

## COMPORTEMENT DYNAMIQUES DES POLYMERES CHARGÉS ET NON CHARGÉS : EXPÉRIMENTATION ET MODÉLISATION PAR UNE APPROCHE MICRO MACRO

N. Bahlouli, S. Ahzi, *ICube, Université de Strasbourg, CNRS, 2 rue Bousingault, F-67000 Strasbourg. Téléphone : 03 68 85 29 54, Télécopie : 03 68 85 29 36, [nadia.bahlouli@unistra.fr](mailto:nadia.bahlouli@unistra.fr), [said.ahzi@unistra.fr](mailto:said.ahzi@unistra.fr)*

K. Wang, *Department of Advanced Materials and Structures, Public Research Center Henri Tudor, 66 Rue de Luxembourg, L-4221 Esch-sur-Alzette, Luxembourg. Téléphone : +352 42 59 91 - 4477, Télécopie : (+352) 42 59 91 3399, [Kui.Wang@tudor.lu](mailto:Kui.Wang@tudor.lu)*

R. Matadi, *National Engineering School of Metz, Laboratory of Mechanics, Biomechanics, Polymers and Structures, 1 route d'Ars Laquenexy cs6582, 57078 Metz Cedex 3, France. [matadi@enim.fr](mailto:matadi@enim.fr)*

**Mots clés : polypropylène, composite particulaire, dynamique, hopkinson, température**

Le but de cette étude est de présenter le lien entre la microstructure des polymères chargés avec différents types de particules et le comportement macroscopique. Les matériaux étudiés sont des polypropylènes chargés de particules rigides, du talc et des particules souples : des nodules d'élastomères. Les nodules considérés se composaient de copolymère d'éthylène d'octane (EOC) et de talc. Le taux de charge étudié était de 0, 10 et 20 % en masse. Nous avons caractérisé les matériaux d'un point de vue thermomécanique, physique et rhéologique. Nos matériaux étant utilisés dans l'industrie automobile et donc soumis à des sollicitations dynamiques, le but est aussi de simuler le comportement au choc de pare-chocs. Des essais de compression dynamiques ont été réalisés sur un système de barre d'Hopkinson développé au sein de notre équipe. Deux enceintes thermiques ont aussi été ajoutées à ce système pour effectuer des essais en température. Le comportement dynamique a été étudié à l'aide de barres de Hopkinson, à différentes vitesses de déformation et à des températures différentes. Nous avons constaté que le PP pur et les composites PP/talc sont fragiles à basse température. L'ajout d'inclusions élastomériques a amélioré la résistance des matériaux aux chocs. Les propriétés dynamiques ont été mises en corrélation avec les études morphologiques des composites étudiés à l'aide de la microscopie optique (OM). Les mécanismes de déformations ont été identifiés grâce aux analyses post mortem par MEB. Une approche micromécanique a enfin été utilisée pour modéliser l'évolution de la contrainte seuil en fonction de la vitesse de déformation et de la température est proposée.

### 1. MATERIAUX ET METHODES

Récemment, un nouveau grade de copolymère éthylène alpha-oléfin (copolymère octène ou ECO) a été développé. L'EOC est un copolymère non polaire et tend à remplacer les élastomères conventionnels pour le renforcement de la matrice de polypropylène. Il présente une meilleure compatibilité avec le polypropylène par rapport aux copolymères d'éthylène polaires. Ce nouveau système, le PP/EOC, remplace un matériau à base de polypropylène choc (référéncé chez SABIC®PP sous la dénomination de grade 108MF97) (Pessey et al., Bahlouli et al.). L'EOC a de meilleures propriétés de traitement car sa masse moléculaire est inférieure à celles de l'EPDM (éthylène-propylène-diène monomère) et de l'EPR (éthylène-propylène-rubber). Ce PP/EOC est caractérisé par des propriétés remarquables en rigidité et en dureté en comparaison avec d'autres thermoplastiques oléfin (TPOs) de même concentration en élastomère. Enfin, il doit être mentionné que les composites PP/EOC présentent une excellente résistance aux intempéries et une aptitude à la peinture élevée. Toutes ces raisons impliquent que l'EOC est la prochaine génération de

