

Identifiabilité paramétrique et lois de comportement: application à un polymère semi-cristallin

S. ANDRE^a, Y. MESHAKA^b, P. DELOBELLE^c, L. FARGE^a, C. CUNAT^a

a. LEMTA, CNRS UMR7563, Nancy Université, 2 rue de la forêt de Haye, BP160, 54504 VANDOEUVRE-Lès-NANCY Cedex.

b. LMA, Femto-ST, UFR Sciences, 24 chemin de l'Epitaphe, 25000, BESANÇON, France

c. IJL, CNRS UMR7198, Nancy-University, Parc de Saurupt - CS 14234, 54042 NANCY CEDEX

Résumé :

Nous présentons l'intérêt de recourir à des modèles réduits de loi de comportement dans une perspective de métrologie des paramètres constitutifs. L'application concerne un polymère semi-cristallin. Nous montrons notamment comment les outils de l'analyse de sensibilité peuvent conduire à valider l'identifiabilité des paramètres. Une illustration sera donnée concernant la mesure du module d'élasticité instantanée au niveau de la macroéchelle (essai de traction), microéchelle spatiale (nanoindentation sous chargement modulé) et temporelle (technique d'ultrasons).

Abstract :

The usefulness of adopting reduced models for the mechanical behavior of materials is presented in view of the metrological purpose of identifying constitutive parameters. The application is related to Semi Crystalline polymers. We show how the tools of sensitivity analysis can help to assess parameters identifiability. An illustration will be given which is related to the measurement of the true elastic (instantaneous) modulus at the macroscale (tensile test), spatial microscale (nano-indentation with modulated load) and temporal microscale (Ultrasonic technique).

Mots clefs : identification inverse, métrologie de propriétés mécaniques, module d'Young instantané, comportement de traction, polymères semi-cristallins.

1 Introduction

Un scientifique rhéologue, spécialiste du comportement complexe de certains matériaux solides avec leur cortège de phénomènes répertoriés selon la taxonomie usuelle (élasto-visco-plasticité, phénomènes de durcissement, d'endommagement...) peut tout à fait s'étonner que les pratiques du monde industriel en matière de caractérisation* restent basées (ou en tout cas encadrées) par des normes à pauvre contenu scientifique. Il en est ainsi en tout cas de la mesure du module d'élasticité des polymères dont les normes en vigueur (ISO ou ASTM) recommandent toujours de travailler sur des "portions" linéaires de courbes Force-Déplacement ou contrainte-déformation nominales, ce qui revient à peu près au même. Or il est admis qu'un polymère se distingue aux faibles déformations par un régime élastique finalement peu séparable de cette manière du régime visqueux. Ces normes apparaissent finalement comme des pis-aller permettant d'encadrer un protocole de mesure d'une propriété apparente (conventionnelle) du matériau (et en aucun cas intrinsèque). Ne peut-on pas mieux faire? Cette question est légitime parce que

* Par caractérisation, nous entendons concrètement la métrologie de propriétés intrinsèques matériau ou de paramètres du modèle de comportement retenu. Le critère de pertinence d'un modèle (vis-à-vis d'un autre modèle ou de la réalité physique, si tant est qu'on puisse l'approcher) sera précisément jugé sur la distance maintenue entre ces deux objets.

- o d'une part, des progrès ont été faits en matière de mesure de contrainte-déformation vraies (techniques vidéo-extensométriques) qui permettent de travailler sur des observables conformes à l'écriture mathématique des lois de comportement et
- o d'autre part, les chercheurs s'échinent à mettre au point des lois de comportement plus "sophistiquées" plus à même de rendre compte des comportements matériau réellement observés.

