

## MODELOWANIE NANOKOMPOZYTÓW ZA POMOCĄ METODY ELEMENTÓW BRZEGOWYCH

JACEK PTASZNY, GRZEGORZ DZIATKIEWICZ

*Katedra Wytrzymałości Materiałów i Metod Komputerowych Mechaniki, Politechnika Śląska  
e-mail: jacek.ptaszny@polsl.pl, grzegorz.dziatkiewicz@polsl.pl*

Streszczenie. W pracy przedstawione zostały wyniki homogenizacji nanokompozytów o osnowie polimerowej wzmocnianych płytkami nanoglinek, tworzącymi równoległe pakiety, modelowanymi jako cząstki zastępcze. Wyniki uzyskano na drodze analizy płaskich reprezentatywnych elementów objętościowych za pomocą metody elementów brzegowych. Rozpatrywano przypadki cząstek efektywnych izotropowych oraz ortotropowych. Do modelowania cząstek ortotropowych wykorzystano rozwiązanie podstawowe uzyskane za pomocą formalizmu Stroha.

### 1. WSTĘP

Nanokompozyty o osnowie polimerowej wzmocniane płytkami nanoglinek posiadają korzystniejsze własności mechaniczne, przy stosunkowo niskim udziale wzmocnienia, w stosunku do innych materiałów kompozytowych. Płytki mogą być rozmieszczone nierównomiernie i dowolnie zorientowane, lub mogą tworzyć wzajemnie równoległe pakiety, składające się z kilku równoległych płytek.

Własności zastępcze kompozytów można wyznaczyć, stosując metody analityczne, empiryczne lub numeryczne. Zastosowanie metod analitycznych może prowadzić do uzyskania wyników różniących się znacznie od wyników badań eksperymentalnych [7], natomiast badania eksperymentalne są związane ze znacznym kosztem. Z tego względu celowe jest stosowanie metod numerycznych. Obecnie najczęściej stosowaną w homogenizacji metodą numeryczną jest metoda elementów skończonych (MES). Modelowania rozpatrywanych materiałów za pomocą MES dotyczą prace [3], [4] oraz [7]. MES wymaga dyskretyzacji całego obszaru analizowanego układu, co wpływa niekorzystnie na czas potrzebny do przygotowania modelu, czas analizy oraz ilość danych wynikowych. Korzystniejsze może być zastosowanie metody elementów brzegowych (MEB), która w wielu przypadkach wymaga jedynie dyskretyzacji brzegu układu [1]. Analizowane są tylko wielkości na brzegu, których znajomość jest wystarczająca do wyznaczenia zastępczych własności materiałów niejednorodnych. Ponadto dokładność tej metody może być większa w stosunku do MES, zwłaszcza w przypadku analizy układów w których występuje spiętrzenie naprężeń. Przykłady homogenizacji z wykorzystaniem metody elementów brzegowych można znaleźć m.in. w pracach [2] i [5].

Niniejsza praca jest kontynuacją wcześniejszych badań, których wyniki opublikowano w artykule [5]. Przedstawiono tam wyniki homogenizacji za pomocą MEB nanokompozytów o osnowie poliamidowej, wzmocnianych płytkami montmorylonitu tworzącymi równoległe

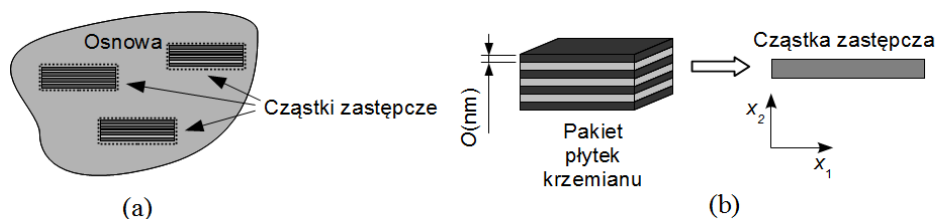
pakiety, modelowanymi jako jednorodne i izotropowe cząstki zastępcze. Rozważano stosunkowo niski udział masowy wzmocnienia, nieprzekraczający 6%. Przy takich założeniach wyniki homogenizacji numerycznej dotyczące zastępczego modułu Younga kompozytu w kierunku osi podłużnej cząstek są zgodne z wynikami badań eksperymentalnych [7].