modificateur de TPO. Nous nous proposons donc de caractériser et d'identifier les mécanismes de dégradations thermomécaniques de ce nouveau système PP/EOC au cours de chargements thermomécaniques dynamiques, et ceci pour différents taux d'EOC dans le PP. Les différentes techniques expérimentales pour identifier ces mécanismes sont : la mesure de l'indice de fluidité (MFI), l'analyse thermogravimétrique (ATG), la spectroscopie infra rouge à transformée de Fourier (IRTF). On suppose que les mécanismes de dégradations modifient les propriétés physiques des matériaux. Pour cela, les analyses suivantes ont été réalisées : de l'analyse calorimétrique différentielle (DSC), de la diffraction aux rayons X aux grands angles (WAXS) et de l'observation au microscope électronique à balayage (MEB). La viscoélasticité des différents matériaux a été étudiée en réalisant des essais de DMA. Les différentes transitions ont ainsi pu être réalisées et une comparaison entre les modules de conservations et les modules d'Young des essais macro a été faite. D'un point de vue macroscopique, des essais de traction et de compression dynamiques ont été réalisés. Les essais ont été réalisés sur une large gamme de vitesses et de températures.

Pour préparer des composites, des copolymères d'éthylène et d'octène (formation nodules d'élastomère dans la matrice PP, 0 wt. %, 10 wt. %, and 20 wt. %) et des particules de talc (0 wt. %, 10 wt. %, and 20 wt. %) sont mélangés avec le polypropylène dans un malaxeur BUSS extrudeuse à 200 °C et à 50 tours par minute. L'extrusion a été réalisée avec une mono-vis sous condition atmosphérique. Les filaments fondus obtenus de composites ont été trempés dans un bain d'eau froide. Un granulateur rapide a été utilisé pour couper les filaments réfrigérés. Les granulés obtenus sont séchés dans un four à circulation d'air pendant 60 min pour éliminer l'eau et, par conséquent, pour réduire l'humidité pour l'étape suivante. Enfin, les échantillons de traction pour tous les matériaux sont injectés grâce à une machine de moulage avec une température autour 200 °C et une vitesse de rotation de vis à 180 tours par minute.

## 2. RESULTATS ET DISCUSSION

Comme décrit dans l'introduction, nous avons mené une approche multi-physique pour étudier les propriétés des composites particulières à base de PP.

Dans un premier temps, nous avons analysé la morphologie des matériaux lors de l'ajout des charges dans le polypropylène. Une première constatation est la bonne homogénéité de la répartition des particules au sein du PP comme le montre la figure 1. Nous avons ainsi pu déterminer les facteurs de formes qui seront utiles lors du développement de modélisation du comportement mécanique.

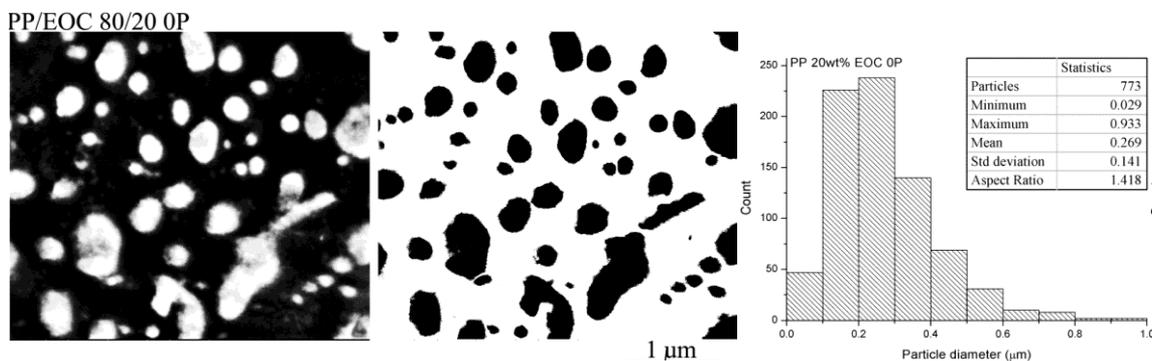


Figure 1: Micrographie au MEB du PP/EOC 80/20 non recyclé (0P) enregistrée pour un grossissement important, image initiale (gauche) et image seuillée (droite). Statistiques concernant la distribution des tailles des inclusions d'EOC dans le cas des non-recyclés (0P) du PP/EOC 80/20

