

Numerieke analyse van scheurgroeigedrag in met rubber versterkte blends

Citation for published version (APA):

Duseé, S. H. (1993). *Numerieke analyse van scheurgroeigedrag in met rubber versterkte blends*. (DCT rapporten; Vol. 1993.072). Technische Universiteit Eindhoven.

Document status and date:

Gepubliceerd: 01/01/1993

Document Version:

Uitgevers PDF, ook bekend als Version of Record

Please check the document version of this publication:

- A submitted manuscript is the version of the article upon submission and before peer-review. There can be important differences between the submitted version and the official published version of record. People interested in the research are advised to contact the author for the final version of the publication, or visit the DOI to the publisher's website.
- The final author version and the galley proof are versions of the publication after peer review.
- The final published version features the final layout of the paper including the volume, issue and page numbers.

[Link to publication](#)

General rights

Copyright and moral rights for the publications made accessible in the public portal are retained by the authors and/or other copyright owners and it is a condition of accessing publications that users recognise and abide by the legal requirements associated with these rights.

- Users may download and print one copy of any publication from the public portal for the purpose of private study or research.
- You may not further distribute the material or use it for any profit-making activity or commercial gain
- You may freely distribute the URL identifying the publication in the public portal.

If the publication is distributed under the terms of Article 25fa of the Dutch Copyright Act, indicated by the "Taverne" license above, please follow below link for the End User Agreement:

www.tue.nl/taverne

Take down policy

If you believe that this document breaches copyright please contact us at:

openaccess@tue.nl

providing details and we will investigate your claim.

**Numerieke analyse van scheur-
groeigedrag in met rubber
versterkte blends**

S.H. Dusée

WFW 93.072

Eindhoven, maart 1993

Technische Universiteit Eindhoven

Faculteit Werktuigbouwkunde

Stageverslag

Samenvatting

Uit experimenteel onderzoek is gebleken dat brosse polymeren taai kunnen deformeren, indien er aan het materiaal microscopisch kleine rubber deeltjes zijn toegevoegd. Met name bij nylon blends is aangetoond dat er een bros-taai overgang plaatsvindt, afhankelijk van de volumefractie rubber deeltjes. De kritieke factor in dat proces is dan de afstand tussen de rubber deeltjes. Het doel van dit onderzoek is om te bekijken of dit fenomeen ook numeriek aan te tonen is.

Hiertoe is met behulp van een rekenprogramma een twee-dimensionaal model van een trekstaaf van een bros polymeer, met in het midden een scheur, geanalyseerd. De in het materiaal aanwezige rubber deeltjes worden gemodelleerd door middel van twee grote bollen, aan weerszijde van de scheur. De toename van de volumefractie wordt gesimuleerd door de bollen in de richting van de scheur te verplaatsen.

Uit berekeningen met verschillende scheurlengtes, en verschillende 'volumefracties' is gebleken dat een vergroting van de 'volumefractie' een taaier gedrag van het materiaal tot gevolg heeft. Met deze vorm van modellering van de volumefractie is geen scherpe bros-taai overgang gevonden, en verder numeriek onderzoek is dan ook noodzakelijk.

Inhoudsopgave

Samenvatting	3
1 Inleiding	5
2 Experimenteel onderzoek	7
3 Numeriek onderzoek	10
3.1 Het model	10
3.2 Resultaten	12
4 Conclusie	16
Literatuur	17
Bijlage 1. Model van het systeem	19
Bijlage 2. Berekening met vrije wand	20

1 Inleiding

Ondanks het feit dat een polymeer op microscopische schaal taai deformeert is het bezwijkgedrag van veel polymeren op macroscopische schaal bros. Dit komt doordat scheurpropagatie in het materiaal makkelijk plaatsvindt: er is weinig energie nodig om een scheur te doen groeien. Het streven is nu om het materiaal zo taai mogelijk te laten bezwijken.