W niniejszej pracy modelowano ortotropowe cząstki zastępcze oraz poszerzono analizowany zakres udziału masowego do wartości 20%, co pozwala na dokładniejsze wyznaczenie wszystkich stałych sprężystości. Do modelowania ortotropowych cząstek zastępczych zastosowano rozwiązania podstawowe uzyskane za pomocą formalizmu Stroha [9]. Analizowano modele płaskie, w płaskim stanie odkształcenia.

Układ pracy jest następujący: w rozdziale drugim przedstawiono charakterystykę analizowanych materiałów. Rozdział trzeci zawiera opis zastosowanej procedury homogenizacji. W rozdziale czwartym opisano sposób modelowania kompozytów za pomocą metody elementów brzegowych. Rozdział piąty zawiera przykład modelowania nanokompozytów, natomiast rozdział szósty zawiera wnioski.

## 2. NANOKOMPOZYTY

Analizowano kompozyty o poliamidowej osnowie wzmocniane płytkami krzemianu (montmorylonitu), tworzącymi równoległe pakiety (rys. 1a). Pakiety mogą być modelowane jako jednorodne cząstki zastępcze. Jeśli rozpatrywany jest model płaski, cząstki zastępcze mają kształt prostokąta (rys. 1b). Pakiety składają się z płytek wzmocnienia, pomiędzy którymi znajdują się międzywarstwy. Zarówno płytki jak i międzywarstwy posiadają grubość rzędu kilku nanometrów. Międzywarstwy składają się z surfaktantów oraz łańcuchów polimeru osnowy, które spenetrowały przestrzenie pomiędzy płytkami wzmocnienia podczas procesu wytwarzania. Liczba płytek wchodzących w skład pojedynczego pakietu wynosi zwykle od 2 do 4. Strukturę płytek stanowią fragmenty sieci krystalicznej montmorylonitu. Parametry płytek, takie jak stosunek długości do grubości, relacja pomiędzy udziałem objętościowym i udziałem masowym oraz sztywność, mogą być wyznaczone metodami dynamiki molekularnej. Zakładając, że są znane parametry płytek oraz międzywarstw, pakiety można modelować cząstkami zastępczymi. Zakłada się, że pakiety płytek można zastąpić takimi cząstkami, które posiadają ten sam stosunek długości do grubości  $L/t$  (gdzie  $L$  jest długością cząstki a  $t$  jest jej grubością), udział masowy  $f_p$  oraz zastępcze własności mechaniczne. Należy zaznaczyć, że określenie własności zastępczych cząstek wzmocnienia nanokompozytu jest zagadnieniem złożonym i wymaga użycia wielu zaawansowanych metod. Zagadnienie to posiada wiele aspektów, które nie odnoszą się bezpośrednio do problemu poruszanego w niniejszej pracy, dlatego nie będą omawiane. Szczegółowy opis tych zagadnień można natomiast znaleźć w pracy [7].



Rys.1. Struktura wzmocnienia nanokompozytu: a) osnowa z płytkami wzmocnienia, b) pakiet płytek i dwuwymiarowa cząstka zastępcza

### 3. HOMOGENIZACJANUMERYCZNA

W pracy stosowano metodę homogenizacji numerycznej polegającej na modelowaniu reprezentatywnego elementu objętościowego (ang. representative volume element, RVE) [6]. Na brzegu zewnętrznym przyjmowano periodyczne warunki brzegowe. Na rys. 2 przedstawiono przykładowy RVE z brzegiem zewnętrznym  $\Gamma_0$  składającym się z czterech części:  $\Gamma_B, \Gamma_L, \Gamma_T$  i  $\Gamma_R$ . Po obciążeniu kształt RVE jest określony przemieszczeniami węzłów (2) i (4), które są równe:

$$u_i^{(2)} = \bar{\varepsilon}_{ij} (x_j^{(2)} - x_j^{(1)}), \quad u_i^{(4)} = \bar{\varepsilon}_{ij} (x_j^{(4)} - x_j^{(1)}), \quad i = 1, 2, \quad j = 1, 2, \quad (1)$$

