

Marian Klasztorny¹

Politechnika Warszawska, Instytut Mechaniki i Konstrukcji, ul. Narbutta 85, 02-524 Warszawa

Roman Gieleta²

Wojskowa Akademia Techniczna, Instytut Materiałoznawstwa i Mechaniki Technicznej, ul. Kaliskiego 2, 00-908 Warszawa

MODELOWANIE LEPKOSPĘŻYSTYCH ŻYWIC JAKO OSNÓW POLIMEROWYCH KOMPOZYTÓW WŁÓKNISTYCH

Opracowano nowy model lepkospężyści HWKK, opisujący osnowy polimerowych kompozytów włóknistych w postaci żywicy epoksydowej lub poliestrowej. Model ten uwzględnia pełzanie krótkotrwałe oraz długotrwałe materiału i jest opisany przez funkcję wykładniczą ułamkową oraz dwie funkcje wykładnicze zwykłe. Sformułowano równania konstytutywne modelu oraz wyznaczono eksperymentalnie stałe materiałowe dla żywicy epoksydowej i poliestrowej. Przeprowadzono walidację modelu HWKK dla wybranych programów obciążenia.

MODELLING OF VISCOELASTIC RESINS AS MATRICES OF FIBRE-REINFORCED POLYMERIC COMPOSITES

The study is devoted to viscoelastic modelling of resins (epoxy and polyester), applied as matrices of fibre-reinforced polymeric composites. This type of composites protects lower levels of stresses in the matrix, not exceeding 30% of the tensile strength of a resin material. The experiments, performed on bar resin samples tensioned uniaxially in a room temperature, have pointed that the creep processes are of the 1st rank type and reversible. Moreover, the directional strains are quasi-proportional. The short lasting creep (SLC) can be simulated with good accuracy using the generating function in the form of a linear combination of the fractional and normal exponential functions. The long lasting creep (LLC) can be simulated with good accuracy using an additional normal exponential function.

A new rheological model for resins (amorphous thermoharden materials), reflecting the above mentioned features, has been developed. This model, denoted with the symbol HWKK, is described by two elastic constants (E , ν) and seven viscoelastic constants ($\omega_{\kappa 1}$, $\omega_{\kappa 2}$, $\omega_{\eta 1}$, $\omega_{\eta 2}$, τ_w , $\tau_{\kappa 1}$, $\tau_{\kappa 2}$). A mechanic representation of the HWKK model is shown in Figure 1. The parameters $\omega_{\kappa 1}$, $\omega_{\kappa 2}$ are coefficients for the SLC long-lasting time compliances, and $\omega_{\eta 1}$, $\omega_{\eta 2}$ denote coefficients for the LLC long-lasting time compliances. The parameters τ_w , $\tau_{\kappa 1}$, $\tau_{\kappa 2}$ denote the elastic sequence times related to the Wilczynski's and Kelvin's elements. The constants μ (a ratio defining the elastic-sequence-times distribution $A(\xi; \mu)$) and γ (a fraction defining a linear combination of the generating functions $\Phi(t)$, $F_1(t)$) are predefined and equal $\gamma = 0.5$, $\mu = 0.5$ for both resins.

Constitutive equations of viscoelasticity, governing the HWKK model, have been formulated (Eqs (3)-(6)). Classic creep of uniaxially tensioned bar samples has been described analytically and the directional creep functions derived (Eqs (7)-(9)). A computer aided algorithm for identification of 9 material constants has been formulated, programmed in Pascal and applied for estimation of the material constants for the Epidian 53 epoxy and Polimal 19 polyester. The main stages of the identification algorithm are illustrated graphically in Figures 2-4. The results of identification of the material constants are collected in Table 1.

The HWKK rheological model for resins has been positively validated for selected loading programmes. This model enables simulating arbitrary viscoelastic processes with good accuracy, provided that the stress levels protect the 1st rank creep. Besides, this model can be applied for viscoelastic modelling of fibre-reinforced resin-matrix composites, applying a fully analytical method developed in Refs [4, 7].

