HAL open science

Importance de la cavitation lors de la fissuration en fatigue du caoutchouc naturel chargé

Jean-Benoit J.-B. Le Cam, Franck Perocheau, Bertrand Huneau, Erwan Verron, Laurent Gornet

To cite this version:

Jean-Benoit J.-B. Le Cam, Franck Perocheau, Bertrand Huneau, Erwan Verron, Laurent Gornet. Importance de la cavitation lors de la fissuration en fatigue du caoutchouc naturel chargé. Mechanics & Industry, 2006, 7, pp.123-129. 10.1051/meca:2006026 . hal-01006955

HAL Id: hal-01006955

https://hal.science/hal-01006955v1

Submitted on 10 Oct 2017

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Distributed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License

Importance de la cavitation lors de la fissuration en fatigue du caoutchouc naturel chargé

Cavitation influence on fatigue crack growth in filled natural rubber

Jean-Benoit Le Cam, Franck Perocheau, Bertrand Huneau, Erwan Verron, Laurent Gornet

Matériaux, Procédés et Technologie des Composites
GeM - Institut de Recherche en Génie Civil et Mécanique,
Nantes, France

Résumé :

Cet article présente des analyses fractographiques de fissures de fatigue dans le caoutchouc naturel chargé aux noirs de carbone. Afin d'identifier les mécanismes de propagation de fissure, il est nécessaire de connaître l'état de la microstructure autour du fond de fissure. Nous avons donc mis au point une technique permettant de micro-découper le fond de fissure lors d'observations au microscope électronique à balayage (MEB). Cette technique utilise simultanément l'énergie mécanique apportée par l'étirement statique de l'éprouvette dans le MEB et l'énergie fournie par la concentration du faisceau électronique du MEB sur la zone d'observation. Les résultats de ces observations montrent que l'endommagement par fatigue au fond de fissure est dû à la cavitation engendrée par la décohésion entre la matrice polymère et les oxydes.

Abstract :

The aim of this present paper is the fractographic analysis of cracks in a carbon black filled natural rubber under fatigue loading conditions. In order to determine the crack growth mechanism, the microstructural state behind the crack tip should be analysed. Here, an experimental method that consists in cutting the crack tip during its observation with a scanning electron microscope is proposed. The crack tip opening is performed using two different energetic sources in order to break cross-links between the macromolecules. The first source is mechanical: the sample is stretched on a simple tensile apparatus. The second one is the electronic beam. Observation results indicate that cavitation is the fatigue damage which drives crack growth. The cavitation mechanism is initiated by the decohesion of the oxides and the mould.

Mots clés : caoutchouc / fatigue / endommagement / propagation de fissure / cavitation / fractographie / micro-découpe

Keywords : rubber / fatigue / damage / crack growth / cavitation / fractography / micro-cut

1 Introduction

La plupart des études menées sur la propagation de fissure dans les élastomères emploient des approches purement mécaniques, souvent issues de l'étude des métaux ; celles-ci utilisent le plus souvent le concept d'énergie de déchirement [1]. Cette approche phénoménologique fournit des résultats intéressants, mais ne permet pas de prédire de façon systématique les chemins de propagation de fissure dans les pièces élastomères. C'est pourquoi, la détermination des mécanismes physiques liés à la fatigue mécanique apparaît nécessaire afin d'enrichir ce type d'approche.

Pour comprendre les mécanismes microscopiques mis en jeu lors de la propagation de fissures dans les matériaux, des analyses fractographiques de faciès de rupture réalisées par microscopie électronique à balayage (MEB) sont menées pour mettre en évidence les évènements caractéristiques du type de sollicitation et du matériau considéré. Ces observations précisent la source de l'initiation de la fissure et retracent le chemin de propagation. Dans les polymères à l'état vitreux, la propagation de fissure a été plus largement étudiée et des micro-cinétiques de fissuration ont déjà été proposées [2, 3, 4, 5]. En revanche, pour les élastomères, les études menées jusqu'à présent ne permettent pas d'expliquer de manière claire et unanime le mécanisme de fissuration [6, 7, 8, 9, 10].

