

# Modélisation stochastique continue et identification inverse d'interphases aléatoires à partir de simulations atomistiques

T.-T. LE<sup>a</sup>, J. GUILLEMINOT<sup>a</sup>, C. SOIZE<sup>a</sup>,

a. Laboratoire Modélisation et Simulation Multi Echelle, MSME UMR 8208 CNRS,  
Université Paris-Est, 5 bd Descartes, 77454 Marne-la-Vallée, France  
Email : Thinh-Tien.Le@univ-paris-est.fr

## Résumé :

*Dans ce travail, nous nous intéressons à la modélisation stochastique continue d'une interphase aléatoire dans une matrice polymère renforcée par une ou plusieurs inclusions nanoscopiques, ainsi qu'à l'identification statistique inverse du modèle sur la base de simulations atomistiques [1]. Des simulations par dynamique moléculaire sont tout d'abord conduites sur un nanocomposite prototypique. Ces simulations permettent d'une part d'extraire certaines caractéristiques de conformation des chaînes polymères proches des hétérogénéités, et d'autre part d'estimer des réalisations des propriétés élastiques apparentes de plusieurs configurations initiales. Sur la base des résultats obtenus, un modèle informationnel de champs aléatoires est proposé afin de modéliser l'élasticité dans la zone d'interphase. Les paramètres du modèle probabiliste sont alors identifiés par le principe du maximum de vraisemblance formulé sur les propriétés apparentes. L'incidence des propriétés aléatoires sur les propriétés effectives du nanocomposite est enfin caractérisée à l'aide d'un solveur d'homogénéisation stochastique adapté.*

**Mots clés : champs aléatoires, dynamique moléculaire, interphase, modèle probabiliste, nano-composite, maximum d'entropie.**

## 1 Introduction

Dans ce travail, nous considérons la modélisation continue stochastique de la zone d'interphase présente autour des inclusions nanoscopiques. La présence de cette zone de matrice perturbée autour des hétérogénéités a été mise en évidence par des résultats expérimentaux [2, 3] et numériques [4, 5, 6]. Des simulations par dynamique moléculaire sont tout d'abord conduites sur un nanocomposite composé d'un polymère linéaire amorphe renforcé par des inclusions de Silice. Ces simulations permettent d'une part d'extraire certaines caractéristiques de conformation des chaînes au voisinage des inclusions (comme l'orientation locale, ou encore la densité), et d'autre part d'estimer des réalisations des propriétés élastiques apparentes de plusieurs configurations initiales. Ces dernières sont obtenus, sous conditions NPT, au travers d'essais mécaniques virtuels (voir la figure 1). On montre ainsi que le champ des rigidités dans l'interphase peut être modélisé par un champ aléatoire localement isotrope transverse en coordonnées sphériques.

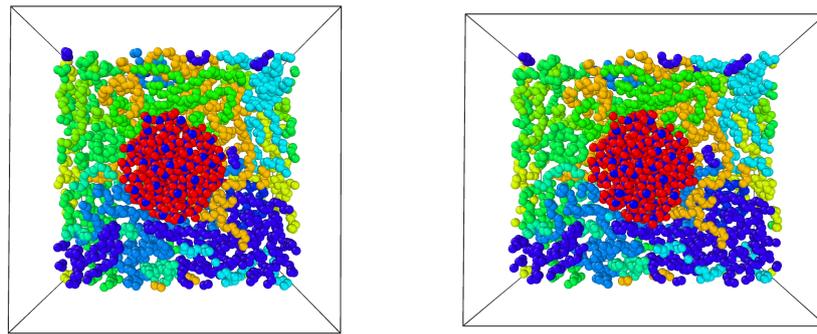


FIGURE 1 – Essai virtuel en dynamique moléculaire pour la détermination des propriétés apparentes du nanocomposite : état initial (gauche) et état déformé à 10% (droite) lors d'un essai de traction.

## 2 Modélisation probabiliste et identification inverse

Le modèle informationnel de champ aléatoire développé dans [7] est alors mis en oeuvre afin de représenter l'élasticité dans l'interphase. Les paramètres du modèle probabiliste (essentiellement, un paramètre contrôlant le niveau des fluctuations statistiques et les longueurs de corrélation radiale et angulaires) sont alors identifiés par le principe du maximum de vraisemblance formulé sur les propriétés apparentes. On montre que les paramètres associés à la structure de corrélation sont du même ordre de grandeur que certaines propriétés caractéristiques du système, telles que l'épaisseur de l'interphase ou la longueur moyenne des chaînes exhibant une orientation tangentielle par rapport à la normale sortante à la surface extérieure de l'inclusion. L'incidence des propriétés aléatoires sur les propriétés effectives du nanocomposite est enfin caractérisée à l'aide d'un solveur d'homogénéisation stochastique avec des conditions de contraintes homogènes au contour.

## Références

- [1] T.-T. Le, J. Guilleminot, C. Soize, Stochastic continuum modeling of random interphases from atomistic simulations. Application to a polymer nanocomposite, submitted (2015)
- [2] J. Berriot, F. Lequeux, L. Monnerie, H. Montes, D. Long, P. Sotta, Filler-elastomer interaction in model filled rubbers, a  $^1\text{H}$  NMR study, *Journal of Non-Crystalline Solids*, 307-310 (2002) 719–724.
- [3] S. E. Harton, S. K. Kumar, H. Yang, T. Koga, K. Hicks, H. Lee, J. Mijovic, M. Liu, R. S. Vallery, D. W. Gidley, Immobilized polymer layers on spherical nanoparticles, *Macromolecules*, 43(7) (2010) 3415–3421.
- [4] D. Brown, V. Marcadon, P. Mélé and N. D. Albérola, Effect of filler particle size on the properties of model nanocomposites, *Macromolecules*, 41(4) (2008) 1499–1511.
- [5] A. Ghanbari, T. V. M. Ndoro, F. Leroy, M. Rahimi, M. C. Böhm, F. Müller-Plathe, Interphase structure in silica-polystyrene nanocomposites : a coarse-grained Molecular Dynamics study, *Macromolecules*, 45(1) (2012) 572–584.
- [6] G. G. Vogiatzis, E. Voyiatzis, D. N. Theodorou, Monte Carlo simulations of a coarse grained model for an athermal all-polystyrene nanocomposite system, *European Polymer Journal*, 47(4) (2011) 699–712.

- [7] J. Guilleminot, C. Soize, Stochastic model and generator for random fields with symmetry properties : application to the mesoscopic modeling of elastic random media, *SIAM Multiscale Modeling & Simulation*, 11(3) (2013) 840–870.