

单向应力条件下松弛时间率相关的非线性粘弹性本构模型*

陈建康^{1**} 黄筑平² 楚海建¹ 白树林²

(¹ 扬州大学水利与建筑工程学院 扬州 225009)(² 北京大学力学与工程科学系 北京 100871)

摘 要 基于单向拉伸实验研究和内变量理论,提出了一种新的简单的一维非线性粘弹性本构关系.对两种粘弹性材料,即高密度聚乙烯和聚丙烯进行了不同加载速率作用下的拉伸实验研究,实验结果表明,两种材料的应力应变关系与加载速率相关;对材料的应力应变实验数据进行拟合发现,材料的松弛时间具有很强的应变率相关性,当应变率发生数量级变化时,材料的松弛时间也发生数量级的变化.采用内变量理论,导出了在单轴应力条件下松弛时间率相关的非线性粘弹性本构关系的迭代形式,并给出其收敛条件.当采取一次迭代形式时,本构关系退化为松弛时间率相关的 Maxwell 模型.数值拟合的结果表明,一次迭代形式的本构关系就可以很好地拟合和预测实验结果.

关键词 聚丙烯, 高密度聚乙烯, 应变率, 本构关系, 非线性粘弹性, 松弛时间

近年来,许多学者对高聚物材料非线性粘弹性本构关系进行了较为细致的研究,例如,在分子网络理论方面, Drozdov^[1], Tanaka, Edwards^[2] 提出了瞬态网络模型;陈晓红^[3] 利用模糊概率论、统计力学和热力学对高聚物的粘弹塑性行为进行了统一描述,构成了一套模糊随机分子网络力学体系,为研究高聚物力学行为提供了一种新的研究途径;黄筑平,陈建康和王文标^[4] 从固体高聚物的分子网络理论出发,在热力学的框架下建议了一种基于内变量理论的非线性粘弹材料本构关系,并讨论了温度变化对松弛时间的影响.此外, Drozdov 等分析了处于玻璃态下的高聚物材料的粘弹性和粘塑性问题^[5,6];朱兆祥,王礼立等提出了描述非线性粘弹性材料本构关系的 ZWT 模型^[7];邓伟、杨挺青采用内变量理论通过引入耗散势给出了一种新的线性粘弹性本构方程^[8],等等.这些工作大大地丰富了高分子材料力学及热学性能的研究内容.

现代工程塑料往往是通过将高分子材料与其它组份材料复合来获得的,这些材料的宏观力学性质涉及到基体材料、分散相材料、以及界面分子结构的力学性质,也涉及到材料中的微损伤的萌生与演化.如果高分子基体材料本构关系的形式复杂,势必给材料的改性机理的定量的理论分析带来很大的困难.因此,需要研究待定参数少、形式简单、能够反映高分子材料主要力学特征的粘

弹性本构关系.

本文选取得到广泛应用的粘弹性工程塑料——高密度聚乙烯(HDPE)和聚丙烯(PP)为研究对象,进行了不同加载速率下的单向拉伸实验,发现不仅材料的应力应变曲线与应变率相关,而且松弛时间也具有较强的应变率相关性,当应变率发生数量级变化时,材料的松弛时间也发生数量级的变化.为研究这一现象的机理,作者从内变量理论出发,在单向拉伸和小应变的条件下,导出了具有迭代形式的非线性粘弹性本构关系的表达式,并且给出了迭代格式的收敛条件.当取一次迭代格式时本构模型就是松弛时间率相关的非线性 Maxwell 模型,该模型只有 3 个待定参数,形式简单而实用.采用该模型可以对未参与数值拟合的实验曲线进行很好的预测.

1 HDPE 和 PP 的单向拉伸实验及实验数据分析

按照国际标准将 PP 和 HDPE 用 SZ-160/80NB 型塑料注射成型机打制成 ASTM D638M 型试件,其平均尺寸为 50 mm × 10 mm × 4 mm.拉伸试验在 Instron 8501 型材料试验机上进行. PP 的实验温度为 5℃, HDPE 的实验温度为 18℃. PP 和 HDPE 在不同应变率条件下的应力应变实验结果绘于图 1 和图 2.