Een manier om brosse polymeren taai te laten deformereren is het toevoegen van een tweede fase aan het materiaal in de vorm van rubber deeltjes. Er vanuit gaande dat er vrijwel geen hechting is tussen het matrix-materiaal en de rubber deeltjes is er in feite een polymeer ontstaan met zeer veel kleine gaatjes (in de orde van 10^{11} deeltjes per cm^{-3}). Na het opleggen van een belasting zullen er lokaal grote spanningsconcentraties optreden waardoor het materiaal op veel plaatsen gaat vloeien (vanwege het niet hechten van de rubber deeltjes ontstaat er aan de randen van de gaatjes een 2-D spanningstoestand zodat er vloeien kan optreden). Al deze lokale kleine deformaties moeten samen voor een taai materiaal gedrag zorgen.

Het energiebalans-criterium van Griffith zegt dat een scheur kan gaan groeien als de beschikbare energie voor scheurpropagatie groter is dan de kritische energie, nodig om een scheur te doen groeien. Zodra het materiaal lokaal op zeer veel plaatsen gaat vloeien zal er meer energie gedissipeerd worden door plastische vervorming van het materiaal, met als gevolg dat er minder energie resteert voor scheurpropagatie. Experimenteel is dit voor een aantal brosse polymeren aangetoond, maar de vraag is of dat met numerieke simulaties bevestigd kan worden.

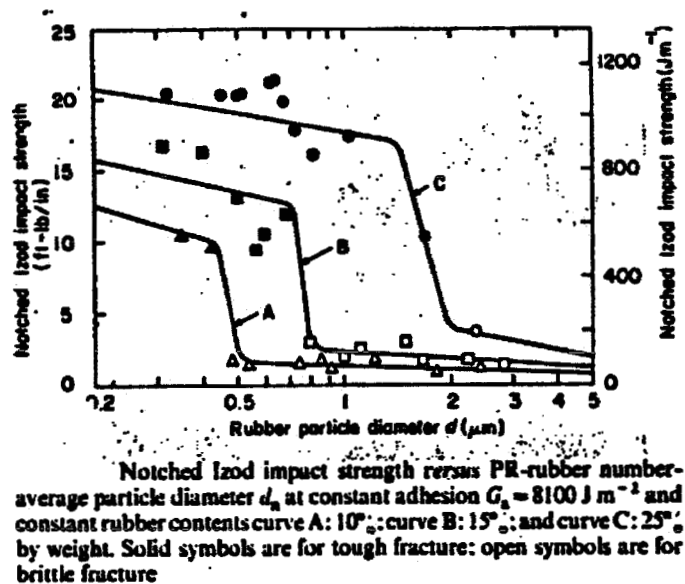
Dit rapport beschrijft een onderzoek naar de numerieke simulatie van een trekproef op een brosse kunststof blend. De trekstaaf is in het midden voorzien van een kerf. De in werkelijkheid ongeveer $1 \mu\text{m}$ grote rubber deeltjes worden gemodelleerd door twee grote bollen, aan weerszijde van de kerf. De toename van de concentratie rubber deeltjes wordt gesimuleerd door het verplaatsen van de bollen in de richting van de kerf. Door nu te

kijken naar de hoeveelheid opgeslagen energie in het materiaal (Een opgelegde vervorming \times een resulterende kracht = een vorm van energie) bij verschillende scheurlengtes, is iets te zeggen over de invloed van de concentratie (lees deeltjesafstand) op het groeien van de scheur.

2 Experimenteel onderzoek

Er is al vrij veel experimenteel onderzoek gedaan naar de invloed op het bezwijkingsgedrag van een tweede fase in de vorm van rubberdeeltjes in een macroscopisch bros deformerende matrix. Het is aangetoond dat er een bros-taai overgang optreedt vanaf een bepaalde concentratie rubber deeltjes, maar verschillende parameters zullen van invloed zijn op deze overgang, zoals de deformatiesnelheid, de temperatuur, de hechting van de deeltjes aan de matrix, de volumeconcentratie van het rubber en de deeltjesgrootte.

Wu [1] heeft onderzoek gedaan naar de invloed van de deeltjesgrootte op de bros-taai overgang, waarbij de temperatuur, de deformatiesnelheid en de hechting aan de matrix constant zijn gehouden. Met behulp van een Izod test is voor drie verschillende volumefracties aangetoond dat er een deeltjesgrootte bestaat waaronder de blends taai bezwijken. Figuur 1 (overgenomen uit [1]) geeft het resultaat van deze experimenten.



