

## Modélisation de la cristallisation des composites à matrices thermoplastiques semi-cristallines

### Partenaires

F. Détrez (MSME UMR 8208 CNRS, Université Paris-Est Marne-la-Vallée)

S. Roland (Laboratoire PIMM UMR 8006 CNRS, Arts et Métiers ParisTech)

### Contexte

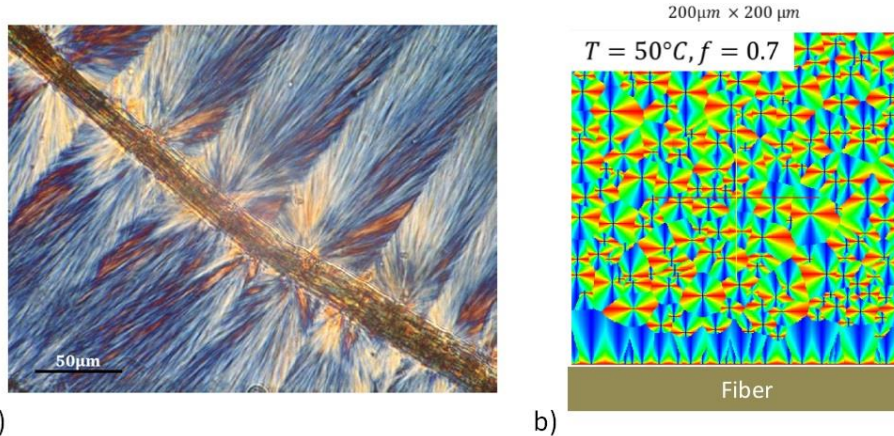


Figure 1 a) Image de la zone de transcristallinité à l'interface fibre de chanvre polypropylène. b) Simulation 2D d'un agrégat de sphérolites avec une zone transcristalline [3].

Les composites à matrices thermoplastiques sont de plus en plus utilisés car leur caractère thermoplastique permet le recyclage et l'assemblage par soudage qui sont des avantages certains par rapport aux composites thermodurcissables. Les thermoplastiques semi-cristallins confèrent aux composites de meilleures propriétés mécaniques ainsi qu'une meilleure tenue en température. Cependant, leurs propriétés dépendent fortement de la morphologie cristalline comme le taux de cristallinité, la taille des sphérolites et de la transcristallinité (voir Figure 1a).

Cette morphologie doit alors être caractérisée afin de pouvoir comprendre son influence sur les propriétés mécaniques observées. Pour autant, une caractérisation expérimentale peut s'avérer longue, compliquée et souvent réalisée localement (notamment à l'aide de techniques microscopiques) ne rendant pas forcément compte de la globalité de l'échantillon. L'outil numérique peut alors se montrer performant dans la prédiction de cette microstructure et permettre ainsi d'établir un lien de cause à effet des paramètres régissant la cristallisation sur les propriétés mécaniques finales du matériau. La plupart des modèles de génération de microstructures déjà existant [1-2] ne prennent pas en compte les différents modes de germination (hétérogène ou homogène) qui sont à l'origine des microstructures industrielles. Nous proposons alors de développer un outil numérique prédisant la microstructure du matériau composite alimenté par des analyses expérimentales et pouvant servir à comprendre ses propriétés mécaniques.

### Objectifs du sujet

L'objectif de ce projet est de développer un modèle multi échelle mécanique de composites polymère /fibres en prenant en compte la microstructure sphérolitique ainsi que les interactions sphérolites/fibres sur le comportement macroscopique. Les résultats visés sont :

- L'extension de la méthode numérique de génération de microstructures sphérolitiques en présence de fibres (voir Figure 1b) au cas 3D ;
- L'identification des paramètres d'entrée du modèle par cristallisation isotherme à partir du fondu sous microscopie optique à lumière polarisée ;
- La validation de l'outil numérique à l'aide de calorimétrie différentielle à balayage et de diffraction des rayons X aux petits et grands angles ;
- Le développement d'un outil d'homogénéisation numérique utilisant le modèle de microstructures obtenus par l'outil de génération de croissance de sphérolites ;
- La validation du modèle mécanique à l'aide d'essais mécaniques.

## Méthode

Afin de mener à bien ce projet visant le développement d'outil de génération de microstructures, nous projetons d'étudier le poly(hydroxybutyrate-co-valérate) (PHBV) chargé avec des fibres de chanvres qui peut s'apparenter à un système modèle biosourcé et biodégradable cristallisant à relativement basse température (100 °C) et présentant des sphérolites de grandes dimensions. Ces deux caractéristiques facilitent grandement le suivi de la cristallisation par microscopie optique. Nous pensons qu'il est essentiel d'utiliser cette technique pour identifier les paramètres cinétiques du modèle de croissance des sphérolites et qui pourra ensuite être appliquée à d'autres systèmes composites.