对于非线性的应力应变曲线,通常可以选取

* 2002-08-06 收稿, 2002-11-20 修稿;国家自然科学基金(基金号 10172074;10032010)资助项目; ** 通讯联系人

以下几种本构关系进行描述:1)非线性弹性;2)弹塑性;3)粘弹性;4)粘弹塑性.究竟选取何种本构模型尚需进行具体分析.图 1 和图 2 所给出的 PP 和 HDPE 的应力应变曲线存在明显的率相关性(当应变率增加时,应力应变关系曲线上抬),而非线性弹性材料和弹塑性材料一般不具有明显的率相关效应,因而不宜采用非线性弹性和弹塑性本构关系;粘弹塑性材料虽然具有率相关性,但在单向拉伸条件下其应力应变曲线一般都有明显的屈服点,而图 1 和图 2 所示的实验曲线没有明显的屈服点,因而也不宜采用粘弹塑性本构关系.事实上,PP 和 HDPE 的玻璃态转变温度一般分别在 -3℃ 以下和 -68℃ 以下,而熔点一般又都在 135℃ 以上^[9],故在本课题拉伸实验温度条件下 PP 和 HDPE 均处于由玻璃态向高弹态转变的粘弹态,因此应该选取粘弹性本构模型来描述材料的应力应变关系.

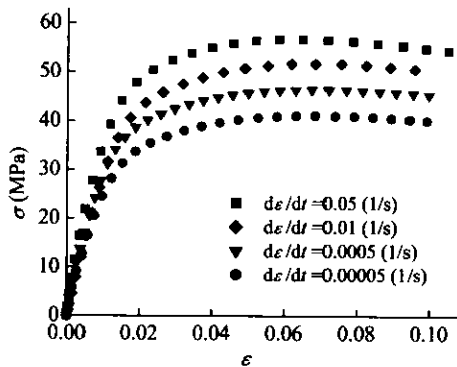


Fig. 1 The tensile tests of PP at different strain rate

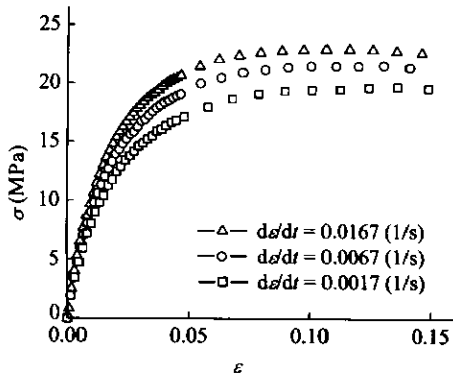


Fig. 2 The tensile tests of HDPE at different strain rate

笔者曾采用含两个松弛时间的四参数流体模型对 HDPE 的拉伸实验结果进行数值拟合^[10],结果发现这两个松弛时间具有两个特点:1)两个松

弛时间均随应变率的变化而变化;2) 在同一加载速率条件下,两个松弛时间总是相等.前一个特点说明材料的松弛时间并不为常数;后一个特点说明材料的本构关系可以用 Maxwell 模型来描述.因此,在以下的研究中我们近似地假定松弛时间是应变率的函数,并采用松弛时间率相关的 Maxwell 模型对图 1 和图 2 的实验结果进行数值拟合,其数学表达式为:

σ = ∫_{-∞}^t E_0 exp[-t - τ / θ(ε)] ε dτ (1)

式中, E_0 和 θ 分别表示初始弹性模量和松弛时间.需要说明的是,由于在(1)式中松弛时间并不是常数,而是假定为应变率的函数,故(1)式所给出的 Maxwell 模型已经不是线性粘弹性本构模型,而是非线性粘弹性本构模型,所以称其为非线性 Maxwell 模型.

根据图 1 和图 2 的实验结果,笔者在应力为 5 MPa 范围内对材料的初始模量作平均计算,得到 HDPE 的平均初始模量为 1.1 GPa,PP 的平均初始模量为 4.2 GPa.将初始模量值代入(1)式,对实验结果进行拟合,拟合结果绘于图 3 和图 4.在图 3 和图 4 中,离散符号表示实验数据,曲线表示数值拟合结果.从图上可以看出,拟合曲线与实验数据十分接近,说明(1)式所给出的本构关系具有合理性.

由数据拟合得到的松弛时间列于表 1 和表 2.

