HAL
open science

Identification viscoélastique, en grande transformation, du comportement du polyéthylène téréphtalate au dessus de Tg et homogénéisation des propriétés mécaniques

Benoît Cosson, Luc Chevalier

To cite this version:

Benoît Cosson, Luc Chevalier. Identification viscoélastique, en grande transformation, du comportement du polyéthylène téréphtalate au dessus de Tg et homogénéisation des propriétés mécaniques. CFM 2007 - 18ème Congrès Français de Mécanique, Aug 2007, Grenoble, France. hal-03361763

HAL Id: hal-03361763

https://hal.science/hal-03361763v1

Submitted on 1 Oct 2021

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.

Identification viscoélastique, en grande transformation, du comportement du polyéthylène téréphtalate au dessus de Tg et homogénéisation des propriétés mécaniques

Benoît Cosson, Luc Chevalier

Université de Marne la Vallée
LaM, Laboratoire de Mécanique EA 2545
Cité Descartes, 5 boulevard Descartes, Champs-sur-Marne, 77454 Marne-la-Vallée
e-mail : cosson@univ-mlv.fr

Résumé :

Le soufflage des bouteilles en polyéthylène téréphtalate (PET) génère des modifications importantes des propriétés mécaniques du matériau. Ce procédé de mise en forme est réalisé alors que le matériau se trouve à des températures légèrement supérieures à la température de transition vitreuse. Les modifications de propriétés en cours d'étirage sont la conséquence de modifications de la microstructure (cristallisation induite). Sur la base d'essais de traction uniaxiale et biaxiale réalisés sur des éprouvettes en PET à des températures proches de Tg, on identifie, en supposant un état de déformation uniforme pendant les essais de traction uniaxiale, un modèle viscoélastique de type Maxwell, dont le comportement élastique est du type hyper-élastique et le comportement visqueux est non linéaire et couplé à une variable qui permet de représenter l'effet de durcissement lié à la cristallisation induite. L'identification est adaptée d'une méthode originale déjà présentée par Chevalier et al. (2007).

Abstract :

The stretch-blow moulding of poly(ethylene terephthalate) bottles process generates important modifications of the mechanical properties of the material. Considering the temperature usually used for the process (T > Tg) the material shows a strain hardening effect linked to the microstructure evolution (induced crystallization). Based on the results of uniaxial and biaxial tensile tests managed on PET specimens at temperatures slightly higher than Tg, a visco-elastic Maxwell model has been identified. Strain and stress uniformity in the specimen is assumed. The elastic part of the behavior law is hyper-elastic and the viscous part is non linear coupled to an internal variable which represents the hardening effect due to the induced crystallization. The identification procedure is adapted from an original method already proposed by Chevalier et al. (2007).

Mots-clefs :

Viscoélasticité, polyéthylène téréphtalate, modélisation.

1 Introduction

Dans un précédent article, Chevalier *et al*. (2007) ont, sur la base d'essais de traction uniaxiale (Fig. 1) et biaxiale sur du PET à une température supérieure à Tg, identifié un modèle viscoplastique non linéaire simple, qui permet de traduire macroscopiquement le durcissement du PET dû aux modifications de la microstructure : cristallisation et orientation macromoléculaire (Vigny *et al*. (1999), Mahendrasingam *et al*. (2000), Gorlier *et al*. (2001)). Ici, nous proposons une modélisation plus fine du comportement du PET en prenant en compte le caractère élastique du matériau. Le modèle (Eq.1) est viscoélastique de type Maxwell, où les caractéristiques élastiques et visqueuses varient avec l'état du matériau. Il a été identifié en

supposant une uniformité des déformations et des contraintes dans l'éprouvette. Les résultats phénoménologiques trouvés seront comparés à une approche micromécanique.

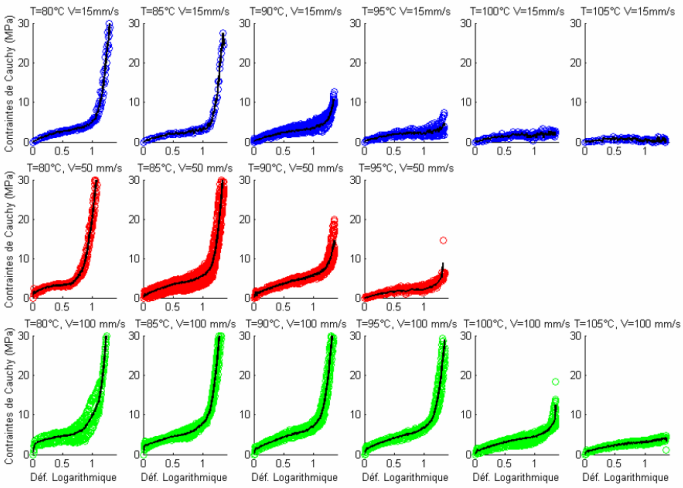

Fig. 1 Résultats des essais de traction uniaxiale, Chevalier *et al*. (2007)

