

# UTILISATION DES OPÉRATEURS DE TRANSPORT EN DÉFORMATION LOGARITHMIQUE 3D EN VUE DE LA MODÉLISATION DU COMPORTEMENT THERMOMÉCANIQUE EN GRANDES DÉFORMATIONS DE POLYMÈRES AMORPHES

C.A. BERNARD <sup>a,b</sup>, D. GEORGE <sup>a</sup>, S. AHZI <sup>a,c</sup>, Y. REMOND <sup>a</sup>

a. ICube, UMR 7357, CNRS, Université de Strasbourg, 67000, Strasbourg, France

b. ELyTMax, UMI 3757, CNRS, Université de Lyon, Tohoku University, Sendai, Japon

c. QEERY, Qatar Foundation, Hamad Bin Khalifa University, Doha, Qatar

[chrystelle.bernard@rift.mech.tohoku.ac.jp](mailto:chrystelle.bernard@rift.mech.tohoku.ac.jp) ; [george@unistra.fr](mailto:george@unistra.fr) ; [sahzi@qf.org.qa](mailto:sahzi@qf.org.qa) ; [remond@unistra.fr](mailto:remond@unistra.fr)

## Résumé

*De nombreux modèles ont été développés afin de prévoir le comportement en grandes déformations des polymères amorphes. Ces modèles donnent de bons résultats pour des cas de chargement simples en traction ou compression uniaxiale. Cependant, les chargements 3D sont plus complexes à modéliser et simuler en transformations finies. On utilise ici la classique mesure logarithmique des déformations. Elle nécessite l'utilisation d'une contrainte prenant en compte des transports complexes en dehors des directions principales. Ce travail propose donc une modélisation originale des polymères amorphes qui s'inscrit dans ce cadre ainsi que des simulations numériques qui prennent en compte ces transports. Des résultats particulièrement intéressants sont obtenus qui distinguent clairement les situations où le cisaillement devient important.*

## Abstract

*Many models have been developed to predict the large strain behavior of amorphous polymers. These models give good results for simple loading conditions such as uniaxial tension or compression. However, 3D mechanical loads are more complex to model and simulate using finite transformations. The classical logarithmic measure of strain requires the use of a stress that accounts for the complex transport phenomenon out of the principal directions. This work proposes an original modeling of amorphous polymers within this framework together with numerical simulations accounting of these transports. Particularly interesting results are obtained clearly distinguishing the situations with important shear loading.*

**Mots clefs** : modélisation, polymères amorphes, opérateurs de transport, grandes déformations

**Keywords** : modeling, amorphous polymers, transport operators, large strain.

## 1 Introduction

Les matériaux polymères sont connus pour avoir un comportement thermomécanique complexe fortement dépendant de la vitesse de déformation et de la température [1,2]. De nombreuses études théoriques, numériques et expérimentales ont été proposées [3-7] pour la compréhension de ces mécanismes aux petites et grandes déformations. La plupart de ces théories sont fondées sur la physique des polymères, en particulier sur l'importance des transitions mécaniques et chimiques du matériau, pour lesquelles plusieurs modélisations numériques 3D ont été proposées [8-10] utilisant une décomposition additive ou multiplicative du gradient de la déformation en partie élastique et plastique. Ces modèles montrent une bonne corrélation entre les prédictions numériques et les résultats expérimentaux pour de larges gammes de températures et de vitesses de déformations lorsqu'ils sont validés sur des essais de traction ou compression simples. Cependant, la contrainte associée à cette mesure de déformation ne s'identifie à la contrainte de Cauchy que lorsqu'on se trouve dans les directions principales. En dehors de ces directions, la contrainte associée est plus complexe et des opérateurs de transport doivent être utilisés. En grandes déformations, l'effet de ces opérateurs est important et la simulation du comportement mécanique du matériau est largement modifiée.