Table 1 Relaxation time of PP at different strain rate

Strain rate (1/s)	5.00E-05	5.00E-04	1.00E-02	5.00E-02
Relaxation time of PP(s)	190.4	21.9	1.2	0.3

Table 2 Relaxation time of HDPE at different strain rate

Strain rate (1/s)	1.67E-03	6.67E-03	1.67 E-02
Relaxation time of HDPE(s)	12.5	2.8	1.1

从表 1 和表 2 的数值结果来看,材料的松弛时间确实不为常量,而是与应变率有关,并且当应变率发生数量级的变化时,松弛时间也发生数量级变化.从松弛时间的变化规律看,随着应变率的增加,松弛时间在减少.从分子运动论观点看,可认为高分子链具有许多大小不同的运动单元,小的运动单元因其质量小而容易被较高的应变率激活而运动,这在宏观上表现为松弛时间短;较低的应变率不仅可以激活小的运动单元,而且也可以

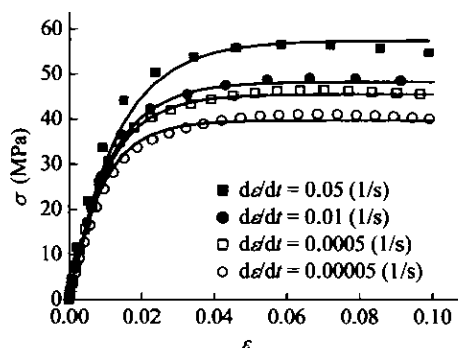


Fig. 3 The curve fitting of the tensile tests results of PP in terms of improved Maxwell model

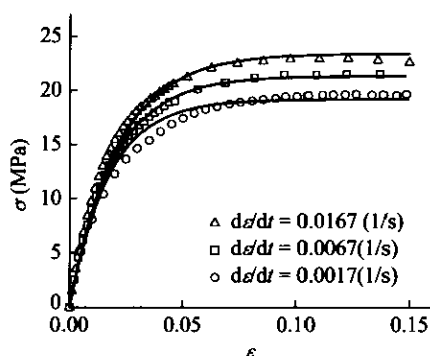


Fig. 4 The curve fitting of the tensile tests results of HDPE in terms of improved Maxwell model

激活质量较大的大运动单元,所以在宏观上表现为松弛时间长.下面,作者将从内变量理论出发对这一现象进行进一步的研究.

2 一个新的二维非线性粘弹性本构模型

以上的实验结果数值拟合研究,是在近似地认为松弛时间是应变率函数情况下进行的,下面,将从内变量理论出发,分析这一近似假定的合理性.为讨论方便,将研究范围限定于小变形条件下的单轴应力状态.如果材料的变形过程足够缓慢以至于系统的热力学过程可以近似地看成等温过程,则材料的自由能密度函数就不再显含温度.在这种情况下,可设 Helmholtz 自由能密度函数 ψ 具有如下形式:

$$\psi = \frac{1}{2} E_0 (\epsilon - \xi)^2 \quad (2)$$

式中, ξ 为内变量.材料的本构关系可写成

$$\sigma = \frac{\partial \psi}{\partial \epsilon} = E_0 (\epsilon - \xi) \quad (3)$$

通常,内变量的演化方程可假定服从 Onsager 倒易关系,即

$$\eta \dot{\xi} = - \frac{\partial \psi}{\partial \xi} = E_0 (\epsilon - \xi) \quad (4)$$

式中 η 为常数,其物理含义为材料的粘性系数.事实上, η 一般并不是常数,它随内变量的变化而改变,因此,导致松弛时间为常数的 Onsager 原理(4)式只是一个近似的关系.现对上式作推广,即认为 η 不为常数,而是内变量变化率的函数,因而内变量演化方程可写为

$$\eta(\dot{\xi}) \dot{\xi} = - \frac{\partial \psi}{\partial \xi} = E_0 (\epsilon - \xi) \quad (5)$$

显然,Onsager 原理式(4)只是上式的一个特例.为了求解上式,令

$$\gamma = \epsilon - \xi \quad (6)$$

其中, γ 的物理意义是材料的弹性应变.对上式关于时间求导得到

$$\dot{\xi} = \dot{\epsilon} - \dot{\gamma} \quad (7)$$

将上式代入(5)式得到

$$\dot{\gamma} + \frac{1}{\theta(\dot{\epsilon} - \dot{\gamma})} \dot{\gamma} = \dot{\epsilon} \quad (8)$$