gdzie  $\bar{\varepsilon}_{ij}$  jest znanym tensorem stanu odkształcenia w skali makro. Przemieszczenia pozostałych punktów brzegu zewnętrznego, łącznie z węzłem (3), są związane z przemieszczeniami węzłów (2) i (4) poprzez równania:

$$u_i^{(R)} = u_i^{(L)} + u_i^{(2)} - u_i^{(1)}, \quad u_i^{(T)} = u_i^{(B)} + u_i^{(4)} - u_i^{(1)}, \quad i = 1, 2. \quad (2)$$

Zakłada się również, że w odpowiadających sobie punktach położonych na przeciwległych fragmentach brzegu siły powierzchniowe mają tę samą wartość i przeciwny zwrot:

$$t_i^{(B)} = -t_i^{(T)}, \quad t_i^{(L)} = -t_i^{(R)}, \quad i = 1, 2. \quad (3)$$

Aby powyższe warunki były spełnione, należy wprowadzić odpowiednie modyfikacje układu równań sformułowanego za pomocą wybranej metody numerycznej (w tym przypadku MEB).

Zastępcze stałe sprężystości materiału modelowanego w jednej płaszczyźnie można wyznaczyć, stosując trzy niezależne testy pokazane na rys. 3. Składowe średnich odkształceń w obszarze RVE w przypadku poszczególnych testów wynoszą:

- test 1 (dane przemieszczenie  $\delta_1$ ):

$$\bar{\varepsilon}_{11} = \frac{\delta_1}{L_1}, \quad \bar{\varepsilon}_{22} = -\frac{\delta_2}{L_2}, \quad (4)$$

- test 2 (dane przemieszczenie  $\delta_2$ ):

$$\bar{\varepsilon}_{11} = -\frac{\delta_1}{L_1}, \quad \bar{\varepsilon}_{22} = \frac{\delta_2}{L_2}, \quad (5)$$

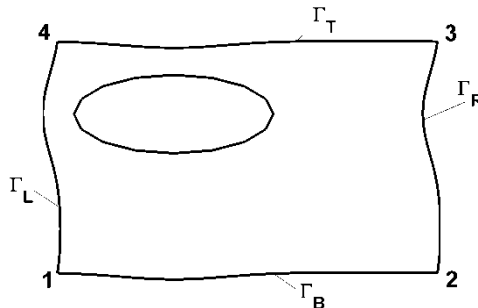
- test 3 (dane przemieszczenie  $\delta_1$ ):

$$\bar{\varepsilon}_{12} = \frac{\delta_1}{2L_2}. \quad (6)$$

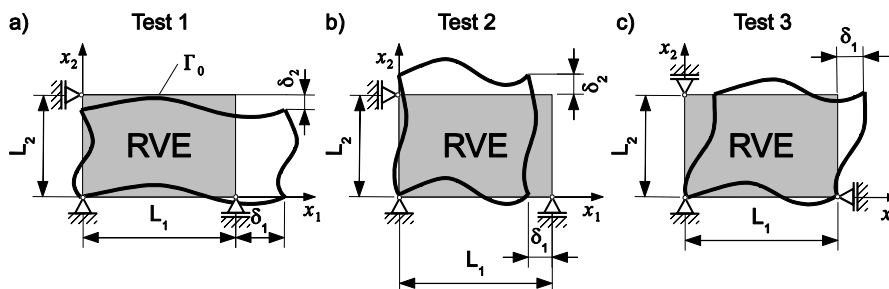
Średnie naprężenia w obszarze RVE obliczane są z wykorzystaniem zależności:

$$\bar{\sigma}_{ij} = \frac{1}{L_1 L_2} \int_{\Gamma_0} t_i x_j d\Gamma_0, \quad (7)$$

gdzie  $t_i$  oznacza składowe sił powierzchniowych natomiast  $x_j$  to współrzędne punktu leżącego na brzegu zewnętrznym. Zakładając, że materiał w skali makro jest liniowosprężysty (spełnia prawo Hooke'a) oraz wykonując trzy testy opisane powyżej, można zbudować układ dziewięciu równań z niewiadomymi stanowiącymi elementy macierzy podatności materiału. Te z kolei można wykorzystać do wyznaczenia stałych inżynierskich. Zakładając, że materiał w skali makro jest ortotropowy, stałymi tymi są: dwa moduły Younga:  $E_{11}$  i  $E_{22}$ , dwie liczby Poissona:  $\nu_{12}$  i  $\nu_{21}$ , oraz moduł Kirchhoffa  $G_{12}$ . Cztery spośród tych stałych są wielkościami niezależnymi, co wynika z symetrii macierzy podatności.