Ces matériaux à base de PP sont généralement utilisés dans la fabrication de pare-chocs où les taux de chargement sont élevés et sont appliqués sur une large gamme de températures et de vitesses. Dans ce cas, une étude détaillée de la sensibilité des matériaux à grande vitesse de

déformation et à température différente a été réalisée. Dans nos études, on a réalisé des essais dynamiques en compression sur un système de barres d'Hopkinson pour des températures variant de  $-30^{\circ}\text{C}$  à  $85^{\circ}\text{C}$  ( $-30^{\circ}\text{C}$ ,  $0^{\circ}\text{C}$ ,  $25^{\circ}\text{C}$ ,  $50^{\circ}\text{C}$  et  $85^{\circ}\text{C}$ ) et pour des vitesses de déformation allant de  $592\text{ s}^{-1}$  à  $3346\text{ s}^{-1}$  ( $592\text{ s}^{-1}$ ,  $1276\text{ s}^{-1}$ ,  $2221\text{ s}^{-1}$  et  $3346\text{ s}^{-1}$ ).

Les résultats de comportement dynamique de matériaux ont montré que les composites à base de PP sont sensibles à la vitesse de déformation et à la température (figure 3). Le PP pur et le PP/talc ont un comportement fragile à  $-30^{\circ}\text{C}$  et  $0^{\circ}\text{C}$ . Mais le PP/EOC et PP/EOC/talc composites ont montré une meilleure tenue aux chocs aux mêmes températures car la présence des nodules d'EOC augmente la ductilité du matériau. L'addition d'EOC a diminué la contrainte seuil et le module d'élasticité des matériaux tandis que la présence de talc a augmenté le module d'élasticité du PP. Toutefois, la contrainte seuil pour le PP/talc 80/20 (20 wt.% talc) était inférieure à celle du PP/talc 90/10 (10 wt.% talc) (figure 4). En effet, les endommagements observés sont plus importants : par exemple, la décohésion de l'interface matrice/charge dans le PP/talc 80/20 lors du test de traction a été observée par MEB.

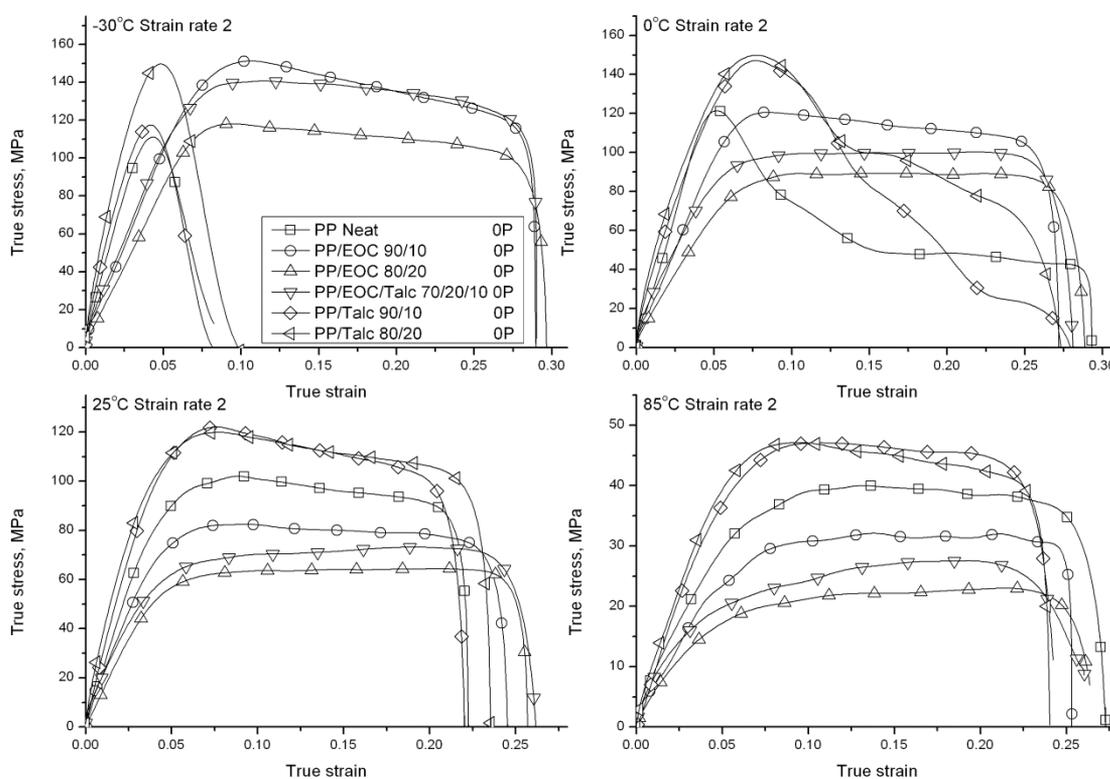


Figure 3 : Influence des particules d'élastomères et de talc sur le comportement en compression dynamique du polypropylène pour différentes températures d'essais.