其中 $\theta(\dot{\epsilon} - \dot{\gamma}) = \eta(\dot{\epsilon} - \dot{\gamma})/E_0$, 为材料的松弛时间,它只与内变量的变化率有关.仅当 η 为常数时,松弛时间才为常数.在一般情况下,即便应变率为常数,内变量变化率一般也不为常数,所以松弛时间是一个变量.当 θ 的函数形式已知时,上式是关于求解 γ 的非线性微分方程.直接给出该方程的解析解是困难的,今采用迭代方法求解.为此,对方程(8)构造如下迭代格式:

$$\dot{\gamma}_{k+1} + \frac{1}{\theta_k} \dot{\gamma}_{k+1} = \dot{\epsilon} \quad (k = 0, 1, \dots) \quad (9)$$

$$\theta_k = \theta(\dot{\epsilon} - \dot{\gamma}_k)$$

上述方程的解可以写为

$$\gamma_{k+1} = \int_{-\infty}^t \exp\left(-\frac{t-\tau}{\theta_k}\right) \dot{\epsilon}(\tau) d\tau \quad (k = 0, 1, \dots) \quad (10)$$

下面讨论迭代解的收敛性.由(10)式可以得到

$$\gamma_{k+1} - \gamma_k = \int_{-\infty}^t \left[\exp\left(-\frac{t-\tau}{\theta_k}\right) - \exp\left(-\frac{t-\tau}{\theta_{k-1}}\right) \right] \dot{\epsilon}(\tau) d\tau \quad (11)$$

令

$$g(t-\tau, \dot{\epsilon} - \dot{\gamma}) = \exp\left[-\frac{t-\tau}{\theta_k}\right]$$

由 Lagrange 中值定理可将(11)式写为

$$y_{k+1} - y_k = \int_{-\infty}^t \frac{\partial g}{\partial \dot{y}}|_{\dot{y}=\dot{y}_k} (\dot{y}_k - \dot{y}_{k-1}) \dot{\epsilon}(\tau) d\tau \in (\dot{y}_{k-1}, \dot{y}_k) \quad (12)$$

假定 g 关于 $\dot{y}$ 满足 Lipschitz 条件,即 g_k 是 $\dot{y}$ 的连续函数,并且

$$\left| \frac{\partial g}{\partial \dot{y}} \right| \leq L \quad (13a)$$

或

$$L = \left| \frac{\partial g}{\partial \dot{y}} \right|_{\max} \quad (13b)$$

式中 L 称为 Lipschitz 系数.

令

$$\rho = L|\dot{\epsilon}|_{\max} \quad (14)$$

并结合(12)和(13)式可得

$$|y_{k+1} - y_k|_{\max} \leq \rho |y_k - y_{k-1}|_{\max} \quad (15)$$

反复使用上式得到

$$|y_{k+1} - y_k|_{\max} \leq \rho |y_k - y_{k-1}|_{\max} \leq \rho^2 |y_{k-1} - y_{k-2}|_{\max} \leq \dots \leq \rho^k |y_1 - y_0|_{\max} \quad (16)$$

如果 $\rho < 1$,则当 $k \rightarrow \infty$ 时,对于任意给定的初值函数 y_0 ,都有 $|y_{k+1} - y_k| \rightarrow 0$,即迭代解收敛.在此情况下,有

$$y = y_k|_{k \rightarrow \infty} \quad (17)$$

因此,(3)式的本构关系可以改写为

$$\begin{aligned} \sigma &= E_0(\epsilon - \xi) = E_0 y \\ &= E_0 y_k|_{k \rightarrow \infty} = \lim_{k \rightarrow \infty} E_0 \int_{-\infty}^t \exp\left(-\frac{t-\tau}{\theta_{k-1}}\right) \dot{\epsilon}(\tau) d\tau \end{aligned} \quad (18)$$

由(14)式可以看出,只要应变率满足以下条件,即

$$|\dot{\epsilon}|_{\max} < L^{-1} \quad (19)$$

时,即微分方程(9)的迭代解收敛.因此(18)式就是一个新的具有迭代形式的非线性粘弹性本构关系.

如果取本构方程(18)式中的 $k = 1$,并取初值 $y_0 = 0$,此时有一级近似的本构关系:

$$\sigma = E_0 \int_{-\infty}^t \exp\left[-\frac{t-\tau}{\theta_0(\dot{\epsilon})}\right] \dot{\epsilon}(\tau) d\tau \quad (20)$$

上式与(1)式完全相同.这表明(1)式所给出的本构关系,以及由数值拟合得到松弛时间是应变率的函数,从理论上分析是将具有迭代形式的本构关系(18)式取一级近似的结果.