WPROWADZENIE

W modelowaniu żywic wykorzystuje się zjawisko pełzania próbki prętowej, rozciąganej jednokierunkowo, poddanej obciążeniu typu Heaviside'a. Wyróżnia się trzy typy pełzania: pełzanie pierwszorzędowe (o gradientach malejących w czasie), pełzanie drugorzędowe (ustalone) oraz pełzanie trzeciorzędowe (o gradientach rosnących w czasie) [1]. Pełzania drugorzędowe i trzeciorzędowe zachodzą w podwyższonych temperaturach lub przy wysokich poziomach naprężeń rozciągających próbkę. Poziomy naprężeń w matrycach polimerowych kompozytów włóknistych, obciążonych w

temperaturze pokojowej, nie przekraczają 30% wytrzymałości doraźnej na rozciąganie żywicy, co gwarantuje tylko pełzanie pierwszorzędowe i zakres liniowo sprężysty. Ponadto, badania eksperymentalne własne, w zakresie wybranych programów obciążenia próbek rozciąganych jednokierunkowo, wykonanych z żywicy epoksydowej lub poliestrowej, wykazały, że pełzanie w ww. warunkach jest odwracalne.

Modelom matematycznym odpowiadają modele mechaniczne żywic, które są układem połączonych ze sobą

¹ dr hab. inż., ² dr inż.

szeregowo elementów Hooke'a (H), Kelvina (K), Newtona (N) i Wilczyńskiego (W) [2]. Elementy H, K, N są rozumiane klasycznie, natomiast elementowi W odpowiada funkcja tworząca w postaci funkcji wykładniczej ułamkowej Mittag-Lefflera [3].

RÓWNANIA KONSTYTUTYWNE SPREŻYSTOŚCI MATRYCY

Żywice, będące polimerami amorficznymi termoutwardzalnymi, zastosowane jako osnowy polimerowych kompozytów włóknistych, mogą być traktowane jako materiał izotropowy, liniowo sprężysty. Klasyczne związki Hooke'a dla takiego materiału można zapisać macierzowo w postaci [4]

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \mathbf{S}^0 \boldsymbol{\sigma} \quad (1)$$

gdzie:

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \text{col}(\varepsilon_{xx}, \varepsilon_{yy}, \varepsilon_{zz}, \varepsilon_{yz}, \varepsilon_{xz}, \varepsilon_{xy}),$$

$$\boldsymbol{\sigma} = \text{col}(\sigma_{xx}, \sigma_{yy}, \sigma_{zz}, \sigma_{yz}, \sigma_{xz}, \sigma_{xy})$$

$$\mathbf{S}^0 = \begin{bmatrix} S_x^0 & S_y^0 & S_y^0 & 0 & 0 & 0 \\ & S_x^0 & S_y^0 & 0 & 0 & 0 \\ & & S_x^0 & 0 & 0 & 0 \\ & & & S_x^0 - S_y^0 & 0 & 0 \\ & & & & S_x^0 - S_y^0 & 0 \\ \text{sym.} & & & & & S_x^0 - S_y^0 \end{bmatrix} \quad (2)$$

$$S_x^0 = \frac{1}{E}, \quad S_y^0 = -\frac{\nu}{E}, \quad S_x^0 - S_y^0 = \frac{1+\nu}{E}$$

We wzorach (1) i (2), definiujących równania konstytutywne sprężystości osnowy, poszczególne symbole oznaczają: xyz - dowolnie przyjęty kartezjański układ współrzędnych, $\boldsymbol{\varepsilon}$, $\boldsymbol{\sigma}$ - tensory odkształcenia i naprężenia (w zapisie macierzowym), \mathbf{S}^0 - macierz podatności sprężystych, E , ν - stałe sprężyste osnowy (moduł Younga, stała Poissona), S_x^0, S_y^0 - kierunkowe podatności sprężyste.