Malheureusement, dans ce dernier cas, force est de reconnaître que ces derniers tombent généralement dans un travers fort compréhensible (À vouloir trop bien faire...) qui compromet au final l'atteinte de l'objectif lui-même. Ce travers consiste à produire des lois de comportement sur-paramétrées c'est-à-dire disposant de degrés de liberté supérieurs au strict nécessaire pour rendre compte du comportement matériau tel qu'observé par l'outil de mesure (principe de parcimonie, cher à Einstein notamment). Qui plus est, les estimations des paramètres de ces lois sont encore trop souvent pratiquées sans aucune analyse d'identifiabilité préalable ce qui est regrettable parce que cela pourrait tout de suite donner une idée précise de la réelle pertinence du modèle proposé et de la confiance que l'on peut avoir dans les valeurs numériques proposées. L'objectif de cette communication est de rappeler que des outils simples existent qui permettent, pour une expérimentation donnée, de pallier à ces insuffisances. La discussion sera appuyée sur l'exemple de la caractérisation d'un polymère semi-cristallin par essai de traction et en particulier de la problématique de mesure du coefficient d'élasticité vraie du matériau.

2 Outil métrologique

L'essai de traction est réalisé par une plateforme mécanique comprenant une machine hydraulique MTS équipée de l'électronique de commande Flextest, et d'un dispositif double de vidéo-extensométrie: système Vidéotraction par suivi de marqueurs et Aramis-3D par corrélation d'images. Dans les deux cas, c'est la déformation logarithmique $\varepsilon = \ln(\ell/\ell_0)$ qui est produite. Le système Vidéotraction permet la mesure en temps réel et grâce à la boucle de régulation du Flextest, l'asservissement de la machine et le pilotage de l'essai sur cette mesure. Le système Aramis permet la mesure du champ de déformation 2D et une vérification a posteriori du comportement de l'éprouvette. L'observable est constitué du signal mesuré contrainte vraie-déformation vraie. Concernant la contrainte, nous travaillerons avec une contrainte calculée sur la base du signal de force mesuré et d'une section réelle d'éprouvette "mesurée" par la seule déformation longitudinale ε_{11} . Les déformations transverses sont donc considérées égales et calculées en supposant une variation volumique nulle. Nous avons donc:

$$\varepsilon_{vol} = \varepsilon_{11}^{mes} + \varepsilon_{22}^* + \varepsilon_{33}^* = 0 \quad (1)$$

soit un observable produit par la formule

$$\sigma^{*,mes} = \frac{F^{mes}}{S_0^{mes}} \exp(-\varepsilon_{22}^* - \varepsilon_{33}^*) = \frac{F^{mes}}{S_0^{mes}} \exp(\varepsilon_{11}^{mes}) \quad (\nu = 0.5) \quad (2)$$

Les exposants 'mes' et '*' sont utilisés ici pour marquer la distinction entre grandeur réellement mesurée par un capteur et grandeur dérivée donc sujette à hypothèse.

Cette procédure produit un observable qui est donc approximé mais sera mise à profit ici pour évoquer les notions de réduction de modèle et de biais de modèle:

- un modèle, tout réduit qu'il soit, doit reproduire l'essentiel de l'observable et donc permet indirectement de vérifier que l'approximation introduite n'est pas de nature à bouleverser la théorie et les hypothèses ayant conduit au modèle réduit (la bonne qualité de cette double approximation d'isotropie transverse et de variation volumique négligeable a d'ailleurs été vérifiée indépendamment pour notre matériau par le croisement avec les résultats de corrélation d'images).
- Par "l'essentiel de l'observable", nous affirmons que ce qui manque se retrouvera dans une signature des résidus d'identification traduisant l'existence d'un biais de modèle, dont l'importance et la forme seront autant d'informations permettant de faire progresser le modèle réduit de manière avisée.

Nous reproduisons ci-dessous trois courbes de traction, obtenues à trois vitesses différentes, pour le polymère étudié (PEHD 500 Natural manufacturé par Röchling, indice de cristallinité de l'ordre de 65%).