2 Modélisation du comportement viscoélastique du PET

Pour la suite de la modélisation nous utilisons un modèle de Maxwell en grande transformation. Bien que la dérivée d'Oldroyd soit couramment utilisée dans la description du comportement des polymères, elle ne permet pas de décrire celui du PET dans le cas de la traction uniaxiale dans la plage des vitesses parcourues. Nous utilisons plutôt la dérivée de Jaumann, qui rend mieux compte des phénomènes observés (notamment de l'effet rhéofluidifiant en cisaillement). Le modèle utilisé est donc le suivant :

$$\begin{aligned} &\frac{1}{2G}\frac{\delta\boldsymbol{\Sigma}}{\delta t}+\frac{1}{2\eta}\boldsymbol{\Sigma}=\mathbf{D} \\ &\boldsymbol{\Sigma}=\boldsymbol{\sigma}+p\mathbf{I} \\ &\frac{\delta\boldsymbol{\Sigma}}{\delta t}=\frac{d\boldsymbol{\Sigma}}{dt}+\boldsymbol{\Sigma}\boldsymbol{\Omega}-\boldsymbol{\Omega}\boldsymbol{\Sigma} \end{aligned} \tag{1}$$

Où $\boldsymbol{\sigma}$, $\mathbf{D}$, $\boldsymbol{\Omega}$, sont respectivement les tenseurs des contraintes de Cauchy, des taux de déformation et des taux de rotation. En observant les résultats de la Fig. 1 on remarque que la vitesse a peu ou pas d'influence sur les essais réalisés à 80°C, alors que pour les températures plus élevées le comportement est fortement dépendant de la vitesse de traction. L'identification du modèle viscoélastique non linéaire se fait en deux étapes. Premièrement nous identifions la partie élastique du modèle en exploitant les résultas expérimentaux trouvés à 80°C, puis nous utilisons les résultats des températures supérieures à 80°C pour identifier la partie visqueuse.

2.1 Identification de la partie élastique

Pour l'identification de la partie élastique, nous supposons que la viscosité du PET tend vers l'infini lorsque la température du matériau se rapproche de 80°C. Le modèle viscoélastique (Eq.1) devient le modèle élastique suivant :

$$\frac{\delta\boldsymbol{\Sigma}}{\delta t}=2G\mathbf{D} \tag{2}$$

Dans le cas de la traction uniaxiale le tenseur des taux de rotation est nul et le système précédent se ramène à l'équation suivante :

$$\frac{d\sigma}{dt} = 3G\frac{d\varepsilon}{dt} \text{ soit } G = \frac{1}{3}\frac{d\sigma}{d\varepsilon} \tag{3}$$

Où σ est la contrainte de traction de Cauchy et ε est la déformation logarithmique. Afin de déterminer G nous postulons la forme de σ en fonction de ε.

$$\sigma = A\left(e^{\varepsilon}-1\right)^3 + B\left(e^{\varepsilon}-1\right)^2 + C\left(e^{\varepsilon}-1\right) \tag{4}$$

Avec A = 2,7074, B = -5,5511, et C = 6,7916, afin de coller au mieux aux résultats expérimentaux.

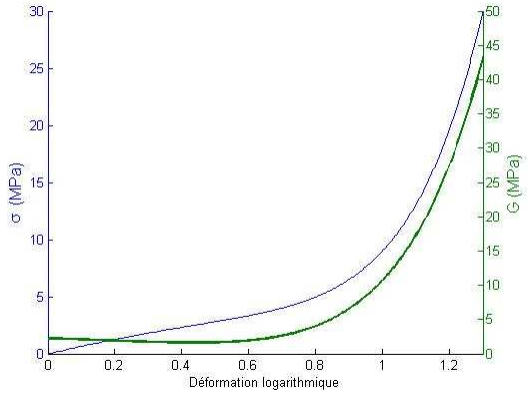

Fig. 2 Module de cisaillement G et contrainte σ en fonction de la déformation logarithmique ε

Nous supposons maintenant que la partie élastique du comportement du PET dépend peu de la température, c'est-à-dire que la rigidité des chaînes macromoléculaires varie peu sur la plage des températures retenues (de 80°C à 105°C).