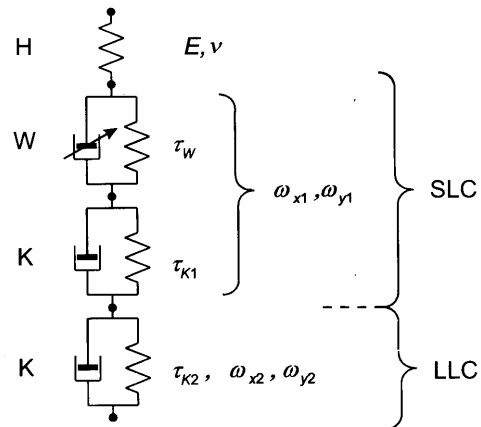
RÓWNANIA KONSTYTUTYWNE LEPKOSPREŻYSTOŚCI MATRYCY

Zgodnie z założeniami, pełzanie żywicy epoksydowej lub poliestrowej jest pierwszorzędowe, odwracalne. Przyjęto inwariantność procesów pełzania oraz zasadę superpozycji Boltzmanna [5].

Badania eksperymentalne własne w zakresie pełzania pierwszorzędowego próbek rozciąganych jednokierunkowo, wykonanych z żywicy epoksydowej lub poliestrowej, wykazały, że:

- Proces pełzania może być podzielony na dwa przedziały: przedział pierwszy odpowiada pełzaniu krótkotrwałemu (SLC), a drugi - pełzaniu długotrwałemu (LLC).
- Pełzanie SLC może być symulowane z dobrą dokładnością za pomocą elementów Wilczyńskiego i Kelvina, połączonych szeregowo.
- Odkształcenia kierunkowe $\varepsilon_{xx}(t)$, $\varepsilon_{yy}(t)$ odpowiadające SLC są quasi-proporcjonalne, przy czym: x - kierunek rozciągania, yz - płaszczyzna prostopadła do kierunku rozciągania.
- Pełzanie LLC może być symulowane z dobrą dokładnością za pomocą dodatkowego elementu Kelvina.
- Odkształcenia kierunkowe $\varepsilon_{xx}(t)$, $\varepsilon_{yy}(t)$ odpowiadające LLC są quasi-proporcjonalne.
- Czasy sprężystego następstwa, odpowiadające przedziałom SLC i LLC, różnią się o kilka rzędów.

Model mechaniczny żywicy, odwzorowujący ww. cechy pełzania pierwszorzędowego, pokazano na rysunku 1. Model ten, oznaczony symbolem HWKK, składa się z czterech elementów połączonych szeregowo. Element H odwzorowuje sprężystość natychmiastową, elementy W, K pełzanie SLC, zaś ostatni element K modeluje pełzanie LLC.



Rys. 1. Model reologiczny HWKK żywicy epoksydowej i poliestrowej
Fig. 1. The HWKK rheological model for epoxy and polyester resins

Równania konstytutywne lepkosprężystości, opisujące m.in. model HWKK, mają postać [4]

$$\boldsymbol{\varepsilon}(\tau) = \mathbf{S}(t) \otimes \boldsymbol{\sigma}(t) \quad (3)$$

gdzie:

$$\begin{aligned} \boldsymbol{\varepsilon} &= \text{col}(\varepsilon_{xx}, \varepsilon_{yy}, \varepsilon_{zz}, \varepsilon_{yz}, \varepsilon_{xz}, \varepsilon_{xy}) \\ \boldsymbol{\sigma} &= \text{col}(\sigma_{xx}, \sigma_{yy}, \sigma_{zz}, \sigma_{yz}, \sigma_{xz}, \sigma_{xy}) \end{aligned} \quad (4)$$

$$\mathbf{S} = \begin{bmatrix} S_x & S_y & S_y & 0 & 0 & 0 \\ & S_x & S_y & 0 & 0 & 0 \\ & & S_x & 0 & 0 & 0 \\ & & & S_x - S_y & 0 & 0 \\ & & & & S_x - S_y & 0 \\ \text{sym.} & & & & & S_x - S_y \end{bmatrix}$$