Plusieurs auteurs [11-15] ont établi et utilisé les relations (voir Eq. 1) entre la mesure de la déformation logarithmique du tenseur des dilatations gauche  $\mathbb{V}$  et le tenseur des taux de déformations  $\mathbb{D}$ . Cependant, ces relations ne sont pas intégrées dans les lois de comportement développées pour les polymères.

$$\mathbb{D} = \overline{(\ln \mathbb{V})} = (\ln \mathbb{V})^\circ - \text{sym}(\mathbb{F}\Omega_r\mathbb{F}^{-1}) \quad (1)$$

D'autres utilisent plus couramment la mesure de déformation-différence pour les matériaux à comportement hyperélastiques, comme le modèle 8-chaines [4], qui prend en compte de cette façon l'évolution du réseau de macromolécules.

Nous proposons ici d'intégrer les phénomènes de transport en grandes déformations dans la modélisation de la réponse thermomécanique des polymères amorphes à partir de la déformation logarithmique en utilisant le modèle élasto-viscoplastique développé par Richeton et al. [8], lui-même construit à partir de spécificités de la physique des polymères.

Dans la section 2, le modèle de Richeton et al. [8] est présenté succinctement, suivi dans la section 3 par les opérateurs de transport associés aux deux mesures de déformations. La comparaison des prédictions numériques avec des données expérimentales est illustrée en section 4.

## 2 Lois de comportement génériques

La réponse thermomécanique des polymères amorphes présente principalement trois étapes. En dessous de la contrainte seuil, en petites déformations, le comportement du matériau est principalement viscoélastique à l'échelle macroscopique même s'il est plus complexe à l'échelle microstructurale. Au-dessus de la contrainte seuil, on observe macroscopiquement une déformation de type viscoplastique pour laquelle un adoucissement apparaît souvent (les chaînes de polymère sont réorganisées et alignées dans la direction de la charge), puis un important durcissement structural orienté apparaît amenant au verrouillage des chaînes de polymères.

Le modèle utilisé ici [8] est fondé de manière classique sur une décomposition multiplicative du tenseur gradient de la déformation  $\mathbb{F}$  en parties 'e' élastique, 'th' thermique et 'p' plastique avec  $\mathbb{F} = \mathbb{F}^e \mathbb{F}^{th} \mathbb{F}^p$ . Le tenseur taux de déformation est ensuite décomposé de manière additive en parties 'e' élastique, 'eth' élastique-thermique couplés et 'ethp' élastique thermique plastique couplés avec  $\mathbb{D} = \mathbb{D}^e + \mathbb{D}^{eth} + \mathbb{D}^{ethp}$ . La réponse viscoélastique est supposée linéaire isotrope, mais rien ne s'oppose à une vision plus générale. En considérant une réponse uniquement élastique, le tenseur des contraintes de Cauchy  $\mathbb{T}$  s'exprime à partir de la mesure de la déformation logarithmique  $\mathbb{V}^e$  (avec  $\mathbb{F}^e = \mathbb{V}^e \mathbb{R}^e$ ) par :

$$\mathbb{T} = \frac{1}{J} \mathbb{C}^e \ln \mathbb{V}^e \quad (2)$$

avec  $J = \det \mathbb{F}^e$ , la variation de volume.

Au-dessus de la contrainte seuil, le matériau présente un comportement hyperélastique. Pour cela, le modèle 8-chaines [4] a été utilisé pour représenter le durcissement structural et le verrouillage des chaînes de polymères. Ce modèle présente deux paramètres indépendants qui sont  $C_R$  le module caoutchoutique et  $N$  le nombre de liens rigides entre les enchevêtrements. La loi de comportement est formulée à partir de la mesure de la déformation-différence par :

$$\mathbb{B}_i = \frac{C_R}{3\lambda_{chain}} \sqrt{N} \mathcal{L}^{-1} \left( \frac{\sqrt{N}}{\lambda_{chain}} \right) (\lambda_i^2 - \lambda_{chain}^2) \quad (3)$$

Où  $\mathcal{L}^{-1}$  est l'inverse de la fonction de Langevin,  $\lambda_i$  sont les composantes principales des dilatations plastiques  $\mathbb{V}^p$ , et  $\lambda_{chain} = (\sum \lambda_i^2 / 3)^{1/2}$  définissent l'extensibilité des chaînes polymères.