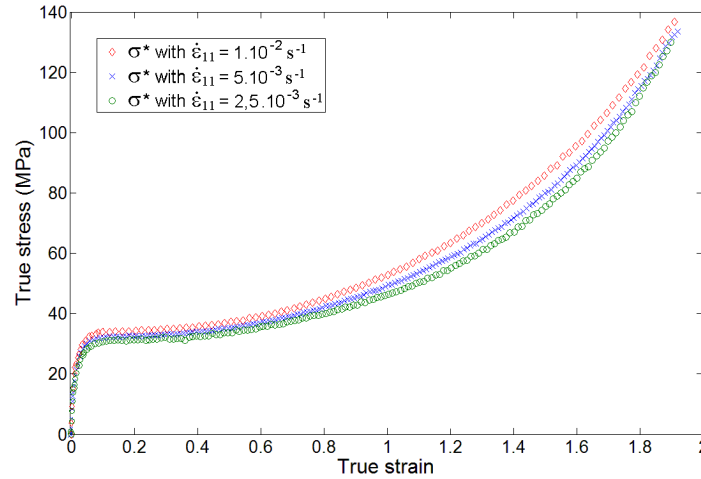


Figure 1: Courbe $\sigma^{*,mes}(\varepsilon_{11}^{mes})$ à 3 taux de déformation $\dot{\varepsilon}_{11}$ imposés.

3 Modèle

Le modèle de loi de comportement utilisé pour cette expérience est issu de l'approche thermodynamique DNLR développée au laboratoire [1]. L'évolution de la contrainte avec la déformation longitudinale sera décrite par le jeu d'équations différentielles (3) dont le pendant analogique correspond à la mise en parallèle de N branches équipées chacune d'une unité rhéologique de type Zener [2,3] assurant une élasticité instantanée et un effet retardé (rôle d'un spectre de temps de relaxation τ_j)

$$\dot{\sigma} = \dot{\sigma}^u + \dot{\sigma}^d = \sum_{j=1}^N \dot{\sigma}_j = \sum_{j=1}^N \left(E_j^u \dot{\varepsilon} - \frac{\sigma_j - \sigma_j^r}{\tau_j} \right) \quad (3)$$

Une approche modale introduit une relation récursive entre les paramètres constitutifs de chaque branche. E_j^u correspond au module modal non relaxé (unrelaxed) donc instantané. E_j^u et σ_j^r sont simplement définis par : $E_j^u = p_j^0 E^u$ et $\sigma_j^r = p_j^0 \sigma^r$ où p_j^0 est un coefficient pondérant la contribution modale de chaque

branche j à la grandeur globale (avec la propriété de normalisation $\sum_{j=1}^N p_j^0 = 1$). σ^r est la contrainte de l'état

de la matière dit relaxé c'est-à-dire correspondent au régime établi des mécanismes internes (les forces de non équilibre n'évoluent plus). Cet état n'est pas forcément un état d'équilibre strict comme la thermodynamique de l'irréversibilité de De Donder et la notion d'Affinité l'indiquent (état "relaxé" ou "isoaffin" caractérisé par $\dot{A} = 0$, état d'équilibre caractérisé par $A = 0$). E^u correspond donc au module élastique. Une forme universelle est retenue pour le spectre des temps de relaxation, basée sur le théorème

d'équipartition de l'entropie créée par chaque mode dissipatif. Il en résulte $p_j^0 = \sqrt{\tau_j} / \sum_{j=1}^N \sqrt{\tau_j}$ qui instaure

une relation de récursivité sur les paramètres de chaque branche [3]. Le spectre est complètement défini par un temps maximum τ_{max} bornant le spectre et le nombre de décades d d'étalement par la

$$\text{relation } \tau_j = \tau_{max} 10^{-\left(\frac{N-j}{N-1}\right)d}.$$

Enfin l'état relaxé sera décrit par une forme "dégradée" du modèle de contrainte de "back-stress" utilisé dans la littérature [4,5] pour décrire le comportement de matériaux (devenus) caoutchoutiques (enchevêtrement tridimensionnel de grosses molécules avec nœuds de "réticulation" mécanique) soit

$$\sigma^r = G(\lambda^2 - \lambda^{-1}) = G(\exp(2\varepsilon) - \exp(-\varepsilon)) \quad (4)$$

où G est qualifié de module hyperélastique et $\varepsilon = \varepsilon_{11}$.