Figuur 1: Slagvastheid tegen de deeltjesgrootte

Uit de grafiek blijkt dat bij kleinere volumepercentages rubber de kritieke deeltjesgrootte ook kleiner is en vice versa. Wu heeft een relatie opgesteld tussen de kritieke

deeltjesgrootte en de volumefractie. Hierin is de parameter T_c , de kritieke afstand tussen de deeltjes waarbij het deformatiegedrag taai wordt, de enige parameter die bepalend is voor de bros-taai overgang. Deze parameter T_c is onafhankelijk van de volumefractie en van de deeltjesgrootte en materiaalspecifiek. De kritieke deeltjesgrootte is als volgt gegeven:

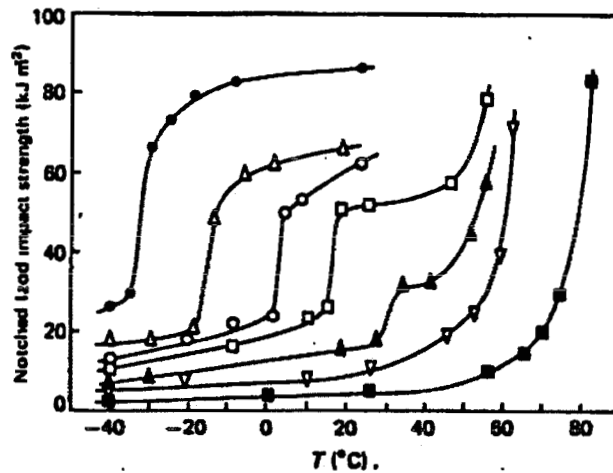
$$d_c = \frac{T_c}{\left(\frac{\pi}{6\phi_r}\right)^{1/3} - 1} \quad (1)$$

d_c = kritieke deeltjesgrootte

T_c = kritieke deeltjesafstand

ϕ_r = volumefractie rubber

Borgreve *et al.* [2] hebben een soortgelijk onderzoek gedaan, met daarin als extra parameter de temperatuurafhankelijkheid. Een bros deformerend polymeer zal zich taai gedragen vlakbij en boven het glaspunt maar door het inbrengen van rubber deeltjes is deze bros-taai overgang naar een lagere temperatuur te verplaatsen, zonder dat hierbij de glastemperatuur van de blends wordt beïnvloed. Hierbij is geconstateerd dat een grotere volumefractie bij gelijkblijvende deeltjesgrootte (zie figuur 2 (overgenomen uit [2])) en kleinere rubber deeltjes bij gelijkblijvende volumefractie beide de bros-taai overgangstemperatuur naar beneden brengen. Zij sluiten aan bij de relatie, die is opgesteld door Wu (1), met die uitbreiding dat de kritieke deeltjesafstand temperatuurafhankelijk is. In het later ontwikkelde percolatie-model [3] wordt de ruimte tussen de rubber deeltjes de ligamentdikte genoemd, en de bros-taai overgang zal dus plaatsvinden bij de kritieke matrix-ligamentdikte. Gesteld wordt dat de rubber deeltjes tijdens het deformatieproces los zullen laten van de matrix ("caviteren") en derhalve de vlakke rek toestand aan de rand van de deeltjes over zal gaan in een vlakspanningstoestand, wat zal leiden tot afschuiving in de ligamentjes. "Caviteren" is geen vereiste, daar de vlakspanningstoestand benaderd zal worden als de modulus van het rubber voldoende lager is dan de modulus van de matrix. Omdat monodisperse sys-



Notched Izod impact strength versus temperature of nylon-6 and blends A. Particle size and interfacial adhesion are constant. Rubber concentration (vol %): ■, 0; ▽, 2.6; ▲, 6.4; □, 10.5; ○, 13.0; △, 19.6; ●, 26.1