### 3 Définition de la mesure en grandes déformations

Les grandes déformations des polymères amorphes introduisent des mouvements hors-plan comme des rotations. Cependant, elles ne sont généralement pas prises en compte dans les lois de comportement développées dans la littérature [8-10]. Nous établissons ici ces relations et nous les intégrons dans les lois de comportement du modèle développé par Richeton et al. [8]. Cela nous permet de décrire de façon générale le comportement thermomécanique des polymères amorphes pour des chargements complexes en grandes déformations.

#### 3.1 Mesure de la déformation élastique

Plusieurs auteurs [11-14] ont montré comment relier la mesure de déformation logarithmique et le tenseur taux de déformation. Ils utilisent généralement le tenseur de dilatations droit  $\mathbb{U}$  (voir Eq. 4, d'après Hill et al. [11]).

$$\left( \overline{\ln \mathbb{U}^e} \right)_{ij} = K_{ij}^e \mathbb{D}_{ij}^e \quad \text{with} \quad K_{ij}^e = \begin{cases} 1 & \text{if } i = j \\ \frac{2\lambda_i \lambda_j}{\lambda_j^2 - \lambda_i^2} \ln \left( \frac{\lambda_j}{\lambda_i} \right) & \text{if } i \neq j \text{ and } \lambda_i \neq \lambda_j \\ 1 & \text{if } i \neq j \text{ and } \lambda_i = \lambda_j \end{cases} \quad (4)$$

Où  $K_{ij}^e$  est un tenseur symétrique représentant l'opérateur de transport induit par la déformation élastique et  $\lambda_i$  sont les dilatations principales (valeurs propres de  $\mathbb{U}^e$ ). Ici, les indices soulignés ne sont pas sommés.

Dans le modèle de Richeton et al. [8], le tenseur des contraintes de Cauchy (Eq. 2) est défini en utilisant la mesure de déformation logarithmique sur le tenseur des dilatations gauche  $\mathbb{V}^e$  relié au précédent par la relation  $\mathbb{V} = \mathbb{R}^T \mathbb{U} \mathbb{R}$ .

A partir du principe des puissances virtuelles, la densité de puissance des forces intérieures est égale à  $-\mathcal{P} = \mathbb{T} : \mathbb{D}$ . Mais, à partir de l'Eq. 4, la nouvelle forme du tenseur des taux de déformation est donnée par  $K_{ij}^e \mathbb{D}_{ij}^e$ . La relation entre la dérivée temporelle de la mesure de déformation  $\left( \overline{\ln \mathbb{U}^e} \right)_{ij}$  et le tenseur du taux de déformation  $\mathbb{D}_{ij}^e$  induit donc une modification du tenseur des contraintes de Cauchy  $\widehat{\mathbb{T}}_{ij}$  (Eq. 5) qui apparait seulement sur les composantes de cisaillement.

$$\widehat{\mathbb{T}}_{ij} = K_{ij}^e{}^{-1} \mathbb{T}_{ij} \quad (5)$$

### 3.2 Mesure de la déformation plastique

Le comportement viscoélastique du matériau a été représenté par le modèle 8-chaînes développé par Arruda et Boyce [4]. Le tenseur de *backstress*  $\mathbb{B}$  (Eq. 3) est défini à partir de la mesure de déformation-différence  $(\lambda_i^2 - \lambda_{chain}^2)$  de la déformation plastique. Afin d'estimer la correction à apporter au taux de déformation en grande déformations, une fonction  $f$  servant de mesure est utilisée, elle doit satisfaire les 3 conditions suivantes :