2.1 Identification de la partie visqueuse

Pour l'identification de la partie visqueuse, nous prenons une forme de viscosité (η) identique à celle décrite dans Chevalier *et al*. (2007). Les paramètres sont identifiés sur les essais réalisés à 100°C.

$$\begin{aligned} &\eta = K\dot{\bar{\gamma}}^{m-1} \\ &K = K_0 e^{(a\varepsilon^3 + b\varepsilon^2 + c\varepsilon)} e^{a_T} \\ &\dot{\bar{\gamma}} = \left(2\mathbf{D}:\mathbf{D}\right)^{\frac{1}{2}} \\ &a_T = \alpha T + \beta \end{aligned} \tag{5}$$

Où a_T est un coefficient lié à la température, il vaut 0 pour T = 100°C. Dans le cas viscoélastique les paramètres optimaux sont m = 0,66, K_0 = 0,33 MPa, a = 5,0444, b = -10,8265, c = 7,8542, α = -0,2303 et β = 23,0259.

La Fig. 3 montre les résultats obtenus avec le modèle précédemment identifié pour la simulation des essais de traction uniaxiale dans le cadre de l'hypothèse des déformations et contraintes uniformes. On remarque que le modèle rend compte de l'influence de la vitesse de sollicitation et de la température.

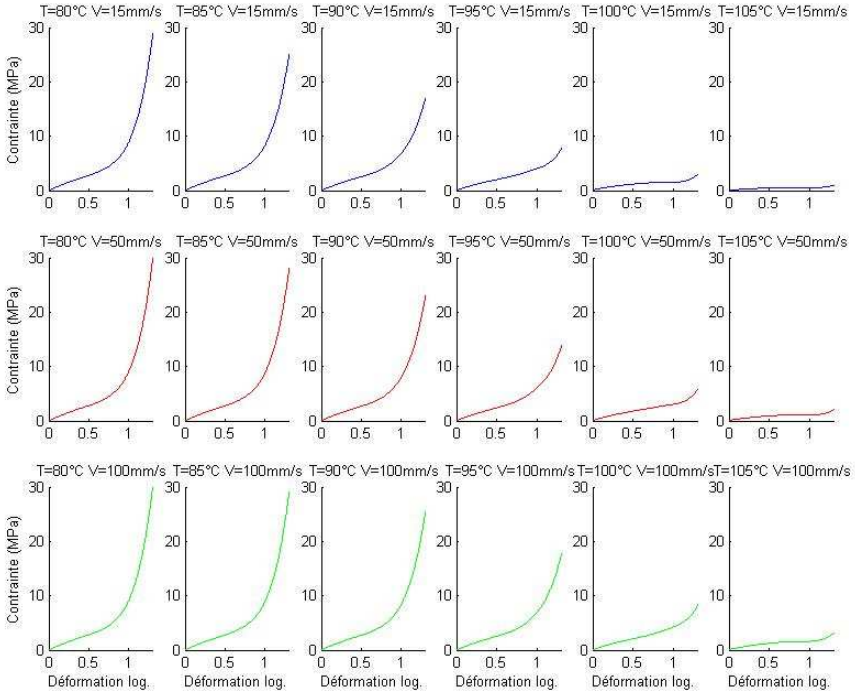

Fig. 3 Simulation du comportement du PET en traction uniaxiale

3 Homogénéisation micromécanique

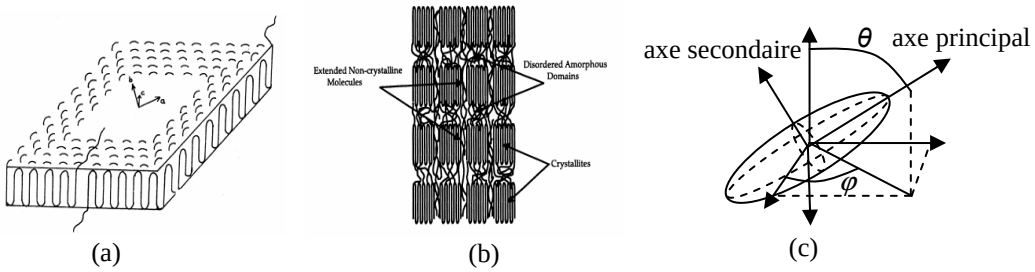

Fig. 4 Représentation de la morphologie du PET, (a) lamelle cristalline, (b) multicouche biphasé, (c) inclusion sphéroïdale