Figuur 2: Slagvastheid tegen de temperatuur

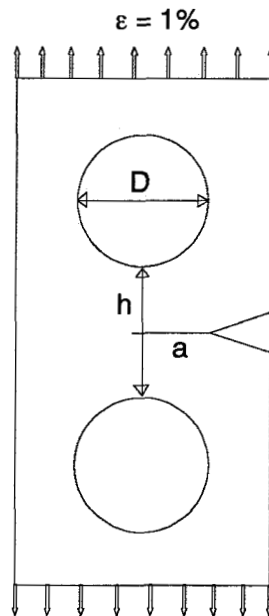
temen niet voorkomen, zal er een ligamentdikte-verdeling bestaan, waarbij de ligamentjes, die dunner zijn dan de kritieke dikte, het eerst zullen gaan vervormen. Als de dikkere ligamentjes nu omgeven zijn door voldoende dunne ligamentjes kan ook een dik ligamentje afschuiven. Om een taai deformatie-gedrag te verkrijgen zullen er dus voldoende dunne ligamentjes met elkaar verbonden moeten zijn. Dit is een tweede eis naast de eis dat de gemiddelde ligamentdikte dunner moet zijn dan de kritieke ligamentdikte (1). Het is gebleken dat wanneer aan de percolatie-drempel is voldaan (kritieke ligamentdikte), ook het pad waarlangs kan worden afgeschoven steeds sneller wordt bereikt. Met andere woorden deze twee grenzen liggen heel dicht bij elkaar.

3 Numeriek onderzoek

Om de experimentele resultaten numeriek te toetsen is een vereenvoudigd model opgesteld. Met behulp van het programma MENTAT is een mesh van het model gemaakt en vervolgens zijn met MARC, een eindige elementen rekenpakket [4], berekeningen uitgevoerd aan dit model.

3.1 Het model

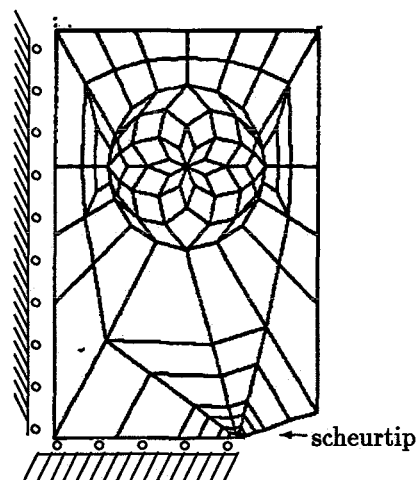
De mesh beschrijft een trekstaaf met in één richting opgelegde verplaatsing. In de trekstaaf bevinden zich twee grote bollen, die de grote hoeveelheid rubberdeeltjes in de matrix modelleren. Aan de rand, tussen de twee bollen in bevindt zich een kerf, van waaruit tijdens de berekeningen een scheur in het materiaal opgelegd zal worden, met een grotere scheurlengte per berekening. Door per berekening de afstand van de bollen tot de scheur te wijzigen wordt de deeltjesafstand in de matrix gesimuleerd. De bollen dicht bij de kerf brengen simuleert een kleinere deeltjesafstand. Zie figuur 3 en bijlage 1 voor het model.



Figuur 3: Het model van het systeem

Om nu én het geval te simuleren dat de rubber deeltjes losgelaten hebben van de matrix, én de situatie dat dit niet is gebeurd is er gerekend met een mesh met gaten en een mesh waarbij de gaten zijn opgevuld met rubber. Hierbij wordt verondersteld dat het model met gaten het meest ideale is (vlakspanningstoestand aan de rand van de gaten) en ook het meest waarschijnlijke. Omdat het hier een symmetrisch probleem betreft is het voldoende om met één helft van de mesh te rekenen (zie figuur 4).

Aan de bovenrand van de mesh is een rek van 1% opgelegd, de zijwand van de kerf is vrij



Figuur 4: De mesh

beweegbaar en de onderrand zit aan de vaste wereld vast. De zijwand tegenover de kerf zit aan de vaste wereld vast wat wil zeggen dat er eigenlijk met een systeem met vier bollen is gerekend (symmetrie). Door de lengte waarmee de onderrand vast zit aan de vaste wereld is de scheurlengte voor elke berekening in te stellen.

De resultaten van de MARC-berekeningen (deformaties, krachten en spanningen) staan in een output-file. Door de krachten op de bovenrand bij elkaar op te tellen en deze te vermenigvuldigen met de opgelegde verplaatsing ontstaat er een maat voor de aan het materiaal toegevoerde energie.