Rys.2. Odształcony RVE z oznaczonymi węzłami narożnymi oraz fragmentami brzegu zewnętrznego



Rys.3. Trzy testy z wykorzystaniem okresowych warunków brzegowych: a) odkształcenie wzdłuż osi  $x_1$ , b) odkształcenie wzdłuż osi  $x_2$ , c) odkształcenie postaciowe w płaszczyźnie  $x_1x_2$

## 4. METODA ELEMENTÓW BRZEGOWYCH W MODELOWANIU KOMPOZYTÓW

Rozpatrywane jest ciało, które może stanowić model osnowy lub wtrącenia, zajmujące obszar  $\Omega$  z brzegiem  $\Gamma$ . Ciało jest jednorodne i liniowosprężyste. Jest obciążone siłami powierzchniowymi  $t_j$ . Związek pomiędzy tymi siłami a przemieszczeniami na brzegu  $u_j$  określony jest brzegowym równaniem całkowym [1], [2]:

$$c_{ij}(x')u_j(x') + \int_{\Gamma} T_{ij}(x, x')u_j(x')d\Gamma = \int_{\Gamma} U_{ij}(x, x')t_j(x')d\Gamma, \quad (8)$$

gdzie  $x'$  jest punktem kolokacji,  $x$  jest punktem na brzegu,  $c_{ij}$  jest współczynnikiem zależnym od położenia punktu  $x'$ , natomiast  $U_{ij}$  i  $T_{ij}$  są rozwiązaniami podstawowymi. W przypadku, gdy rozpatrywane jest ciało izotropowe, są to rozwiązania Kelvina. Jeśli analizowane jest ciało ortotropowe, rozwiązania podstawowe można wyprowadzić, stosując formalizm Stroha [9]. W równaniu (8) zastosowana jest konwencja sumacyjna.

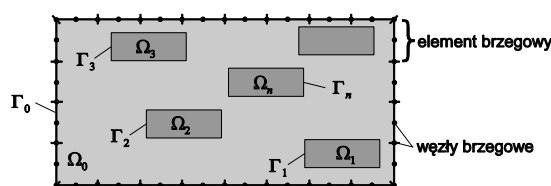
Brzegi zewnętrzny i wewnętrzne osnowy dzielone są na elementy brzegowe. Podział zaprezentowano na rys. 4 (pominięto elementy na brzegach wspólnych wtrąceń i matrycy, aby zachować czytelność rysunku). Przemieszczenia i siły powierzchniowe na długości każdego elementu brzegowego interpoluje się za pomocą wartości w węzłach oraz funkcji kształtu. Brzegowe równania całkowe (8) stosuje się dla punktów leżących na brzegach. W ten sposób buduje się układ równań algebraicznych którego rozwiązaniem są nieznane brzegowe przemieszczenia i siły powierzchniowe.

Do modelowania kompozytów można zastosować sformułowanie przedstawione w pracy [10]. Obszar osnowy oznaczono symbolem  $\Omega_0$ , a jego brzeg  $\Gamma_0$  (rys. 4). W analizowanym obszarze znajduje się  $n$  wtrąceń  $\Omega_k$  o brzegach  $\Gamma_k$  ( $k = 1, 2, \dots, n$ ). Wprowadza się następujące założenia:

- osnowa zawiera jednakowe wtrącenia o dowolnym kształcie,
- na brzegach wspólnych osnowy i wtrąceń  $\Gamma_k$  zakłada się idealne połączenie (ciągłość przemieszczeń oraz równowagę sił powierzchniowych),
- wtrącenia nie przecinają brzegu zewnętrznego osnowy  $\Gamma_0$ .

