

# Guillaume MIQUELARD-GARNIER

Maître de Conférences CNAM (depuis septembre 2010)  
Habilitation à Diriger des Recherches (depuis septembre 2017)  
Laboratoire PIMM, UMR 8006  
ENSAM, 151 boulevard de l'Hôpital  
75013 Paris, France  
(+33) (0)1 71 93 65 72  
[guillaume.miquelardgarnier@lecnam.net](mailto:guillaume.miquelardgarnier@lecnam.net)  
<https://pimm.artsetmetiers.fr/user/136>

## Thématique générale de recherche :

**Interfaces dans les matériaux polymères : de la maîtrise à l'échelle nanométrique aux propriétés dans les mélanges thermoplastiques et composites à matrice thermoplastique.**

**Mots clés :** Interfaces ; matériaux nanostructurés ; relations structure-propriétés ; coextrusion multinanocouches ; composites ; nanocomposites ; procédés innovants

**On peut résumer le travail de recherche entrepris depuis 10 ans en trois axes principaux :**

1. Le premier a pour but de développer la **maîtrise d'un procédé innovant de mise en œuvre des thermoplastiques, la coextrusion multinanocouches** (voir figure 1). Cette thématique a été initiée un an avant mon arrivée par C. Sollogoub et A. Guinault et nous avons consacré beaucoup de temps à la consolider dans un premier temps (avant 2014) puis à la faire fructifier ensuite, l'équipe étant désormais largement reconnue sur cette thématique.

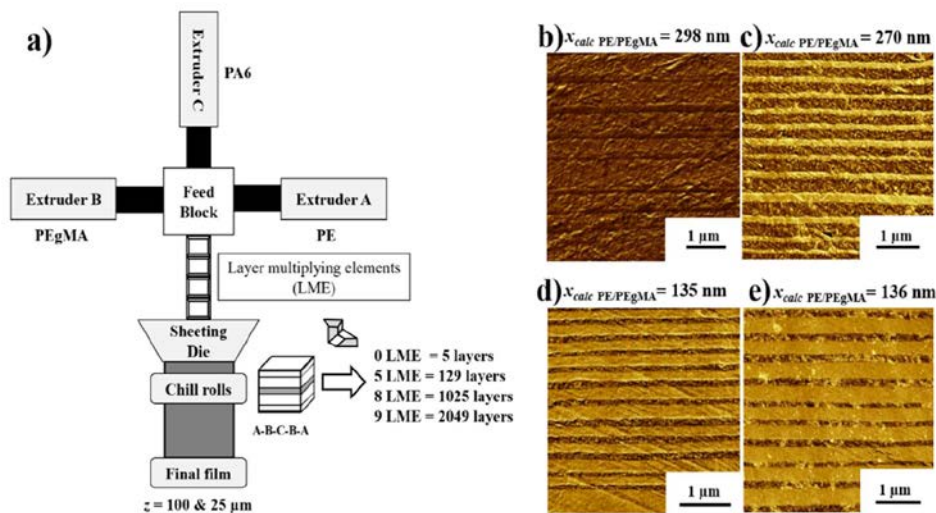


Figure 1 : (a) principe de la coextrusion multinanocouches. On utilise des éléments multiplicateurs de couches (EMC ou en anglais LME : layer multiplying elements) pour diviser et recombinaer le flux de 2 ou, comme dans le schéma, 3 polymères, dans un canal d'épaisseur constante. Ainsi, le passage par chaque EMC permet de multiplier le nombre de couches du flux de matières par deux, et donc de diviser leur épaisseur individuelle par deux. Avec une dizaine d'EMC, on obtient en sortie de filière un film constitué de milliers de couches alternées d'épaisseurs nanométriques (observation dans l'épaisseur par microscopie à force atomique : b ; c ; d ; e) dont l'épaisseur est gouvernée par l'épaisseur totale du film, le nombre de couches, et la fraction volumique des polymères.

Ce projet est aujourd'hui divisé en deux approches, l'une plus fondamentale autour de la compréhension de mécanismes interfaciaux en lien avec les propriétés macroscopiques, et l'autre à visée plus applicative autour de la mise en œuvre de matériaux nanostructurés à propriétés améliorées.