Ce modèle est dit réduit dans la mesure où il ne retient et décrit à minima que les phénomènes

fondamentaux de la déformation du polymère sous chargement de traction: élasticité (incontournable, c'est la part réversible, instantanée du modèle), viscosité (spectre de temps de relaxation), hyperélasticité aux grandes déformations (modèle d'état relaxé). Il est également linéaire (pas de glissement des temps de relaxation) vis à vis des variables dépendantes. Le corollaire est que ce modèle présente un nombre extrêmement limité de paramètres: 3 paramètres constitutifs (Modules E^u et G , temps maximum $\tau_{\max}$) et 2 hyper paramètres (d et N) qui sont des paramètres associés à la structure du modèle. Ils sont fixés à des valeurs telles qu'elles laissent le comportement du modèle inchangé au-delà ($d=6$ décades et $N=50$ modes, assurant à la fois l'invariance des sorties modèle vis-à-vis des hautes fréquences et du niveau de discrétisation du spectre).

4 Outils au service de l'identifiabilité des paramètres

Ce modèle est par contre non linéaire en les trois paramètres $\beta = [E^u, \tau^{\max}, G]$. Estimer ces paramètres se fait en général par un estimateur des Moindres Carrés de type $E_{MC} = \sum_{i=1}^q (\sigma^{*,mes}(t_i) - \sigma(\beta, t_i))^2$ que l'on va chercher à minimiser (rendre l'écart mesure-modèle aussi faible que possible). Cette minimisation impose

$$\sum_{i=1}^q (X_p(\beta, t_i) [\sigma^{*,mes}(t_i) - \sigma(\beta, t_i)]) = 0 \quad (5)$$

où l'on voit apparaître clairement le rôle des coefficients de sensibilité $X_p(\beta, t_i) = \partial \sigma(\beta, t_i) / \partial \beta_p$ vis-à-vis de chaque paramètre p . Ces coefficients expriment la réactivité du modèle à tout changement de la valeur du paramètre. Ils jouent un rôle crucial dans l'estimation puisque dans le cas non linéaire, l'algorithme de minimisation retenu (Gauss-Newton par exemple) effectuera une hypothèse de linéarité au premier ordre de sorte qu'entre deux itérations, nous aurons une estimation du vecteur paramètre donnée par

$$\hat{\beta}^{(n+1)} = \hat{\beta}^{(n)} + ({}^t X^{(n)} X^{(n)})^{-1} {}^t X^{(n)} (\sigma^{*,mes} - \sigma^{(n)}) \quad (6)$$

Le conditionnement de la matrice ${}^t X^{(n)} X^{(n)}$ et donc le comportement des coefficients de sensibilité est crucial. Une sensibilité quasi-nulle à un paramètre ou des paramètres corrélés (coefficients de sensibilité quasi-proportionnels) vont correspondre à un problème d'estimation mal posé ou de non-identifiabilité. L'observation graphique des coefficients de sensibilité permet déjà d'appréhender les risques à cet égard. Dans une perspective plus quantitative, il est possible d'exprimer les performances statistiques de l'estimateur, intégrant le bruit de mesure sur l'observable d'écart-type σ_σ , à travers la matrice de Variance-Covariance sur

les paramètres soit $\Delta = E \left[\left(\hat{\beta} - E(\hat{\beta}) \right) \left(\hat{\beta} - E(\hat{\beta}) \right)^t \right] = \sigma_\sigma^2 ({}^t X X)^{-1}$ où $E(\cdot)$ désigne l'espérance mathématique.

Les termes diagonaux de cette matrice donnent la variance estimée (borne inférieure) sur chaque paramètre soit une estimation de l'erreur minimum qui sera commise. Les termes hors-diagonale permettent de calculer les coefficients de corrélation, dont l'utilité est essentiellement d'expliquer une variance élevée sur un paramètre par un coefficient de corrélation proche de 1 entre 2 paramètres.

Notre objectif étant limité à rappeler que des outils théoriques existent pour analyser l'aptitude d'un couple (Modèle-Expérimentation) à conduire à une bonne estimation de certains paramètres (recherchés ou non), nous n'irons pas plus loin dans l'exposé des principes de l'estimation paramétrique non linéaire (se reporter aux excellents ouvrages de référence dont [6]), et nous contenterons de ces "essentiels" que nous venons d'introduire.