We wzorach (3), (4) wprowadzono następujące oznaczenia: $\mathbf{S}(t)$ - macierz podatności czasowych (podatności sprężysto-lepkosprężystych), $S_x(t)$, $S_y(t)$ - kierunkowe podatności czasowe materiału izotropowego, t - czas, \otimes operator splotu.

Kierunkowe podatności czasowe zdefiniowano w postaci:

$$\begin{aligned} S_x(t) &= S_x^0 \left[1 + \omega_{x1} \int_0^t \Phi_1(t-\vartheta) d\vartheta + \omega_{x2} \int_0^t F_2(t-\vartheta) d\vartheta \right] \\ S_y(t) &= S_y^0 \left[1 + \omega_{y1} \int_0^t \Phi_1(t-\vartheta) d\vartheta + \omega_{y2} \int_0^t F_2(t-\vartheta) d\vartheta \right] \end{aligned} \quad (5)$$

gdzie

$$S_x^0 = \frac{1}{E}, \quad S_y^0 = -\frac{\nu}{E}, \quad \Phi_1(t) = \gamma \Phi(t) + (1-\gamma) F_1(t),$$

$$0 < \gamma < 1$$

$$\Phi(t) = \alpha \int_0^\infty e^{-\alpha \xi t} \xi \Lambda(\xi; \mu) d\xi, \quad \alpha = \frac{1}{\tau_w}$$

$$\Lambda(\xi; \mu) = \frac{\sin \pi \mu}{\pi} \frac{\xi^{\mu-1}}{1 + 2\xi^\mu \cos \pi \mu + \xi^{2\mu}}, \quad 0 < \mu < 1$$

$$F_i(t) = \alpha_i e^{-\alpha_i t}, \quad \alpha_i = \frac{1}{\tau_{Ki}}, \quad i = 1, 2$$

$$\tau_{K2} \gg \tau_w, \tau_{K1}$$

(6)

We wzorach (5), (6) poszczególne symbole mają następującą interpretację: $\Phi_1(t)$ - funkcja tworząca, odpowiadająca SLC, $\Phi(t)$, $F_1(t)$ - funkcja wykładnicza ułamkowa oraz funkcja wykładnicza zwykła, odpowiadające SLC, $F_2(t)$ - funkcja tworząca (wykładnicza zwykła), odpowiadająca LLC, ω_{x2} , ω_{y2} - współczynniki określające podatności kierunkowe w czasie nieograniczonym, odpowiadające SLC, ω_{x1} , ω_{y1} - współczynniki określające podatności kierunkowe w czasie nieograniczonym, odpowiadające LLC, μ - ułamek definiujący rozkład czasu sprężystego następstwa $\Lambda(\xi; \mu)$, γ - ułamek definiujący kombinację liniową funkcji $\Phi(t)$, $F_1(t)$, τ_w , τ_{K1} ,

τ_{K2} - czasy sprężystego następstwa elementów lepkosprężystych modelu HWKK.