A l'échelle macroscopique le PET est un matériau homogène. Mais étant un polymère semi-cristallin on peut le considérer, du point de vue microscopique, comme un mélange hétérogène de plusieurs phases : une phase cristalline et une phase amorphe. L'homogénéisation des propriétés effectives du PET permet de justifier les allures exponentielles du module de cisaillement et de la viscosité que nous avons proposées. En effet, même si nous restons dans le cadre de l'homogénéisation linéaire des propriétés élastiques ou visqueuses du PET, cela nous renseigne sur l'évolution de ces propriétés en fonction du taux de cristallinité et de la forme des cristaux. Avant de procéder à l'homogénéisation, nous devons définir la disposition spatiale des deux phases l'une par rapport à l'autre. Il existe différents types de représentation que l'on retrouve Fig. 4 (Kulkarni *et al.* (1998)). Nous avons choisi de représenter le PET semi-cristallin comme un composite matrice – inclusion (sphéroïdale), où la matrice est constituée de phase amorphe et les inclusions représentent soit les lamelles cristallines (Fig. 4.a), soit un composite multicouche biphasé (phases cristalline et amorphe, Fig. 4.b). Dans cette étude, nous avons utilisé deux techniques d'homogénéisation : le modèle auto-cohérent (AC) et le schéma

différentiel (SD) (Bornet *et al*. (2001) et Nemat-Nasser *et al*. (1999)). Dans le cas où l'inclusion est un composite multicouche biphasé, il faut procéder à une étape préliminaire de calcul du comportement effectif du multicouche. Dans les deux méthodes AC et SD, le facteur de forme (α est le rapport de la longueur de l'axe principal sur la longueur des axes secondaires) des inclusions intervient comme paramètre. Dans le cas des lamelles la croissance se fait suivant les axes perpendiculaires à l'axe des chaînes (α décroît). Pour le composite, on suppose que la croissance se fait dans les trois directions (α est inconnu).

3.1 Homogénéisation des propriétés élastiques

Les propriétés élastiques des cristaux de PET sont données dans Rutledge (1997), pour la phase amorphe, nous utilisons les propriétés initiales trouvées dans le modèle identifié précédemment (G = 2,25 MPa). La Fig. 5 montre l'importance du facteur de forme dans l'estimation du module d'Young pour du PET semi-cristallin. Et nous trouvons aussi une croissance exponentielle des propriétés élastiques ce qui est en corrélation avec les résultats obtenues dans la première partie.

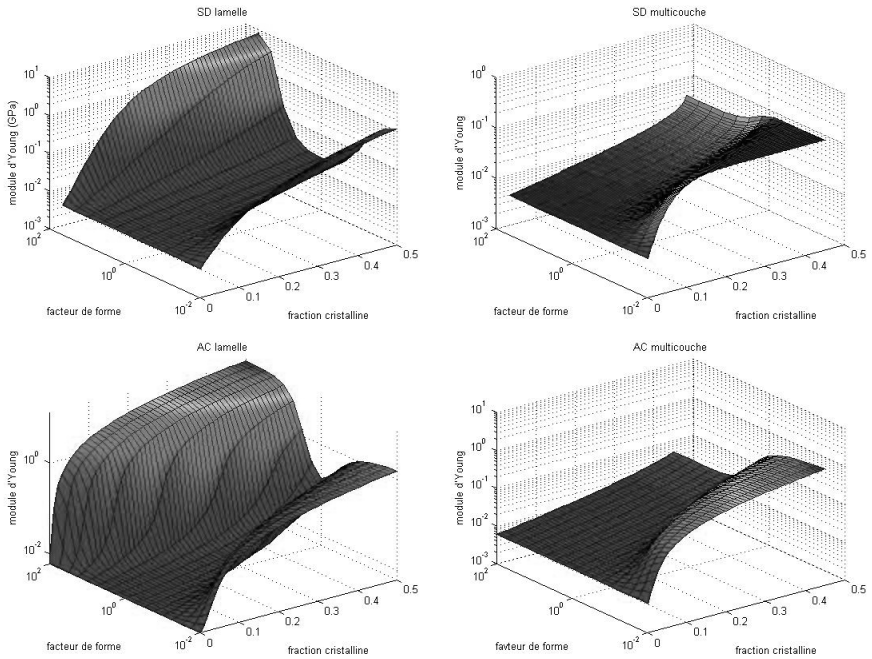

Fig. 5 Module d'Young du PET (GPa) donné par homogénéisation

3.2 Homogénéisation des propriétés visqueuses

De la même façon qu'au chapitre précédent, nous avons appliqué les schémas d'homogénéisation dans le cadre de la viscosité linéaire. On suppose que les cristaux de PET ont une viscosité très élevée par rapport au PET amorphe. Les résultats donnés Fig. 6 sont normalisés, il montre aussi le caractère durcissant de la cristallisation.