5 Résultats sur le module élastique instantané.

La figure ci-joint donne un résultat d'identification. Sont également reportés les résidus d'identification c'est-à-dire les écarts se maintenant entre expérience et reconstruction de l'observable par le modèle et pour les valeurs estimées à convergence de l'algorithme de minimisation. On constate qu'ils sont ici relativement

faibles, compris entre $-1/+1$ MPa pendant tout l'essai, mais surtout qu'ils sont signés c'est-à-dire non centrés sur une valeur nulle. Ceci atteste de l'existence d'un biais de modèle: ce modèle ne représente pas exactement la réalité (cf les approximations évoquées en 2. par exemple).

En ce qui concerne l'identifiabilité des paramètres, le tableau 1 donne pour un jeu de trois paramètres les erreurs d'estimation relatives attendues (termes diagonaux) et les coefficients de corrélation obtenus. Ce tableau montre que tous les paramètres sont bien estimés (variances faibles) malgré un fort coefficient de corrélation entre les paramètres E^u et $\tau_{\max}$. On voit que le paramètre G est comparativement excellentement estimé parce que présentant une corrélation très faible avec les deux autres paramètres.

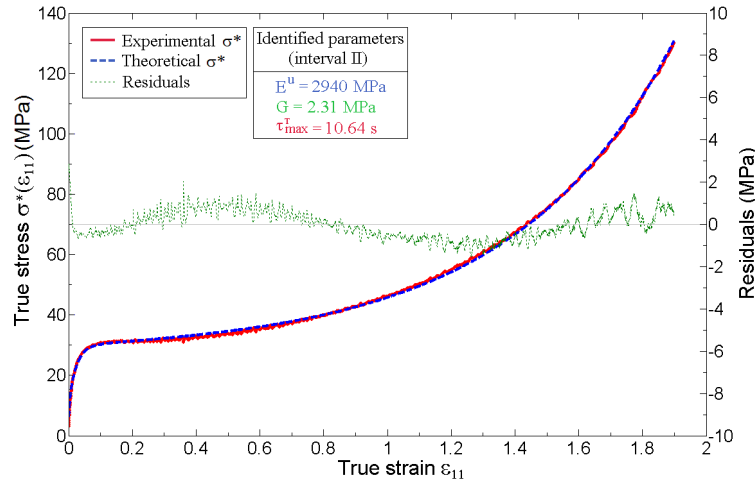


Figure 2: Courbe expérimentale $\sigma^{*,mes}(\varepsilon_{11}^{mes})$, courbe théorique recalculée pour $\hat{\beta}$, résidus d'identification (échelle droite)

	E^u	G	$\tau_{\max}$
E^u	1.37 %	-0.1803	-0.9988
G	-0.1803	0.06 %	0.1470
$\tau_{\max}$	-0.9988	0.1470	1.38 %

Tableau 1 : Erreur relative sur les paramètres estimés (en %, diagonale grisée) et coefficients de corrélation.

L'opération métrologique résulte ici d'une procédure d'identification par modèle interposé, que l'on qualifiera de MBM (Model Based Metrology). Nous présentons maintenant la validation sur la base des identifications du module élastique instantané E_{MBM}^u . Sur le même PEHD (même marque commerciale), 4 types d'échantillons ont été soumis aux essais. Ils sont référencés A et B (2 lots différents commandés à 6 ans d'intervalle d'épaisseur 6 et 4 mm respectivement) et pour le matériau A trois échantillons ont été prélevés dans le sens d'extrusion $A_{||}$, le sens orthogonal d'extrusion $A_{\perp}$ et à cœur A_c (épaisseur 3mm). Le fait de travailler sur le même matériau supposé mais dont on sait l'extrême variabilité, permet de vérifier la qualité des identifications. Les valeurs identifiées du module élastique sont comparées à celle obtenues selon deux autres techniques physiques conduisant à des mesures quasiment directes. La première technique consiste à mesurer le module par la mesure des vitesses de propagation des ondes sonores (Technique Pulse-Echo [7]: Equipement: Optel OPBOX system). La seconde technique repose sur une excitation modulée (périodique) de la matière à l'aide d'un nanoindenteur (Continuous Stiffness Method développée au laboratoire FEMTO et détaillée dans [8]).