Ensuite, nous envisageons de développer un outil numérique 3D pour générer les microstructures à différentes conditions de cristallisation. Cet outil est également capable de donner le taux de cristallinité en fonction du temps. Ces résultats permettront de valider les modèles en les comparant notamment aux analyses de cristallisation isotherme par calorimétrie différentielle à balayage ou par diffraction des rayons X. Nous prévoyons de mettre en œuvre cette démarche pour le PHBV seul, puis pour le PHBV chargé en fibres de chanvre.

Une fois l'outil numérique validé, nous prévoyons d'utiliser les microstructures ainsi générées pour déterminer les propriétés mécaniques du composite à l'aide de simulations par éléments finis. Les résultats obtenus seront comparés à des essais de traction réalisés sur des éprouvettes du composite.

Un tel outil original sera développé pour la première fois à notre connaissance.

## Place du projet dans la F2M

Le projet s'attachera à mettre en commun l'expertise de Fabrice Détrez sur la génération de microstructure de polymères [3] et les méthodes multi-échelles [4-7], ainsi que l'expertise de Sébastien Roland sur les caractérisations microstructurales des polymères [8,9] et sur les compétences partagées dans le domaine des polymères [3,5-9], tout en s'appuyant sur les compétences en méthodes numériques du laboratoire MSME et des moyens expérimentaux du laboratoire PIMM.

Si la méthodologie proposée s'avère fructueuse, nous disposerons d'outils très performants pour prédire les microstructures et les propriétés élastiques des composites. Ces outils serviront également à étudier les effets des variations des paramètres micro sur le comportement macro pour concevoir des composites à propriétés améliorées. Des débouchés pourraient émerger dans le domaine de l'aéronautique en étudiant par exemple d'autres systèmes comme les composites à base de poly(éthercétonecétone) (PEKK) chargé en fibres de carbone. Ce projet rentre donc dans l'immédiat dans les thématiques « approches multi-échelles », « matériaux hétérogènes » et « procédés ».

L'originalité du projet provient : (a) l'identification et la validation expérimentale du modèle de génération des sphérolites; (b) la prise en compte des microstructures sphérolitiques au niveau micro sur les propriétés homogénéisées numériquement; (c) la prédiction de la modification des sphérolites près des fibres et son influence sur le comportement mécanique.

## Moyens demandés : 50 k€

- Chercheur postdoctorant (12 mois) : 45 k€
- Consommables et participation à l'achat d'une platine chauffante : 5 k€

## Références

- [1] D. Raabe (2004) *Mesoscale simulation of spherulite growth during polymer crystallization by use of a cellular automaton*, **Acta Mat.**, 52, pp 2653
- [2] M. Spekowius, R. Spina and Ch. Hopmann (2016) *Mesoscale simulation of the solidification process in injection moulded parts*. **J Polym Eng.** 36, pp 563
- [3] F. Detrez, Y.-H. Gong, Y.-M. Luo, L. Chevalier (2015) *Phase Field Theory of Nucleation and Polymer Spherulite Pattern Formation*, **15th European Mechanics of Materials Conference** (Brussels)
- [4] F. Detrez, O. Castelnau, P. Cordier, S. Merkel & P. Raterron (2015) *Effective viscoplastic behavior of polycrystalline aggregates lacking four independent slip systems inferred from homogenization methods; application to olivine*. **J. Mech. Phys. Solids.**, 83, pp 199
- [5] F. Detrez, S. Cantournet, R. Séguéla. (2011) *Plasticity/damage coupling in semi-crystalline polymers: micromechanisms and damage law identification*. **Polymer**, 52, pp 1998
- [6] F. Detrez, S. Cantournet, R. Séguéla. (2010) *A constitutive model for semi-crystalline polymer deformation involving lamellar fragmentation*. **C. R. Mécanique**, 338, pp 681
- [7] X. Lu, J. Yvonnet, F. Detrez, J. Bai (2017) *Multiscale modeling of nonlinear electric conductivity in graphene-reinforced nanocomposites taking into account tunnelling effect*. **J. Comput. Phys.**, 337, pp 116.
- [8] S. Roland, G. Miquelard-Garnier, A. Guinault, M. Gervais, C. Sollogoub (2016) *Controlling the order of triblock copolymer via confinement induced by forced self-assembly*. **Mater. Today Commun.**, 6, pp 37
- [9] S. Roland, D. Gaspard, R. E. Prud'homme, C. G. Bazuin (2012) *Morphology Evolution in Slowly Dip-Coated Supramolecular PS-b-P4VP Thin Films*. **Macromolecules**, 45, pp 5463