IDENTYFIKACJA STAŁYCH MATERIAŁOWYCH OPISUJĄCYCH MODEL HWKK

W przypadku pełzania próbki prętowej, rozciąganej w kierunku osi próbki (x), program obciążenia ma postać

$$\sigma_{xx}(t) = \sigma_{xx}^0 H(t) \quad (7)$$

gdzie σ_{xx}^0 jest stałym naprężeniem rozciągającym, natomiast $H(t)$ jest funkcją Heaviside'a, definiującą nagłe przyłożenie naprężenia. Z równań (3), z uwzględnieniem (4)-(6), otrzymuje się pełzanie kierunkowe, określone wzorami

$$\varepsilon_{xx}(t) = [1 + \omega_{x1} \varphi_1(t) + \omega_{x2} \varphi_2(t)] \varepsilon_{xx}^0 \quad (8)$$

$$\varepsilon_{yy}(t) = [1 + \omega_{y1} \varphi_1(t) + \omega_{y2} \varphi_2(t)] \varepsilon_{yy}^0$$

gdzie:

$$\varepsilon_{xx}^0 = S_x^0 \sigma_{xx}^0 = \frac{1}{E} \sigma_{xx}^0, \quad \varepsilon_{yy}^0 = S_y^0 \sigma_{xx}^0 = -\frac{\nu}{E} \sigma_{xx}^0$$

$$\varphi_1(t) = 1 - \gamma \int_0^\infty e^{-\alpha \xi t} \Lambda(\xi; \mu) d\xi - (1-\gamma) e^{-\alpha_1 t} \quad (9)$$

$$\varphi_2(t) = 1 - e^{-\alpha_2 t}$$

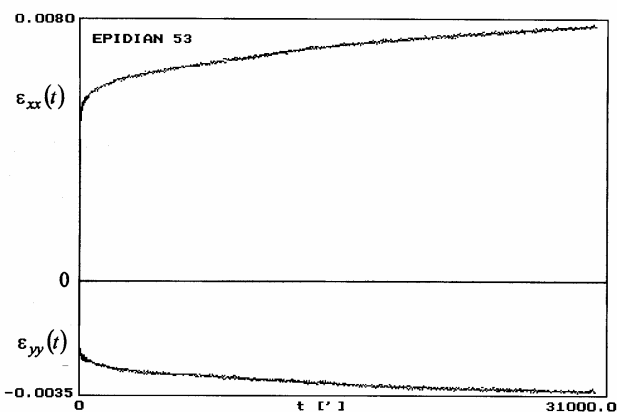
przy czym $0 < \varphi_i(t) < 1$, $i = 1, 2$, $t > 0$. Wielkości występujące we wzorach (8) i (9) mają następującą interpretację: ε_{xx}^0 , ε_{yy}^0 - kierunkowe odkształcenia sprężyste, $\varphi_1(t)$, $\varphi_2(t)$ - funkcje pełzania, odpowiadające SLC, LLC.

Wstępne testy numeryczne wykazały, że aproksymacja odkształceń kierunkowych za pomocą funkcji $\Phi(t)$, $F_1(t)$, $F_2(t)$ jest bardzo elastyczna. Przyjmując, że dopuszczalna wartość względnego błędu odchylenia symulowanych krzywych pełzania od krzywych eksperymentalnych wynosi $\delta_{top} = 1\%$, otrzymuje się nieskończenie wiele kombinacji wartości parametrów γ , μ , τ_w , τ_{K1} , τ_{K2} , spełniających ten warunek. Wartości czasów sprężystego następstwa, spełniające ww. warunek dokładności, można wyznaczyć dla $0,4 < \gamma < 0,6$, $0,4 < \mu < 0,6$. W tych okolicznościach wartości parametrów γ , μ mogą być predefiniowane, natomiast czasy sprężystego następstwa wyznaczone z nieliniowego zadania optymalizacyjnego. Przyjęto $\gamma = 0,5$, $\mu = 0,5$ dla obydwu żywic. Dokładność wyznaczenia stałych lepkosprężystych τ_w , τ_{K1} , τ_{K2} należy tak dobrać, aby uzyskać jednoznaczne rozwiązanie.

Podsumowując, model reologiczny HWKK żywicy epoksydowej i poliestrowej jest opisany przez 2 stałe sprężystości (E , ν) oraz 7 stałych lepkosprężystości (ω_{k1} , ω_{k2} , ω_{y1} , ω_{y2} , τ_w , τ_{k1} , τ_{k2}). Jest to relatywnie mała liczba stałych materiałowych.