Het energiebalanscriterium van Griffith (2) zegt dat een scheur kan groeien als de aan het materiaal toegevoerde energie minus de opgeslagen inwendige energie per toename van eenheid scheurlengte groter of gelijk is aan de energie om nieuw oppervlak te creëren.

$$G = \frac{dU_e - dU_i}{da} \geq G_c \quad (2)$$

G = Energy release rate

U_e = Arbeid door externe belastingen

U_i = Inwendige (elastische) energie

a = scheurlengte

Door nu de aan het materiaal toegevoerde energie bij verschillende scheurlengtes te berekenen, is het verschil tussen deze waarden te bepalen, die een maat vormen voor de hoeveelheid vrijgekomen energie bij scheurgroei. Als deze vrijgekomen energie minder wordt naarmate de bol of het gat dichterbij de scheur wordt geplaatst, geeft dat aan dat verplaatsing van de bol of het gat een grotere energiedissipatie als gevolg hebben (dus een taaier deformatiegedrag). Dit betekent minder beschikbare energie voor scheurpropagatie met als gevolg een langzamer scheurgroeigedrag.

3.2 Resultaten

Berekeningen met een gat

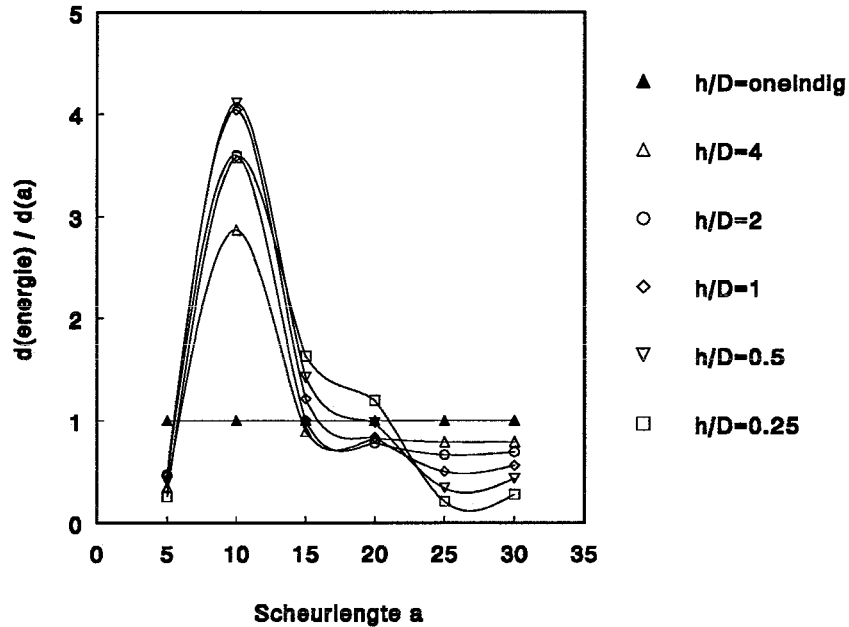
De meeste berekeningen zijn uitgevoerd m.b.v. een mesh met een gat, omdat dit de meest waarschijnlijke benadering is van de werkelijkheid (De rubber deeltjes zullen waarschijnlijk losgelaten hebben van de matrix bij het begin van de vervorming). In tabel 1 staat de aan het materiaal toegevoerde energie bij verschillende scheurlengtes en verschillende gat-scheur afstanden. In het eerste geval is de zijwand tegenover de kerf aan de vaste wereld bevestigd. Het verschil tussen twee opeenvolgende energiewaarden in een kolom is een

	$h/D = \infty$	$h/D = 4$	$h/D = 2$	$h/D = 1$	$h/D = 0.5$	$h/D = 0.25$
$a = 0$	27599.980	24105.762	24185.928	24390.288	24594.036	24762.510
$a = 5$	26077.200	23573.604	23464.446	23673.150	23966.484	24367.998
$a = 10$	25573.806	22130.448	21653.850	21640.680	21900.180	22565.844
$a = 15$	23377.146	20169.762	19463.718	18977.100	18777.498	18988.338
$a = 20$	20748.684	17994.192	17404.710	16780.356	16204.230	15841.362
$a = 25$	17866.278	15710.022	15478.158	15325.122	15220.224	15230.130
$a = 30$	14784.936	13266.228	13331.856	13592.712	13874.586	14361.780

Tabel 1: Hoeveelheid opgeslagen energie in het materiaal

maat voor de hoeveelheid vrijgekomen energie bij scheurgroei. Deze waarden zijn bepaald voor een aantal h/D 's, maar ook in het geval er geen gat in het materiaal aanwezig is. Het normeren van de energietoenames op de energietoename in het gatloze geval ($h/D = \infty$) kan de invloed van het gat en het verplaatsen ervan op de hoeveelheid vrijgekomen energie zichtbaar maken. Figuur 5 geeft deze invloed weer.