W przedstawianym sformułowaniu układ równań jest budowany dla obszaru osnowy, a następnie modyfikowany za pomocą macierzy zbudowanej dla pojedynczego wtrącenia. Niewiadomymi są tylko wielkości na brzegu zewnętrznym  $\Gamma_0$  oraz przemieszczenia na brzegach  $\Gamma_k$  ( $k = 1, 2, \dots, n$ ). Siły powierzchniowe na brzegach  $\Gamma_k$  są z układu równań eliminowane, co prowadzi do zredukowania jego rozmiaru. Siły te mogą być wyznaczone po rozwiązaniu układu.

W pracy zastosowano autorski program komputerowy, wykorzystujący trójwęzłowe elementy brzegowe o kwadratowych funkcjach kształtu. Niesobliwe całki brzegowe obliczane są za pomocą 10-punktowych kwadratur Gaussa. Całki osobliwe obliczane są za pomocą kwadratury logarytmicznej oraz metodą ruchu ciała sztywnego.



Rys. 4. Model kompozytu analizowany metodą elementów brzegowych

## 5. PRZYKŁAD

Wyznaczono zastępcze stałe sprężystości nanokompozytu rozpatrywanego jako ortotropowy w skali makro. Badano zależność tych stałych od udziału masowego wzmocnienia  $W_c$ , który zawierał się w zakresie od 4 do 20%. Przyjęto, że długość cząstki efektywnej wynosi  $L = 200$  nm, stosunek długości do wysokości  $L/t = 21$ , natomiast stosunek udziału objętościowego wzmocnienia do udziału masowego  $f_p/W_c = 1.2$ . Analizowano dwa rodzaje cząstek zastępczych: izotropowe oraz ortotropowe. Wartości stałych sprężystości tych cząstek wyznaczono za pomocą zależności podanych w pracy [7] i zestawiono je w tabeli 1, wraz ze stałymi osnowy.

Tabela 1. Własności składników mikrostruktury kompozytu w płaskim stanie odkształcenia

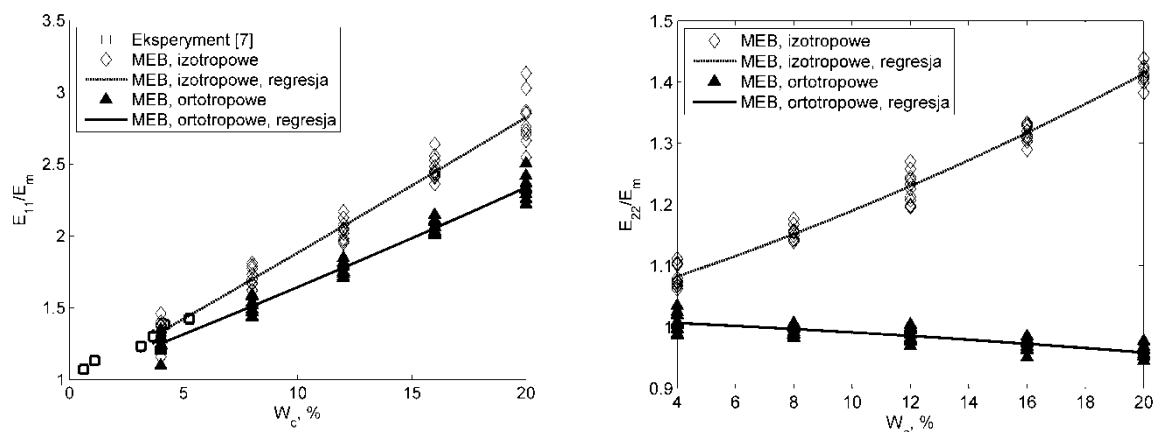
Osnowa	Zastępcza cząstka izotropowa	Zastępcza cząstka ortotropowa
$E_m = 4$ GPa	$E_p = 84$ GPa	$E_{p11} = 84$ GPa; $E_{p22} = 8$ GPa
$\nu_m = 0.35$	$\nu_m = 0.3$	$\nu_{p12} = 0.3$ ; $G_{p12} = 19$ MPa