1.1. Dans le cadre des études plus appliquées, **on cherche à développer des matériaux aux propriétés améliorées en jouant sur le confinement des polymères à l'échelle nanométrique et sur la multiplication des interfaces dans le matériau.** Par exemple, un travail récent a porté sur l'étude de l'auto-assemblage de copolymères blocs via cet outil dit « d'assemblage forcé », et sur les effets potentiels de cet auto-assemblage sur le renfort mécanique (résistance à la fracture) de matrices vitreuses.

On peut également mentionner des études sur la mise en œuvre de nanocomposites thermoplastiques par coextrusion multinanocouches, cet outil ayant un potentiel pour mieux distribuer et orienter les nanocharges (à faible taux de charge), conduisant à des propriétés mécaniques et/ou barrière aux gaz substantiellement améliorées.

1.2. Dans l'approche fondamentale, développée surtout au cours de ces cinq dernières années, on a développé **des méthodes d'analyse ainsi que des dispositifs expérimentaux pour comprendre l'origine des instabilités et ruptures de couches se produisant au cours du procédé,** notamment lorsque l'on cherchait à atteindre des épaisseurs de couche de l'ordre de 10 nm (voir figure 2). Nous avons montré que ces mécanismes de rupture étaient indépendants des paramètres procédés et présentaient des analogies fortes avec les mécanismes régissant le démouillage de films minces de polymères.

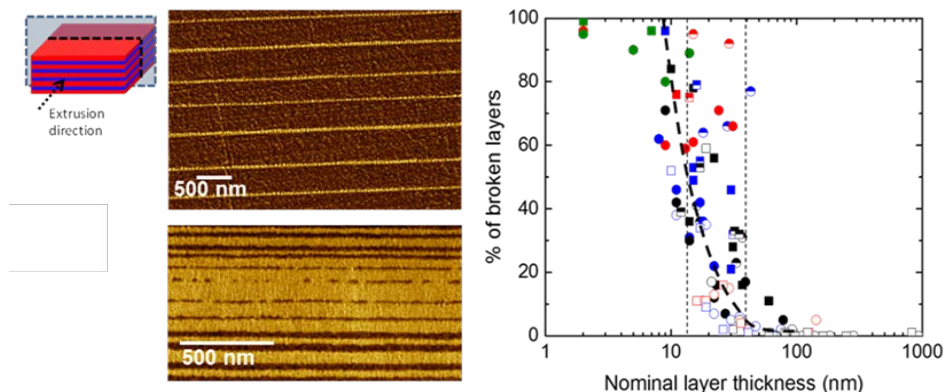


Figure 2 : lorsque les couches sont suffisamment épaisses, elles restent continues (observation du haut par AFM). Lorsqu'on cherche à pousser le procédé à ses limites, certaines couches, trop fines, se rompent (observation du bas). La courbe de droite dessine une courbe maîtresse du pourcentage de couches rompues pour une épaisseur visée donnée, chaque condition expérimentale étant défini par un symbole donné. On voit que si l'épaisseur visée est supérieure à 50 nm, les couches sont continues quelles que soient les conditions de procédé. Si l'on cherche à obtenir des couches inférieures à 20 nm, au contraire, quelles que soient ces conditions quasiment l'intégralité des couches est rompue.

Nous avons émis l'hypothèse que les ruptures avaient comme origine les forces déstabilisatrices de van der Waals à longue portée. Ce travail a eu lieu principalement dans le cadre du projet investissement d'avenir Isocel porté par Arkema autour de la thèse d'A. Bironeau, puis a débouché sur deux collaborations académiques, l'une avec des physiciens de la matière molle (J. McGraw, F. Restagno et T. Salez) pour développer des expériences modèles sur les cinétiques de démouillage de films minces au sein de matrices immiscibles, l'autre avec l'équipe du Professeur Baer à Case Reserve Western University, pionnière de la coextrusion multinanocouches, sur la caractérisation fine des ruptures de couches.