Uit de grafiek van figuur 5 blijkt dat de hoeveelheid beschikbare energie voor scheurgroei sterk toeneemt ten opzichte van het gatloze geval, zodra de scheurtip ter hoogte van de rand van het gat is gekomen ($a = 10$). Een verklaring hiervoor zou kunnen zijn dat de spanningsconcentraties aan de rand van het gat een negatieve invloed hebben op scheurpropagatie, d.w.z. dat er gerelateerd aan het gatloze geval veel meer energie beschikbaar is voor scheurgroei. Zodra echter de scheur onder het gat verdwijnt (vanaf $a = 10$) vindt er een sterke afname plaats van de beschikbare energie voor scheurpropagatie ten opzichte van de trekstaaf zonder gat, en de beschikbare hoeveelheid energie wordt zelfs minder dan de referentie. Dit effect treedt het laatst maar ook het sterkst op als h/D het kleinst is oftewel het gat het dichtst bij de scheur ligt. Dit impliceert volgens de gestelde aannames dat een grotere concentratie rubber deeltjes een taaier gedrag als gevolg heeft. In bijlage



Figuur 5: Vrijgekomen energie bij scheurverandering (genormeerd op $h/D = \infty$)

2 staan de resultaten voor het geval de zijwand tegenover de kerf is vrijgelaten.

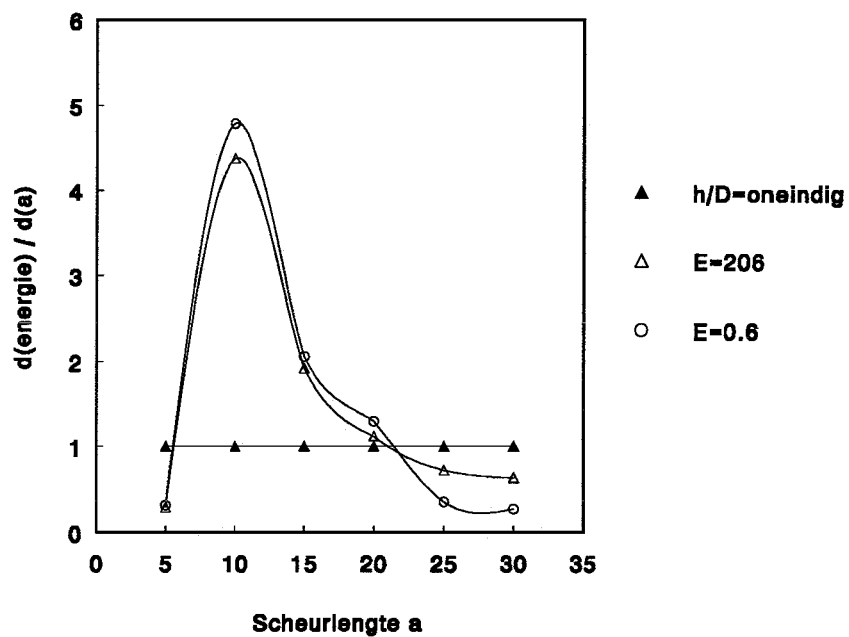
Berekeningen met een rubber bol

In tabel 2 staan de resultaten voor de berekeningen met een rubber bol. Er is voor de rubber bol slechts met één waarde van h/D gerekend en met twee verschillende waarden voor de E-modulus en de dwarscontractiecoëfficiënt. Deze waarden zijn op dezelfde manier genormeerd op de waarde van $h/D = \infty$ en in een grafiek uitgezet. Zie figuur 6 voor het resultaat.