Le tableau 2 récapitule les résultats obtenus (valeur moyenne sur une dizaine de mesures répétées pour toutes les techniques). On peut constater que

- (i) les normes de mesure des modules de polymères par essai de traction sont très loin (écarts de près de

- 300% !) des valeurs mesurées par les 3 autres techniques, justifiant nos propos introductifs;
- (ii) les 3 techniques, compte-tenu des intervalles de confiance respectifs sur les paramètres mesurés et non reproduits ici, donnent des résultats quasi-identiques. Par nanoindentation, les résultats peuvent présenter des écarts plus importants (cas de $A_{//}$), ce qui s'explique par le fait que sur les échantillons de 6mm d'épaisseur, la mesure par nanoindentation est sensible à l'effet de peau lié au process de fabrication. Sur les échantillons de 3mm prélevés à cœur des plaques, cet écart se réduit fortement.
 - (iii) L'utilisation d'un modèle réduit adapté et couplé à une analyse de sensibilité poussée, basée sur les ingrédients présentés en 3., est la garantie d'une rigueur scientifique implacable sur le terrain métrologique et d'une parfaite transparence dans la présentation des résultats obtenus. A partir de là, on peut commencer à réfléchir à faire "parler" d'autres modèles physiques explicatifs cette-fois des valeurs trouvées.

Echantillons		Valeur Fabricant	ISO 527-1 $d\epsilon_N/dt = 5$ mm/min	ASTM D638 $d\epsilon_N/dt = 5$ mm/min	Essai de traction (estimation MBM) E_{MBM}^u	Technique Ultrasons E_{PE}^u	Nanoindentation E_{Nano}^u
A	$A_{//}$	1200	1138	1141	2830	2780 (-2%)	2380 (-16%)
	A_c		-	-	2940	2800 (-5%)	2730 (-8%)
	$A_{\perp}$		-	-	2400	2780 (= E_{*}^u)	2320 (-3%)
B			772	763	2270	2220 (-2%)	2180 (-5%)

Tableau 2 : Comparaison entre les valeurs de E^u estimées à partir des standards (ISO et ASTM), par stratégie d'identification MBM, par technique Pulse-Echo et par Nanoindentation modulée. Valeurs trouvées pour 4 échantillons. Les écarts donnés en % le sont par rapport aux valeurs identifiées par la stratégie MBM.

Références

- [1] Cuna, C., 1991. A thermodynamic theory of relaxation based on a distribution of non-linear processes. J. Non-Crystalline Solids. 131/133, 196-199.
- [2] Tschoegl, N.W., The Phenomenological Theory of Linear Viscoelastic Behaviour, An Introduction, Springer-Verlag, 1989.
- [3] André, S., Meshaka Y., Cuna C., Rheological constitutive equation of solids: a link between models based on irreversible thermodynamics and on fractional order derivative equations. Rheologica Acta. 42, 500-515, 2003.
- [4] Arruda, E.M., Boyce, M.C., A three-dimensional constitutive model for the large stretch behavior of rubber elastic materials, Journal of the Mechanics and Physics of Solids, 41-2, 389, 1993.
- [5] Haward, R.N., Strain hardening of High Density Polyethylene. J. Polymer Sciences, Part B: Polymer Physics. 45, 1090-1099, 2007.
- [6] Beck, J.V., Arnold, K.J., Parameter Estimation in Engineering and Science, John Wiley & Sons, New York, 1977.
- [7] Piché, S., Ultrasonic velocity measurement for the determination of density in polyethylene. Polymer Engineering & Science. 24, 1354-1358, 1984.
- [8] Le Rouzic, J., Delobelle, P., Vairac, P., Cretin, B., Comparaison of three different scales techniques for the dynamic mechanical characterization of two polymers (PDMS and SU8). The European Physical Journal Applied Physics. 48, 11201, 2009.