3 改进的 Maxwell 本构模型及松弛时间的拟合

由于取一级近似的本构模型已经可以足够准

确地描述材料的应力应变曲线,因而可选择(20)式作为单向应力状态下的本构关系.下面我们对松弛时间与应变率依赖关系进行具体拟合.假定松弛时间与应变率之间关系服从下式:

$$\theta = \theta_0(\dot{\epsilon}/\dot{\epsilon}_0)^{-\beta} \quad (21)$$

式中 $\dot{\epsilon}_0$ 是参考应变率,并且在本文中取 $\dot{\epsilon}_0 = 1$ (1/s), θ_0 和 β 是待定,其中 θ_0 是具有时间量纲的参量.此时(20)式可改写为:

$$\sigma = \int_{-\infty}^t E_0 \exp\left[-\frac{t-\tau}{\theta_0(\dot{\epsilon}/\dot{\epsilon}_0)^{-\beta}}\right] \dot{\epsilon} d\tau \quad (22)$$

(22)式可以称为改进的 Maxwell 本构模型.对于 PP 材料,根据表 1 的数值结果进行最小二乘拟合,得到待定常数 θ_0 和 β 分别为 0.0159(s)和 0.9496;类似地,对于 HDPE 材料,根据表 2 的数值结果进行拟合,得到待定常数 θ_0 和 β 和分别为 0.03(s)和 0.9146.两种材料松弛时间的拟合曲线绘于图 5 和图 6,图中的离散符号表示表 1 或表 2 给出的数值结果.

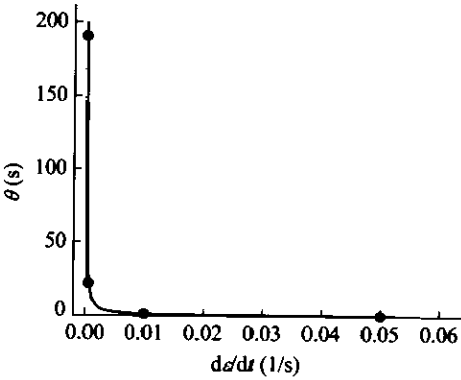


Fig. 5 The curve fitting of the relaxation time of PP in power function

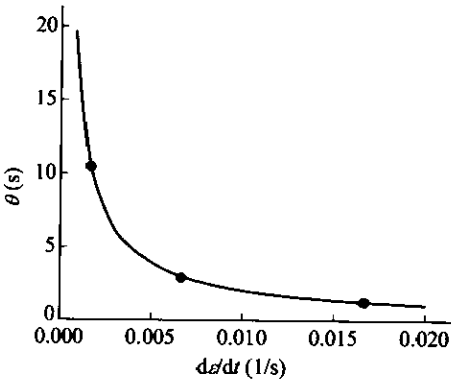


Fig. 6 The curve fitting of the relaxation time of HDPE in power function

为验证一级近似本构关系表达式(22)的适用性,我们对 PP 材料在应变率为 1×10^{-3} (1/s) 条件下进行拉伸实验,并用(22)式进行了本构关系的预测,预测曲线和实验数值符合甚好(图 7).采用(22)式对图 7 的实验结果进行数值拟合,可以直接得到 PP 材料在应变率为 1×10^{-3} (1/s) 条件下的松弛时间为 11.1(s);而通过(21)式并取 θ_0 和

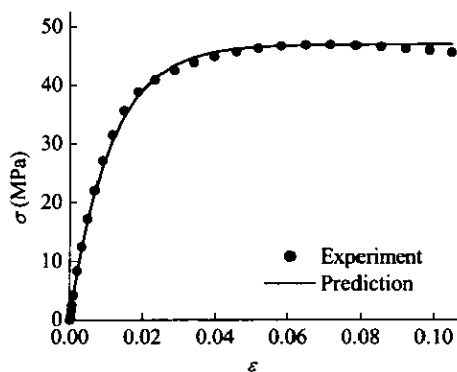


Fig. 7 Plot of theoretical prediction of stress-strain relation and tensile test results of PP at $\dot{\epsilon} = 1 \times 10^{-3}$ (1/s)

β 分别为 0.0159(s) 和 0.9496 对松弛时间进行预测,得到预测的松弛时间为 11.2(s),两者的相对误差不足 1%.这一结果说明用(21)式计算材料的松弛时间是可靠的,用(21)式作为描述率相关材料非线性粘弹性本构关系是足够精确的.