Uit deze figuur blijkt dat de trend voor trekstaven met een rubber bol precies dezelfde is als voor proefstaafjes met een gat. Dit was ook wel te verwachten, omdat er is gerekend met vlakspanningselementen terwijl er aan de rand van de bol toch een triaxiale spanningstoestand heerst. Waarschijnlijk geeft de figuur toch een vrij goede benadering omdat de modulus van de rubber bol veel lager is dan die van de matrix en dus zo een vlakspanningstoestand benaderd wordt.

	$h/D = \infty$	$h/D = 0.5$	$h/D = 0.5$
		$E = 206$	$E = 0.6$
		$\mu = 0.47$	$\mu = 0.49995$
$a = 0$	27599.980	25152.366	24561.138
$a = 5$	66077.200	24704.952	24079.482
$a = 10$	25573.806	22501.176	21669.864
$a = 15$	23377.146	18282.966	17148.360
$a = 20$	20748.684	15347.981	13745.183
$a = 25$	17866.278	13270.412	12716.056
$a = 30$	14784.936	11325.332	11879.234

Tabel 2: Hoeveelheid opgeslagen energie in het materiaal



Figuur 6: Vrijgekomen energie bij scheurverandering (genormeerd op $h/D = \infty$)

4 Conclusie

Uit dit onderzoek is gebleken dat ook numeriek aan te tonen is dat verhoging van de concentratie rubber deeltjes in een brosse matrix een taaier deformatiegedrag als gevolg zal hebben, wat dus een positieve invloed zal hebben op scheurpropagatie. Hierbij dient de kanttekening gemaakt te worden dat er gerekend is met zeer grote stappen in de scheurlengte, terwijl Griffith toepasbaar is op kleine scheurlengte-toename's. De resultaten gelden natuurlijk alleen als de aanname dat het model van een grote bol voor zeer veel kleine rubber deeltjes juist is, maar er zijn vooralsnog geen redenen om aan te nemen dat dat niet het geval is. Specifiek uit het onderzoek is gebleken dat de hoeveelheid energie die vrij komt bij twee opeenvolgende scheurlengtes kleiner is in het geval van een gat of een rubber bol in de matrix dan in het geval van een gatloze matrix. Er is zodoende meer energie gedissipeerd tijdens het groeien van de scheur wat wil zeggen dat er in een groter deel van de matrix afschuiving is opgetreden.

Aanbevelingen voor verder onderzoek

Als aanbeveling voor verder onderzoek kan genoemd worden het rekenen aan een systeem met meerdere bollen, aan systemen met vlakke rek elementen, en aan systemen met gevarieerde bol/gat-diameter.

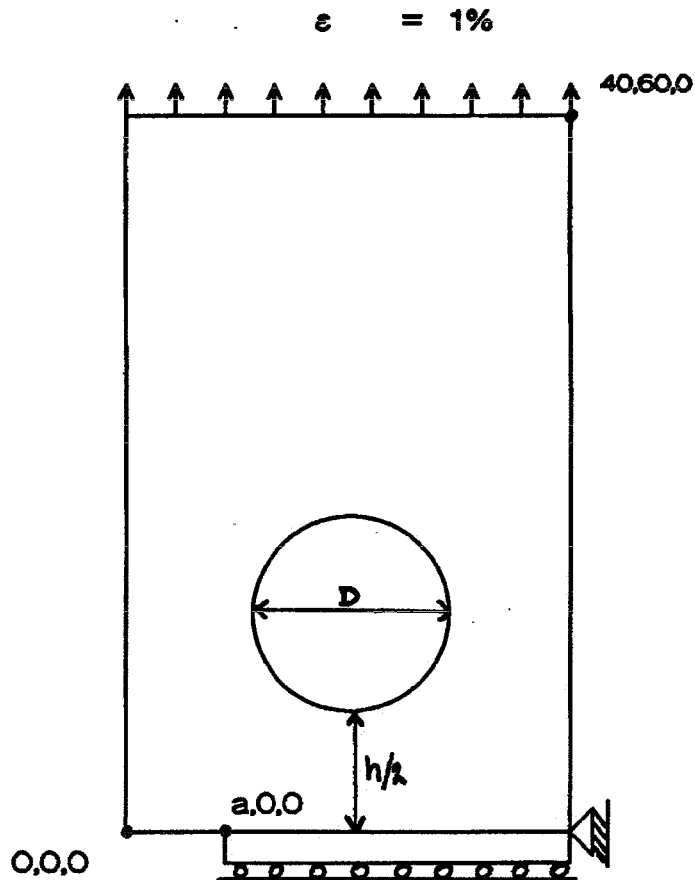
Bovendien valt te denken aan 3D-modellen met daarin plastische vervormingen.

