvre J.M., Effects of crystal content on the mechanical behaviour of polyethylene under finite strains: Experiments and constitutive modelling, *International Journal of Plasticity* 27, 462-511, 2011.
- [4] Lee, E.H., Elastic-plastic deformation at finite strains. *J. of Applied Mechanics* 36, 1–6, 1969.
- [5] Michalewicz Z., *Genetic algorithms + data structures = evolution programs*, Springer Verlag, 1999.
- [6] Ayoub G., Zaïri F., Frédérix C., Gloaguen J.M., Naït-Abdelaziz M., Seguela R., Lefebvre J.M., Modelling finite deformation stress-strain response during loading-unloading of polyethylene over a wide range of crystallinities, *Procedia Engineering* 2, 977-984, 2010.