- $f$  est nulle lorsqu'il n'y a pas de déformation :  $f(\mathbb{U}) = f(\mathbb{I} + \boldsymbol{\varepsilon}) = 0$  avec  $\boldsymbol{\varepsilon} = 0$ .
- $f(\mathbb{U}) \equiv \varepsilon_L$  en petites déformations avec :  $f'(\mathbb{U}) = f'(\mathbb{I} + \boldsymbol{\varepsilon}) = 1$
- $f$  est une fonction croissante de la déformation

avec  $\mathbb{I}$  le tenseur identité et  $\boldsymbol{\varepsilon}$  le tenseur des petites déformations. Une fonction  $f$  qui vérifie ces 3 conditions et en accord avec le modèle 8-chaînes est donnée par :

$$f(\lambda_i) = \frac{1}{2}(\lambda_i^2 - \lambda_{chain}^2) \quad (6)$$

Cette mesure de la déformation (Eq. 6) peut être assimilée à la mesure de Green. Afin d'intégrer dans le modèle numérique les effets des rotations induites dans la mesure de Green (mesure de la déformation-différence), une relation doit être établie entre la dérivée temporelle de la mesure de déformation de Green  $\overline{\dot{f}(\mathbb{U}^p)}$  et le tenseur des taux de déformations plastiques  $\mathbb{D}^{ethp}$ . En accord avec le principe des puissances virtuelles, le tenseur de *backstress*  $\mathbb{B}$  est alors mis à jour (Eq. 7).

$$\overline{\dot{f}(\mathbb{U}^p)}_{ij} = \mathbb{D}_{ij}^{ethp} \lambda_i \lambda_j \quad \text{et} \quad \widehat{\mathbb{B}}_{ij} = \mathbb{B}_{ij} \lambda_i^{-1} \lambda_j^{-1} \quad (7)$$

A partir de l'Eq. 7, nous pouvons observer ici que les rotations issues des grandes déformations affectent non seulement les composantes de cisaillement, mais aussi les composantes diagonales du tenseur des contraintes. Cela induit une modification de la réponse du modèle de comportement thermomécanique calculé à partir des paramètres matériau identifiés par Richeton et al. [8]. En conséquence, une nouvelle identification des paramètres « matériau » a été effectuée à partir des données expérimentales.

## 4 Modèle numérique

Les lois de comportement développées par Richeton et al. [8] et complétées par ces transports ont été implémentées dans une subroutine VUMAT Abaqus Explicit afin d'évaluer les effets des opérateurs de transport en grandes déformations. Les deux effets des mesures (logarithmique et déformation-différence) ont été implémentés. La comparaison entre les résultats expérimentaux et numériques est présentée sur la Fig. 1 pour les cas de charges en compression uniaxiale et en cisaillement.

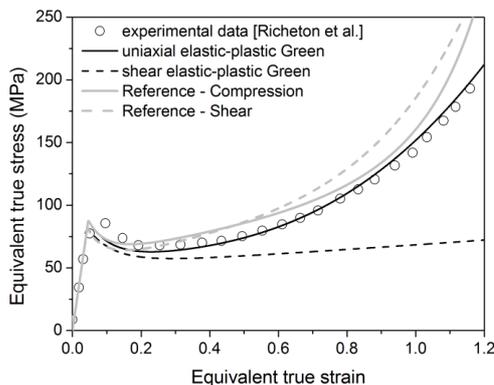


Figure 1: Influence des opérateurs de transport sur la modélisation du comportement thermomécanique des polymères amorphes soumis à de la compression uniaxiale et à un cisaillement pur

On observe sur la Fig. 1 que le comportement unidimensionnel en traction est très bien simulé, ce qui était attendu. La prise en compte des opérateurs de transport dans le comportement général en grandes déformations des polymères amorphes, toujours en développement, permet de bien mieux se rapprocher des comportements réels de ces matériaux dès que les composantes de cisaillement sont importantes, ce qui n'est en général jamais correctement satisfait par les modèles traditionnels.