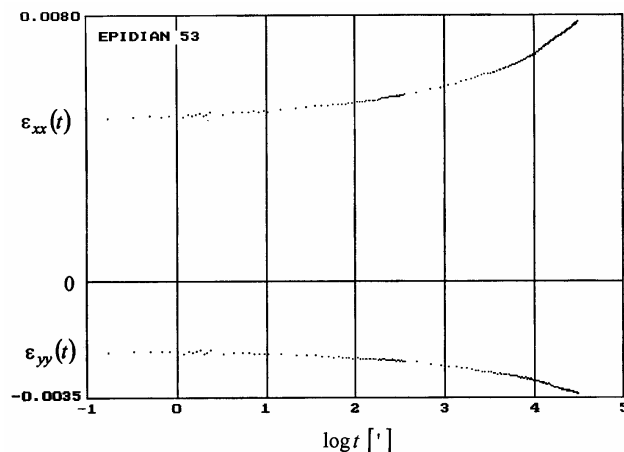
Algorytm identyfikacji stałych materiałowych modelu HWKK, bazujący na pełzaniu kierunkowym próbek prętowych, rozciąganych w kierunku osi próbki (x), jest modyfikacją algorytmu opisanego w pracy [2]. Stałe sprężystości wyznacza się klasycznie, na podstawie początkowych wartości odkształceń kierunkowych, po przyłożeniu pełnego obciążenia. Przebiegi czasowe odkształceń kierunkowych wygładza się metodą uśredniania wartości dyskretnych na krótkich odcinkach czasowych. Stałe lepkosprężystości, opisujące pełzanie krótkotrwałe, dobiera się z warunku najlepszego dopasowania symulowanych odkształceń kierunkowych w zbiorze punktów kolokacji, wybranych równomiernie w skali półlogarytmicznej. Następnie, w analogiczny sposób wyznacza się stałe lepkosprężystości opisujące pełzanie długotrwałe.

Wymienione etapy algorytmu identyfikacji stałych materiałowych podano dla żywicy epoksydowej na rysunkach 2-4. Podobne wykresy otrzymuje się dla żywicy poliestrowej.



Rys. 2. Eksperymentalne przebiegi odkształceń kierunkowych przy pełzaniu Epidianu 53 (skala naturalna)

Fig. 2. Experimental time histories of the directional strains, for creep of the Epidian 53 epoxy samples (a natural scale)

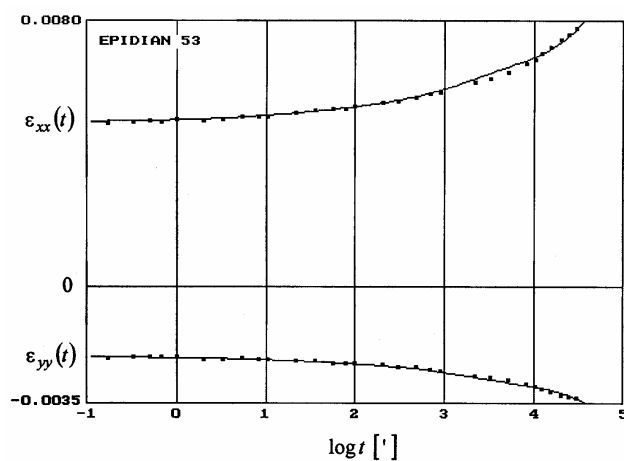


Rys. 3. Eksperymentalne przebiegi odkształceń kierunkowych przy pełzaniu żywicy epoksydowej Epidian 53, po wstępnej obróbce wygładzającej (skala półlogarytmiczna)

Fig. 3. Experimental time histories of the directional strains, for creep of the Epidian 53 epoxy samples, after smooth preprocessing (a semi-logarithmic scale)

Badania pełzania żywic przeprowadzono w warunkach izotermicznych, w temperaturze 18°C. Wyniki identyfikacji stałych materiałowych żywicy epoksydowej Epidian 53 oraz poliestrowej Polimal 109 zestawiono w tabeli 1.