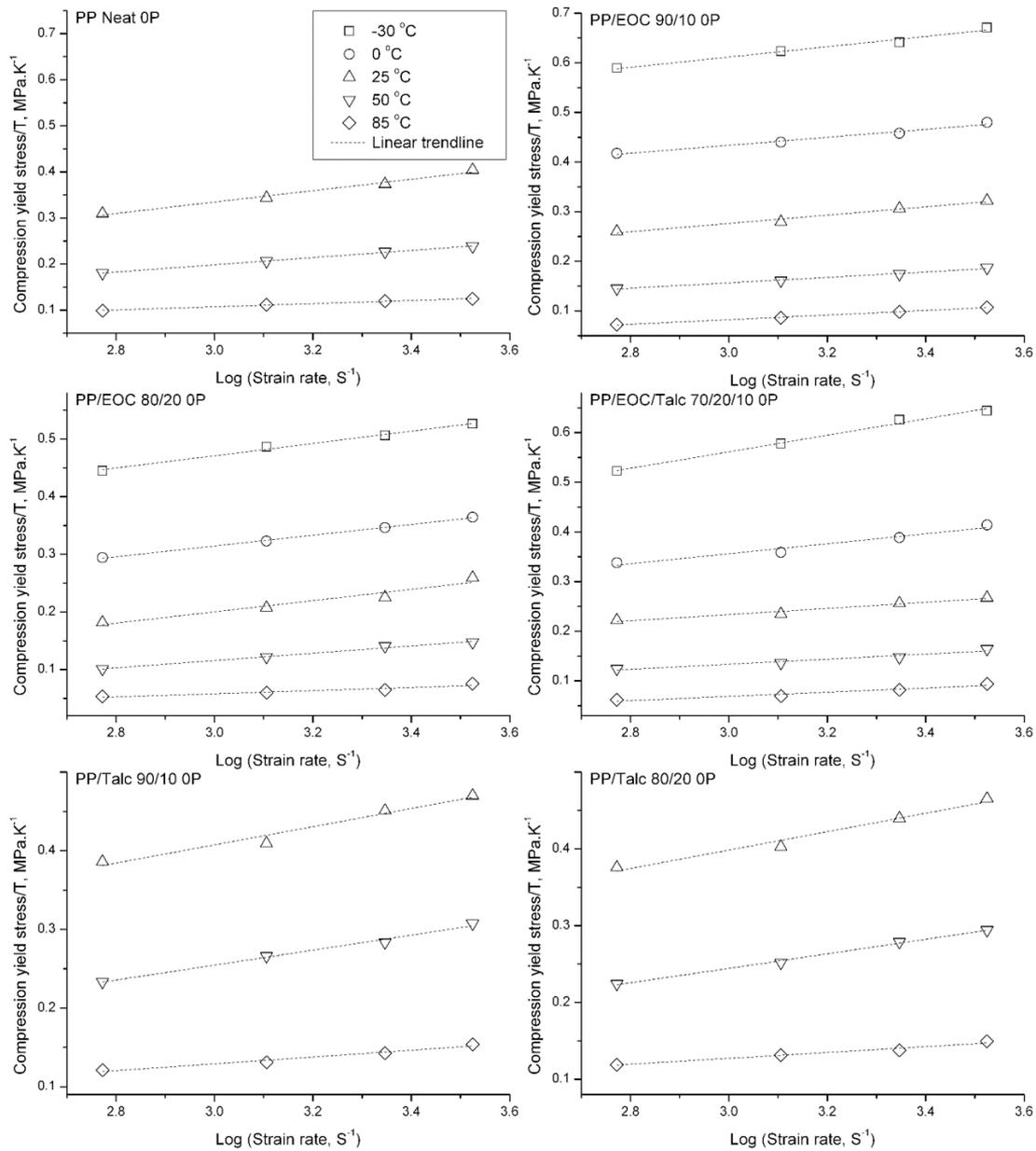


Figure 4 : Contrainte seuil/température des différents systèmes testés en compression dynamique pour différentes températures et vitesses de compression