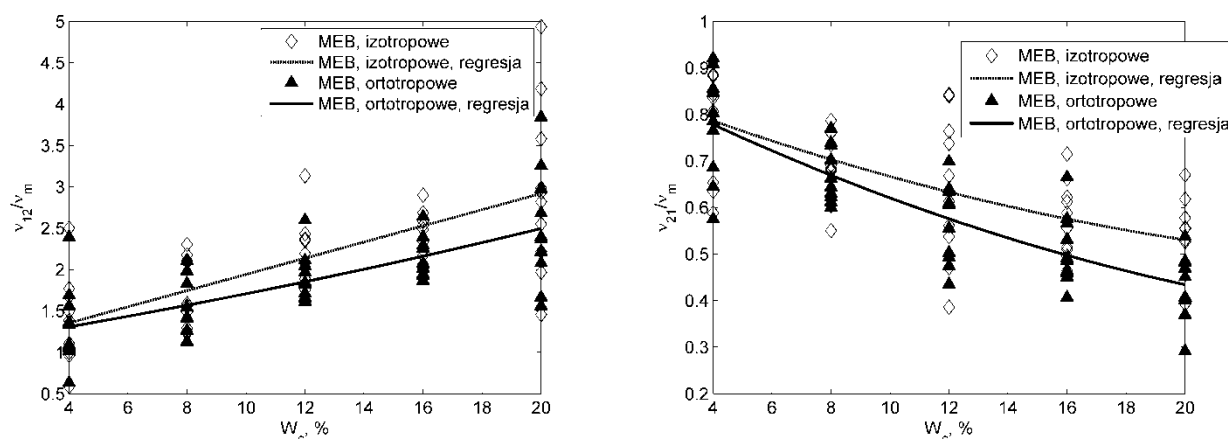
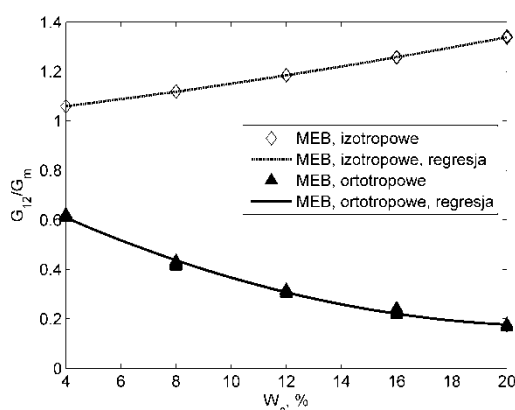
Analizowano modele zawierające 60 losowo rozmieszczonych wtrąceń (rys. 5). Dla każdej wartości udziału masowego wzmocnienia generowano 10 różnych modeli. Brzeg każdego z modeli był dyskretyzowany za pomocą 1512 trójwęzłowych elementów brzegowych oraz liczył 6048 stopni swobody. Stosowano okresowe warunki brzegowe.



Rys. 5. Geometria przykładowego RVE

Wyznaczono zastępcze stałe kompozytu:  $E_{11}$  i  $E_{22}$  (moduły Younga w kierunkach osi  $x_1$  i  $x_2$ ),  $G_{12}$  (moduł Kirchhoffa w płaszczyźnie  $x_1x_2$ ) oraz  $\nu_{12}$  i  $\nu_{21}$  (liczby Poissona). Wykresy zależności znormalizowanych stałych względem stałych osnowy przedstawiono na rysunkach 6, 7 i 8.

Rys. 6. Zastępcze moduły Younga  $E_{11}$  i  $E_{22}$


 Rys. 7. Zastępcze liczby Poissona  $\nu_{12}$  i  $\nu_{21}$ 

 Rys. 8. Zastępczy moduł Kirchhoffa  $G_{12}$ 

## 6. WNIOSKI

Moduł Younga  $E_{11}$ , uzyskany za pomocą modelu zawierającego izotropowe cząstki, jest zawyżony w stosunku do wartości uzyskanej przy cząstkach ortotropowych, chociaż przy niskiej wartości udziału masowego wzmocnienia w obu przypadkach uzyskano wyniki podobne do wyników badań eksperymentalnych [7] (rys. 6). W przypadku modułów  $E_{11}$  oraz  $G_{12}$  wykazano znaczny wpływ rodzaju wprowadzonych cząstek zastępczych na własności zastępcze nanokompozytu. Jeśli rozpatrywane jest obciążenie układu w kierunku poprzecznym do płytek wzmocnienia, cząstki powinny być modelowane jako ortotropowe. Podobne wnioski można odnaleźć w literaturze, np. w [3] i [7]. W przypadku liczb Poissona wpływ rodzaju cząstki na wyniki jest niewielki.