4 Conclusions

Nous avons identifié un modèle viscoélastique simple de type Maxwell, qui est capable de représenter de manière stable le durcissement du PET lié aux modifications de microstructure. Nous avons établi des liens entre les propriétés mécaniques macroscopiques et l'évolution de la

microstructure. Les résultats obtenus restent qualitatifs et la relation entre les paramètres micros (orientation et cristallinité) et la déformation équivalente ε reste à étudier. Il est nécessaire d'exploiter les essais qui nous indiquent l'état de la microstructure en fonction de l'état mécanique du matériau.

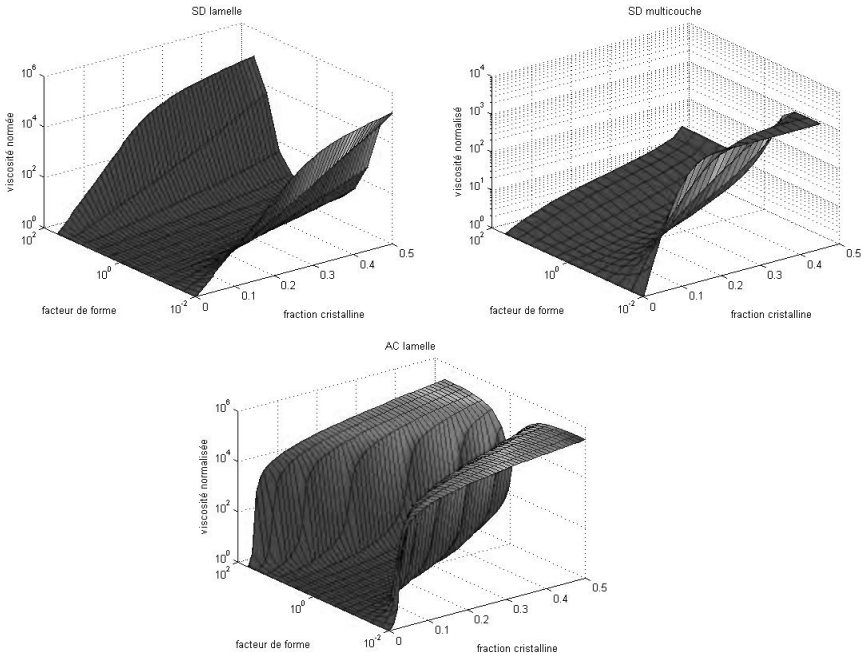

Fig. 6 Viscosité normalisée du PET donnée par homogénéisation

Références

Chevalier, L., Marco, Y. 2007 Identification of a strain induced crystallisation model for PET under uni- and bi-axial loading: Influence of temperature dispersion. *Mechanics of Materials*, **39**, 596-609

Vigny, Hiver, Aboulfarg, G'Sell 1999 Constitutive viscoplastic behavior of amorphous PET during plane-strian tensile stretching, *Pol. Eng. Sci*., **39**, 2366-2376

Mahendrasingam A., Blundell D.J., Martin C., Fuller W., MacKerron D.H., Harvie J.L., Oldman R.J., Riekel R.C. 2000 Influence of temperature and chain orientation on the crystallization of poly(ethylene terephthalate) during fast drawing, *Polymer*, **41**, 7803–7814

Gorlier E., Haudin J.M., Billon N. 2001 Strain-induced crystallisation in bulk amorphous PET under uni-axial loading, *Polymer*, **42**, 9541-9549

Kulkarni J.A., Beris A.N. 1998 Lattice-based simulations of chain conformations in semi-crystalline polymers with application to flow-induced crystallization, *J. Non-Newtonian Fluid Mech.*, **82**, 331-366

Bornert M., Bretheau T., Gilormini P. 2001 Homogénéisation en mécanique des matériaux 1 Matériaux aléatoires élastiques et milieux périodiques, Ed *Hermes science*

Nemat-Nasser S., Hori M. 1999 micromechanics: overall properties of heterogeneous materials, Ed *Elsevier*

Rutledge G.C. 1997 Thermomechanical Properties of the Crystal Phase of Poly(ethylene terephthalate) by Molecular Modeling, *Macromolecules*, **30**, 2785-2791