Tous les essais dynamiques réalisés ont permis d'établir une base de données pour alimenter des codes de calculs. Le but recherché est de tenir compte des effets de vitesse et de température lors des designs des pièces en polymères chargés. C'est la raison pour laquelle nous avons développés des modèles micromécaniques dans lesquels nous avons intégré les paramètres permettant de décrire l'effet du pourcentage de charge sur la contrainte seuil et le module d'élasticité comme décrit figure 4. Les effets de vitesse et de température sont aussi décrits dans ces modèles. Un bon accord entre les prédictions du modèle et les données expérimentales ont été obtenus pour tous les composites à base de PP (figure 5).

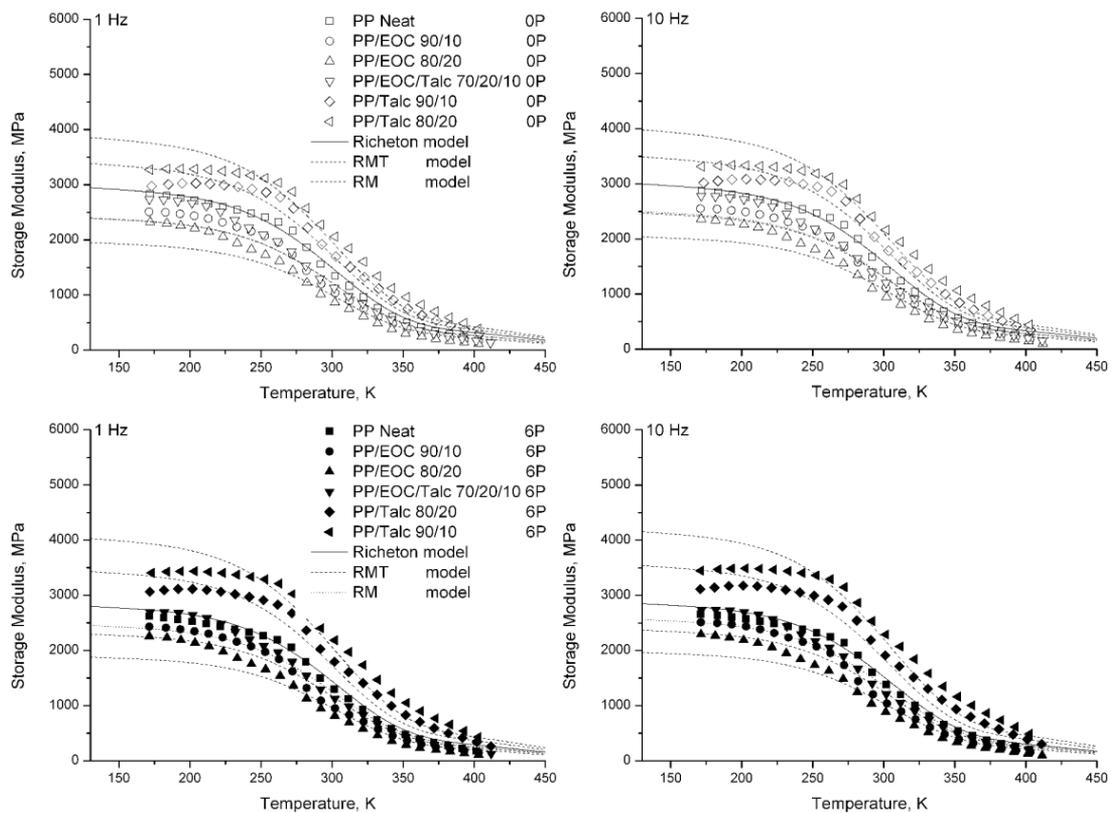


Figure 5: Comparaison essai/ modélisation (à partir des mesures de DMA) du module de conservation du non-recyclé (0P) et du recyclé (6P) pour le PP, le PP/EOC, le PP/talc et le PP/EOC/talc.

## REMERCIEMENTS

Les auteurs tiennent à remercier la Région Alsace, l'ADEME, ainsi que le Fond National de la Recherche du Luxembourg pour leur soutien financier.