Referenties

- [1] S Wu. Phase structure and adhesion in polymer blends: A criterion for rubber toughening. *Polymer*, 26:1855–1863, November 1985.
- [2] R. J. M. Borgreve, R. J. Gaymans, J. Schuijjer, and J. F. Ingen Housz. Brittle-tough transition in nylon-rubber blends: Effect of rubber concentration and particle size. *Polymer*, 28:1489–1496, August 1987.
- [3] A Margolina and S Wu. Percolation model for brittle-tough transition in nylon/rubber blends. *Polymer*, 29:2170–2173, December 1988.
- [4] Handleiding MARC en MENTAT.

Bijlagen

Bijlage 1. Model van het systeem



Figuur 7: Volledig model van het systeem (met vrije zijwand)

ϵ = opgelegde rek (= 1%)

h = hoogte tussen de twee gaten/bollen (= variabel)

a = scheurlengte (= variabel)

E-modulus (matrix) = 2300

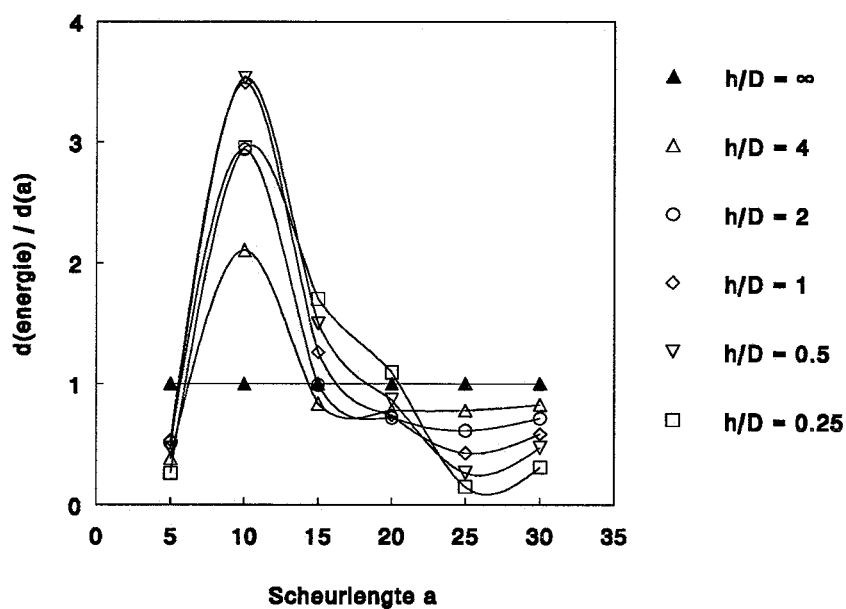
μ (dwarscontractiecoëfficiënt matrix) = 0.4

Elementen: nr. 26 = vierhoekig kwadratisch element

Bijlage 2. Berekening met vrije wand

	$h/D = \infty$	$h/D = 4$	$h/D = 2$	$h/D = 1$	$h/D = 0.5$	$h/D = 0.25$
$a = 0$	27599.980	24050.000	24111.900	24353.412	24557.076	24680.820
$a = 5$	26058.060	23459.148	23321.982	23531.580	23832.636	24273.750
$a = 10$	25302.822	21869.484	21103.392	20895.018	21167.610	22043.550
$a = 15$	22427.244	19470.690	18252.030	17275.764	16865.862	17158.368
$a = 20$	18774.450	16619.352	15631.167	14580.754	13701.155	13165.796
$a = 25$	14849.714	13561.892	13219.438	12896.688	12657.666	12570.952
$a = 30$	11083.652	10451.245	10535.600	10691.768	10877.343	11404.259

Tabel 3: Hoeveelheid opgeslagen energie in het materiaal



Figuur 8: Vrijgekomen energie bij scheurverandering (genormeerd op $h/D = \infty$)