W przypadku modułów Younga oraz liczb Poissona wyniki były wrażliwe na zmianę geometrii reprezentatywnego elementu objętości, co objawiało się znacznym rozrzutem tych wartości przy stałym udziale masowym wzmocnienia. Rozrzut ten mógł być spowodowany rozmiarem reprezentatywnych elementów objętości, które zawierały 60 wtrąceń. Prawdopodobnie rozrzut można zredukować, modelując układy zawierające większą liczbę wtrąceń. W przypadku modułu Kirchhoffa wpływ geometrii na wynik, przy stałej wartości udziału masowego, jest znikomy.

Zastosowana metoda charakteryzuje się wysoką efektywnością ze względu na stosunkowo niewielką liczbę stopni swobody modelu oraz dużą dokładność wyników analizy.

## LITERATURA

1. Brebbia C.A., Dominguez J.: Boundary elements an introductory course. New York: McGraw-Hill, 1992.
2. Fedeliński P., Górski R., Działkiewicz G., Ptaszny J.: Computer modelling and analysis of effective properties of composites. "Computer Methods in Materials Science" 2011, 11, p. 3 – 8.
3. Figiel Ł., Buckley C.P.: Elastic constants for an intercalated layered-silicate/polymer nanocomposite using the effective particle concept – a parametric study using numerical and analytical continuum approaches. "Computational Materials Science" 2009, 44, p. 1332-1343.
4. Hbaieb K., Wang Q. X., Chia Y.H.J., Cotterell B.: Modelling stiffness of polymer/clay nanocomposites. "Polymer" 2007, 48, p. 901–909.
5. Ptaszny J., Fedeliński P.: Numerical homogenization of polymer/clay nanocomposites by the boundary element method. "Archives of Mechanics" 2011, 63, 5-6, p. 517-532.
6. Kouznetsova V., Brekelmans W.A.M., Baaijens F.P.T.: An approach to micro-macro modeling of heterogeneous materials. "Computational Mechanics" 2001, 27, p. 37-48.
7. Sheng N., Boyce M.C., Parks D.M., Rutledge G.C., Abes J.I., Cohen R.E.: Multiscale micromechanical modeling of polymer/clay nanocomposites and the effective clay particle. "Polyme" 2004, 45, p. 487-506.
8. Tandon G.P., Weng G.J.: The effect of aspect ratio of inclusions on the elastic properties of unidirectionally aligned composites. "Polymer Composites" 1984, 5, p. 327–333.
9. Ting T.C.T.: Anisotropic elasticity: theory and applications. New York, Oxford: Oxford University Press, 1996.
10. Yao Z., Kong F., Zheng X.: Simulation of 2D elastic bodies with randomly distributed circular inclusions using the BEM. "Electronic Journal of Boundary Elements" 2003, 1, p. 270–282.
11. Zohdi T.I., Wriggers P.: An introduction to computational micromechanics. Berlin: Springer-Verlag, 2008.

### MODELING OF NANOCOMPOSITES BY THE BOUNDARY ELEMENT METHOD

Summary. In this work results of numerical homogenization of polymer/clay nanocomposites, reinforced with parallel stacks of clay sheets modelled by effective particles, are presented. The results are obtained by the analysis of representative volume elements by using the boundary element method. The cases of isotropic and orthotropic effective particles are both considered. The orthotropic particles are analyzed by using fundamental solutions obtained by the Stroh formalism.

*Badania wykonano w ramach projektu finansowanego przez Ministerstwo Nauki i Szkolnictwa Wyższego w latach 2010-2012.*