Walidację modelu HWKK przeprowadzono dla obydwu materiałów polimerowych i wybranych programów obciążenia pulsującego (na przemian obciążenie stałe i odciążenie). Testy walidacyjne potwierdziły przydatność i wysoką dokładność modelu HWKK do opisu przebiegów odkształceń lepkosprężystych żywic, przy spełnieniu warunków pełzania pierwszorzędowego.



Rys. 4. Symulacja odkształceń kierunkowych w przedziałach SLC i LLC dla żywicy epoksydowej Epidian 53 (krzywe symulowane na tle wartości eksperymentalnych w punktach kolokacji)

Fig. 4. Simulation of the directional strains in the SLC and LLC intervals, for the Epidian 53 epoxy (the simulated curves backgrounded by experimental values in the collocation points)

TABELA 1. Stałe materiałowe opisujące model HWKK dla Epidianu 53 oraz Polimalu 109

TABLE 1. Material constants describing the HWKK model, for epoxy (Epidian 53) and polyester (Polimal 109)

Stała materiałowa	Epidian 53	Polimal 109
E , GPa	3,14	4,28
ν	0,418	0,363
ω_{x1}	0,307	0,784
ω_{y1}	0,348	0,913
τ_W , h	2	1
τ_{K1} , h	30	30
ω_{x2}	1,17	1,09
ω_{y2}	1,12	1,75
τ_{K2} , h	1900	1600

PODSUMOWANIE

Proponowany w niniejszej pracy model reologiczny HWKK dla żywic przeszedł pozytywnie testy walidacyjne, przeprowadzone dla wybranych programów obciążenia. W modelu tym odwzorowano odkształcenia natychmiastowe (element H), odkształcenia krótkotrwałe (elementy W, K) oraz odkształcenia długotrwałe (element K). Model HWKK, opisany przez 2 stałe sprężystości oraz 7 stałych lepkosprężystości, jest zgodny z naturą lepkosprężystego zachowania się polimerów [6].

Z matematycznego punktu widzenia, zaletą proponowanego modelu jest możliwość analitycznego obliczenia transformat Laplace'a funkcji tworzących, a następnie wykorzystania ich w modelowaniu polime-

rowych kompozytów włóknistych w zakresie lepkosprężystym metodą analogii sprężystej-lepkosprężystej [7].

LITERATURA

- [1] Skrzypek J., *Plastyczność i pełzanie, Teoria, zastosowania, zadania*, PWN, Warszawa 1986.
- [2] Kłasztorny M., Wilczyński A.P., Witemberg-Perzyk D., A rheological model of polymeric materials and identification of its parameters, *J. Theoretical Applied Mechanics (PTMTS)* 2001, 39, 1, 13-32.
- [3] Wilczyński A.P., The fractional exponential function as a master function for mechanical behaviour of plastics, *Proc. 36th ANTEC Conf.* 1978, 220-221.
- [4] Wilczyński A.P., Kłasztorny M., Determination of complex compliances of fibrous polymeric composites, *J. Composite Materials* 2000, 34, 1, 1-27.
- [5] Rabotnov J.N., *Elements of viscoelastic mechanics of solids (in Russian)*, Nauka Press, Moscow 1977.
- [6] Ferry J.D., *Viscoelastic properties of polymers*, John Wiley & Sons, Inc., New York 1970.
- [7] Kłasztorny M., Wilczyński A.P., Constitutive equations of viscoelasticity and estimation of viscoelastic parameters of unidirectional fibrous polymeric composites, *J. Composite Materials* 2000, 34, 19, 1624-1639.

Recenzent
Andrzej Bochenek