Plus récemment, on a cherché à caractériser, dans le cadre du post-doctorat de Q. Beuguel, les propriétés rhéologiques d'interfaces compatibilisées dans ces systèmes multicouches.

**2. Le second axe a pour but l'étude des relations structure-propriétés dans les composites et nanocomposites, notamment en prenant en compte l'influence de la mise en œuvre, mais aussi le vieillissement.** Les problématiques d'interface sont en effet fondamentales dans les composites, et ce à plusieurs échelles : des mécanismes d'interdiffusion de chaînes jusqu'aux réorientation/redistribution ou endommagement de fibres, recristallisation ou transcrystallinité, cavitation, décohésion fibres/matrice...

Cette thématique a débuté en janvier 2017 via un partenariat CIFRE avec Renault et l'école des Mines (thèse d'E. Mofakhami soutenue en 2020) sur la compréhension des relations structure-propriétés (notamment en termes de propriétés mécaniques à petites et grandes déformations) d'assemblages soudés, au niveau de la zone de soudure, de matrices thermoplastiques renforcées par des fibres de verre, en fonction des paramètres de soudure mais aussi de la formulation du composite.

Dans le cadre de cette étude, nous avons développé une méthodologie autour de la microtomographie de rayons X à haute résolution (ligne Anatomix Soleil, responsable T. Weitkamp), qui s'avère très prometteuse pour corrélérer de manière fine la microstructure du composite à ses propriétés mécaniques. On a pu montrer que la réorientation des fibres et la présence de cavités modifient le comportement mécanique de la zone soudée (voir figure 3).

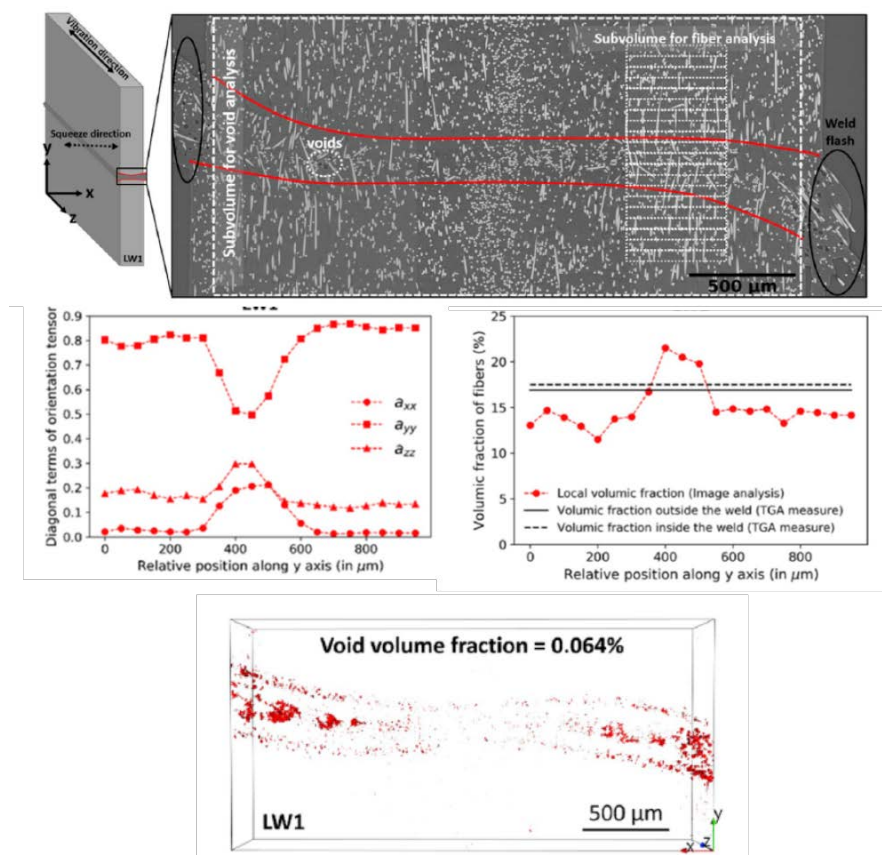


Figure 3 : microtomographie d'une plaque soudée PA6/30% en masse de fibres de verre courtes et analyses en volume de l'échantillon hors et dans la zone soudée (orientation des fibres, fraction de fibres, fraction de cavités).