## 5 Conclusion

Dans cette étude, l'influence des opérateurs de transport en transformations finies a été explorée pour des chargements complexes sur les polymères amorphes. Ces effets ont été mis en évidence sur le modèle de Richeton et al. [8] pour les mesures de déformation logarithmique et déformation-différence. Les opérateurs de transport ont permis de prendre en compte des phénomènes liés aux chargements complexes qui n'étaient pas mis en évidence sur des cas de chargement simple comme la traction uniaxiale. Ces effets jouent donc un rôle primordial sur le comportement thermomécanique des polymères amorphes en transformations finies, et en particulier lorsque le cisaillement est important. Une extension de ces résultats pour le comportement des polymères semi-cristallins (en cours de développement) conduit à des simulations similaires aux résultats de G'Sell et al. [16].

## References

- [1] R.M. Boubimba, K. Wang, N. Bahlouli, S. Ahzi, Y. Rémond, F. Addiego, Experimental investigation and micromechanical modeling of high strain rate compressive yield stress of a melt mixing polypropylene organoclay nanocomposites, *Mech. Mater.* 52 (2012) 58–68.
- [2] R. Matadi, E. Hablot, K. Wang, N. Bahlouli, S. Ahzi, L. Avérous, High strain rate behaviour of renewable biocomposites based on dimer fatty acid polyamides and cellulose fibres, *Compos. Sci. Technol.* 71 (2011) 674–682.
- [3] A. Argon, A theory for the low-temperature plastic deformation of glassy polymers, *Philos. Mag.* 28 (1973) 839–865.
- [4] E.M. Arruda, M.C. Boyce, A three-dimensional constitutive model for the large stretch behavior of rubber elastic materials, *J. Mech. Phys. Solids.* 41 (1993) 389–412.
- [5] J. Richeton, S. Ahzi, L. Daridon, Y. Rémond, A formulation of the cooperative model for the yield stress of amorphous polymers for a wide range of strain rates and temperatures, *Polymer.* 46 (2005) 6035–6043.
- [6] J. Richeton, G. Schlatter, K. Vecchio, Y. Rémond, S. Ahzi, A unified model for stiffness modulus of amorphous polymers across transition temperatures and strain rates, *Polymer.* 46 (2005) 8194–8201.
- [7] S. Patlazhan, Y. Remond, Structural mechanics of semicrystalline polymers prior to the yield point: a review, *J. Mater. Sci.* 47 (2012) 6749–6767.
- [8] J. Richeton, S. Ahzi, K.S. Vecchio, F.C. Jiang, A. Makradi, 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 (2007) 7938–7954. doi:10.1016/j.ijsolstr.2007.05.018.
- [9] L. Anand, N.M. Ames, V. Srivastava, S.A. Chester, A thermo-mechanically coupled theory for large deformations of amorphous polymers. Part I: Formulation, *Int. J. Plast.* 25 (2009) 1474–1494. doi:10.1016/j.ijplas.2008.11.004.
- [10] R.B. Dupaix, M.C. Boyce, Constitutive modeling of the finite strain behavior of amorphous polymers in and above the glass transition, *Mech. Mater.* 39 (2007) 39–52. doi:10.1016/j.mechmat.2006.02.006.
- [11] R. Hill, Constitutive inequalities for isotropic elastic solids under finite strain, in: *The Royal Society*, 1970: pp. 457–472.

- [12] M.E. Gurtin, K. Spear, On the relationship between the logarithmic strain rate and the stretching tensor, *Int. J. Solids Struct.* 19 (1983) 437–444.
- [13] A. Hoger, The material time derivative of logarithmic strain, *Int. J. Solids Struct.* 22 (1986) 1019–1032.
- [14] P. Rougée, *Mécanique des grandes transformations*, Springer Science & Business Media, 1997.
- [15] H. Xiao, O. Bruhns, A. Meyers, A consistent finite elastoplasticity theory combining additive and multiplicative decomposition of the stretching and the deformation gradient, *Int. J. Plast.* 16 (2000) 143–177.
- [16] C. G'sell, S. Boni, S. Shrivastava, Application of the plane simple shear test for determination of the plastic behaviour of solid polymers at large strains, *J. Mater. Sci.* 18 (1983) 903–918.