综上所述,本文通过对 HDPE 和 PP 两种材料的实验研究和相关的理论分析,得到了以下新的结果:提出了迭代形式的非线性粘弹性本构关系,给出了迭代格式的收敛条件.在取一级近似的情况下,本文所给出的非线性粘弹性本构关系表达式(22)式是 Maxwell 模型的推广,可以用它很好地描述率相关材料的应力应变关系.由于只有 3 个参数,所以形式简单便于应用;HDPE 和 PP 材料的松弛时间可以用一个参量 θ 表示,并且 θ 不是常数而是内变量变化率 $\dot{\epsilon}$ (其物理含义是粘性应变率)的函数.如果加载速率缓慢,则在一级近似的条件下, θ 可近似地看成应变率 $\dot{\epsilon}$ 的函数,如果取 θ 与 $\dot{\epsilon}$ 之间为负幂次函数关系,不仅可以较好地描述已有的实验结果,而且可以很好地对实验范围内不同应变率条件下的本构关系进行预测.

REFERENCES

- 1 Dozdov A D. *Mechanics of Viscoelastic Solids*. New York: John Wiley and Sons, 1998. 1 ~ 10
- 2 Tanaka F, Edwards S F. *Macromolecules*, 1992, 25: 1516 ~ 1523
- 3 Chen Xiaohong (陈晓红). *Science in China (中国科学)*, 1995, 25(5): 505 ~ 513
- 4 Huang Zhuping (黄筑平), Chen Jiankang (陈建康), Wang Wenbiao (王文标). *Science in China (中国科学)*, 1999, 29(10): 939 ~ 944
- 5 Dozdov A D. *Mechanics Research Communications*, 2001, 28(3): 247 ~ 254
- 6 Dozdov A D, Dorfmann A. *Mechanics Research Communications*, 2001, 28(4): 355 ~ 372
- 7 Wang Lili (王礼立), Shi Shaoqiu (施绍裘), Chen Jiangying (陈江瑛). *Journal of Ningbo University (宁波大学学报)*, 2000, 13: 141 ~ 149
- 8 Deng Wei (邓伟), Yang Tingqing (杨挺青). *Acta Mechanica Solida Sinica (固体力学学报)*, 1997, 18(1): 11 ~ 16
- 9 Gu Qingchao (顾庆超). *New Edition Chemical Table (新编化学用表)*. Nanjing (南京): Jiangsu Education Press (江苏教育出版社), 1998. 722 ~ 724
- 10 Chen Jiankang (陈建康), Huang Zhuping (黄筑平). *Microdamage Evolution and Macroscopic Constitutive Relations of Particulate—Reinforced Polymer Materials (含二相粒子流变材料的损伤理论)*. Changchun (长春): Jilin Science and Technology Press (吉林科技出版社), 2002. 30 ~ 55

NONLINEAR VISCOELASTIC CONSTITUTIVE RELATIONS BASED ON THE RATE SENSITIVE RELAXATION TIME UNDER THE CONDITION OF UNIAXIAL STRESS

CHEN Jiankang¹, HUANG Zhuping², CHU Haijian¹, BAI Shulin²

(¹ Hydraulic and Civil Engineering College, Yangzhou University, Yangzhou 225009)

(² Department of Mechanics and Engineering Science, Beijing University, Beijing 100871)

Abstract A new simple nonlinear viscoelastic constitutive model under uniaxial tension is proposed by means of experimental method and internal-variable theory. The tension tests of two viscoelastic materials, *i. e.*, polypropylene (PP) and high-density polyethylene (HDPE), are carried out at different strain rate. The experimental data shows that the relation between stress and strain depends distinctly on strain rate. The result of curve fitting for experiment data indicates that the relaxation time of the materials is rate sensitive. When strain rate changes in orders of magnitude, the value of relaxation time varies in the same order. Under the condition of uniaxial stress, a new nonlinear viscoelastic constitutive relation with iteration form is studied by adopting internal-variable theory, and the convergence condition is derived. If the degree of iteration is taken to be one, then the corresponding constitutive relation reduces to Maxwell model with rate related relaxation time. Such a nonlinear viscoelastic model can be used to fit and predict the constitutive relation of PP and HDPE perfectly.

Key words Polypropylene, High-density Polyethylene, Strain rate, Constitutive relation, Nonlinear viscoelastic, Relaxation time