Une première ébauche de modélisation a permis de caractériser une redistribution locale de la contrainte liée au confinement géométrique induit par la présence de la zone soudée. Des recommandations sur le procédé de soudage ainsi que sur le choix de la matière ont pu alors être avancées pour augmenter la tenue des soudures. Le partenariat se poursuit sur les aspects de couplage entre vieillissement chimique et vieillissement physique des thermoplastiques renforcés (thèse de S. Lottier, débutée en 2020, en collaboration avec N. Saintier de l’I2M).

Je participe également au consortium HAICOPAS (PIA piloté par Hexcel, en partenariat avec Arkema, et porté au niveau du PIMM par I. Iliopoulos). Via une thèse débutée fin 2019 et co-dirigée par G. Régnier, on cherche à mieux comprendre les mécanismes physiques mis en jeu lors de la consolidation de nappes de fibres de carbone continues liées par un thermoplastique haute performance, le polyetherethercétone PEKK (« pré-imprégnés » avec 60 % en volume de fibres de carbone).

**3. Le troisième axe (principalement actif de 2010 à 2016) cherchait à maîtriser les surfaces élastomères, en couplant des méthodes de texturation de surface innovantes et de chimie de surface.** L’enjeu était de modifier les propriétés de mouillage d’élastomère sans affecter leurs propriétés mécaniques afin de développer des surfaces modèles pour une meilleure compréhension des mécanismes de l’adhésion, de la friction et du mouillage à des échelles submicroniques. Ce projet s’est inspiré de travaux développés pendant mon post-doctorat à l’Université du Massachusetts (2008-2010) et poursuivis au cours de l’ANR WAFPI (2011-2016) portée par le LPS (C. Poulard, F. Restagno, L. Léger).

#### Quelques publications représentatives récentes :

1. Mofakhami E., Tencé-Girault S., Perrin J., Scheel M., Gervat L., Ovalle C., Laiarinandrasana L., Fayolle B., Miquelard-Garnier G.\* “Microstructure-mechanical properties relationships in vibration welded glass-fiber-reinforced polyamide 66: A high-resolution X-ray microtomography study”, *Polymer Testing*, **2020**, 85, 106454.
2. Beuguel Q.\*, Guinault A., Léger L., Restagno F., Sollogoub C., Miquelard-Garnier G.\* “Nanorheology with a Conventional Rheometer: Probing the Interfacial Properties in Compatibilized Multinanolayer Polymer Films”, *ACS Macro Letters*, **2019**, 8, 1309-1315.
3. Chebil M.S., McGraw J.D.\*, Salez T., Sollogoub C., Miquelard-Garnier G.\*, “Influence of outer-layer finite-size effects on the dewetting dynamics of a thin polymer film embedded in an immiscible matrix”, *Soft Matter*, **2018**, 14, 6256-6263.
4. Montana J-S., Roland S.\*, Richaud E., Miquelard-Garnier G.\*, “Nanostructuring effect on the mechanical properties of PMMA toughened by a triblock acrylate copolymer using multilayer coextrusion”, *Polymer*, **2018**, 149, 124-133.
5. Bironeau A., Salez T., Miquelard-Garnier G.\*, Sollogoub C.\*, “Existence of a critical layer thickness in PS/PMMA nanolayered films”, *Macromolecules*, **2017**, 50 (10), 4064–4073.
6. Dirany M., Dies L., Restagno F., Léger L., Poulard C., Miquelard-Garnier G.\*, “Chemical modification of PDMS surface without impacting the viscoelasticity: Model systems for a better understanding of elastomer/elastomer adhesion and friction”, *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects*, **2015**, 468, 174-183.
7. Li X., McKenna G.B.\*, Miquelard-Garnier G.\*, Guinault A., Sollogoub C., Régnier G., Rozanski A., “Forced assembly by multilayer coextrusion to create oriented graphene reinforced polymer nanocomposites”, *Polymer*, **2014**, 55, 248-257.