



Université Claude Bernard



DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **6 mars 2018**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **WANG Yang**

Titre de la thèse : « La rhéologie d'un modèle d'agrégats polymères nanocomposites ».



Résumé

Les nanocomposites polymères ont fait l'objet de recherches académiques et industrielles au cours des dernières décennies, du fait de leurs remarquables propriétés mécaniques et rhéologiques comparés aux polymères purs. En particulier, ils présentent du renforcement pour des fractions volumiques modérées, et des effets non linéaires pour des déformations relativement faibles. Malgré des décennies de recherche, la relation entre la rhéologie et la structure des nanocomposites est loin d'être comprise. Les simulations atomistiques peuvent donner une vision détaillée de l'interaction entre la dynamique des chaînes polymères et les charges renforçantes à une échelle locale. Cependant, il est difficile d'aborder les propriétés émergentes à une échelle mésoscopique, par exemple, simuler un grand nombre d'agrégats dans une matrice polymère enchevêtrée reste toujours hors de portée.

Dans ce travail, nous proposons un modèle mésoscopique pour simuler la rhéologie des nanocomposites avec un fluide simple ou une matrice polymère enchevêtrée, en utilisant la dynamique brownienne et la dynamique généralisée de Langevin, respectivement. Dans les deux dynamiques, le mouvement des chaînes de polymère n'est pas décrit de façon explicite et son effet sur la dynamique de la charge est « moyenné ». En utilisant ce modèle, nous étudions l'influence du type de charge, de leur taille, morphologie, et fraction volumique sur la rhéologie du composite modèle, ainsi que la morphologie des charges dans les simulations.

Un cas particulièrement intéressant est celui d'agrégats quasi-fractals, qui peuvent être flexibles ou bien rigides. Nous démontrons que les systèmes avec agrégats présentent un renforcement significatif, qui augmente avec la taille des agrégats, leur rigidité, leur fraction volumique et leur polydispersité en taille. Une relaxation lente est également mise en évidence, et nous montrons qu'elle est liée à la rotation lente des agrégats. L'effet Payne, associé à la réponse non linéaire des modules dynamiques avec l'amplitude de déformation de cisaillement, est également observé pour nos modèles de composites. Nous faisons le lien entre l'arrangement microscopique des charges sous cisaillement et les propriétés macroscopiques du composite.

Mots-clés:

Polymères nanocomposites, renforcement, rhéologie, viscoélasticité, dynamique brownienne, dynamique de Langevin généralisée