## REFERENCES

- Bahlouli N, Pessey D, Raveyre C, Guillet J, Ahzi S, Dahoun A, Hiver JM. "Recycling effects on the rheological and thermomechanical properties of polypropylene-based composites. *Materials and Design*. 33, (2012), pp.451-458.
- Othman N., Ismail H. Mariatti M., "Effect of compatibilisers on mechanical and thermal properties of bentonite filled polypropylene composites", *Polymer Degradation and stability*, 91 (2006) 1761-1774.
- Pessey D, Bahlouli N, Ahzi S, Khaleel M. Strain rate effects on the mechanical response of polypropylene-based composites deformed at small strains. *Polymer Science Series A*. 50, (2008), pp.690-697.
- Pessey D, Bahlouli N, Pattofatto S, Ahzi S. "Polymer composites for the automotive industry: Characterisation of the recycling effect on the strain rate sensitivity". *International Journal of Crashworthiness*. 13, (2008), pp.411-424.

- Pessey D, Bahlouli N, Raveyre C, Guillet J, Ahzi S, Hiver J-M, Dahoun A. "Characterization of Contamination Effects for Two Polypropylene-Based Materials". *Polymer Engineering and Science*. 50, (2010); pp.1-9.
- Rogueda-Berriet C, Bahlouli N, Pessey D, Rémond Y. "Mechanical behavior of recycled polypropylene composites under tensile, bending, and creep loading: Experimental and modeling." *Journal of Engineering Materials and Technology*.133, (2011), pp.030907.
- Wang, K., Addiego, F., Bahlouli, N., Ahzi, S., Rémond, Y., Toniazzo, V., Muller, R., "Analysis of thermomechanical reprocessing effects on polypropylene/ethylene octene copolymer blends", *Polymer Degradation and Stability* 97 (8) (2012), pp. 1475-1484
- Wang, K., Bahlouli, N., Addiego, F., Ahzi, S., Rémond, Y., Ruch, D., Muller, R., "Effect of talc content on the degradation of re-extruded polypropylene/talc composites", *Polymer Degradation and Stability*, 98 (7), 2013, pp. 1275-1286.

## REFERENCES

- Gens A., Alonso E. E. et Hight D. W., "Special problem soils: general review", *Int. J. of Something*, **35**, 2, (2004), pp. 152-859.
- Wu Y. & Zhong X., "The mathematics of telephone numbers", *Annals of Improbable Research*, **1**, 5, (1995), pp. 162-163.
- Wang K., Addiego F., Bahlouli N., Ahzi S., Rémond Y., Toniazzo V., Muller R., "Analysis of thermomechanical reprocessing effects on polypropylene/ethylene octene copolymer blends", *Polymer Degradation and Stability*, **97** (2012), pp. 1475-1484,
- [2] K. Wang, N. Bahlouli, F. Addiego, S. Ahzi, Y. Rémond, D. Ruch, R. Muller, Effect of talc content on the degradation of re-extruded polypropylene/talc composites, *Polymer Degradation and Stability*, Vol. 98, pp. 1275-1286, 2013.
- [3] N. Bahlouli, D. Pessey, C. Raveyre, J. Guillet, S. Ahzi, A. Dahoun, J.M. Hiver, Recycling effects on the rheological and thermomechanical properties of polypropylene-based composites, *Materials and Design*, Vol. 33, pp. 451-458, 2012.
- [4] C. Rogueda-Berriet, N. Bahlouli, D. Pessey, Y. Rémond, Mechanical behavior of recycled polypropylene composites under tensile, bending, and creep loading: Experimental and modeling, *Journal of Engineering Materials and Technology*, Vol. 133, pp. 030907, 2011.
- [5] D. Pessey, N. Bahlouli, C. Raveyre, J. Guillet, S. Ahzi, J.-M. Hiver, A. Dahoun, Characterization of Contamination Effects for Two Polypropylene-Based Materials, *Polymer Engineering and Science*, Vol. 50, pp. 1-9, 2010.
- [6] D. Pessey, N. Bahlouli, S. Pattofatto, S. Ahzi, Polymer composites for the automotive industry: Characterisation of the recycling effect on the strain rate sensitivity, *International Journal of Crashworthiness*, Vol. 13, pp. 411-424, 2008.
- [7] D. Pessey, N. Bahlouli, S. Ahzi, M. Khaleel, Strain rate effects on the mechanical response of polypropylene-based composites deformed at small strains, *Polymer Science Series A*, Vol. 50, pp. 690-697, 2008.