Afin de comprendre et de représenter le (ou les) mécanisme(s) de propagation de la fissure en grandes déformations, il nous paraît nécessaire de connaître l'état microstructural de la matière au fond de fissure. Pour cela, nous avons mis au point une technique qui permet d'identifier le dommage prépondérant en fatigue dans le caoutchouc naturel chargé.

2 Création d'une fissure de fatigue

La fissure que nous avons étudiée est préalablement créée par un essai de fatigue.

2.1 Eprouvette

La géométrie d'éprouvette choisie est celle proposée par Beatty [11]. Comme le montre la ***Figure 1***, elle est axisymétrique et admet un rayon de courbure important, ce qui lui vaut le nom

d'éprouvette Diabolo. Ce rayon permet d'obtenir une déformation locale au centre supérieure à la déformation nominale imposée à l'éprouvette, ce qui permet de localiser la fissure de fatigue en traction relaxante et de réduire le temps d'essai.

2.2 Matériau

Le matériau utilisé est un caoutchouc naturel chargé au noir de carbone. Le ***Tableau I*** résume sa composition chimique ainsi que quelques caractéristiques mécaniques. Le dosage des composants est réalisé en pce (parties pour cent d'élastomère en masse). Le procédé d'élaboration est le moulage par injection.

2.3 Conditions de chargement

Afin de s'assurer de la présence des dommages caractéristiques de la réponse en fatigue du matériau en fond de fissure, l'éprouvette est préalablement soumise à un chargement cyclique sinusoïdal relaxant en déplacement imposé (retour à déplacement nul), correspondant à une élongation de 1,33 (ce niveau de sollicitation appliqué conduit à un nombre de cycle à rupture proche du million de cycles). Ici, l'expérience est menée jusqu'à l'obtention d'une fissure de l'ordre de 5 mm en surface dans l'état non-déformé. La Figure 2 montre que la fissure est apparue au centre de l'éprouvette et à proximité du plan de joint. Cette fissure, générée en fatigue, permet d'obtenir une microstructure représentative du dommage de fatigue au voisinage du front de fissure. Pour éviter de superposer un dommage thermique au dommage mécanique [12], la vitesse de déformation a été contrôlée pendant l'essai de manière à ne pas élever la température de peau de plus de 20°C, la température de l'enceinte de l'essai étant stabilisée à 23°C. En pratique, cela revient à cycler jusqu'à une fréquence maximale de 5 Hz. La température de peau est mesurée par un capteur infrarouge, la température à cœur n'est pas mesurée.

Comme le montre la ***Figure 3***, l'éprouvette est ensuite montée sur un dispositif expérimental de traction statique composé de tiges filetées, de rondelles et d'écrous pour écarter les inserts. Les axes des tiges filetées sont positionnés de manière à laisser la fissure accessible au faisceau

électronique du MEB. Pour éviter tout biais dans le montage, les alésages pratiqués dans les inserts ont été réalisés dans les règles de l'art. Pour observer le voisinage et le fond la fissure, on impose à l'éprouvette la même élongation qu'en fatigue (1,33), ce qui revient à appliquer une force d'environ 500 N. La ***Figure 4*** montre l'éprouvette étirée, avec la fissure ouverte de 5 mm.

Des essais de fatigue complémentaires de traction relaxante ont été réalisés mais cette fois-ci jusqu'à rupture, pour des élongations maximales égales à 1,33 et 1,67.

3 Description de la fissure

3.1 Méthode d'observation

L'éprouvette fissurée et étirée est dépolluée dans un bain de solution neutre soumis aux ultrasons. Le matériau n'étant pas suffisamment conducteur, l'éprouvette étirée est métallisée à l'or (couche de 90 nm d'épaisseur). Elle est ensuite introduite dans la chambre du MEB pour y être analysée à partir des électrons secondaires. Un dispositif de micro-analyse X, couplé au MEB, permet de recenser les éléments présents sur les surfaces analysées.

3.2 Résultats

Avant de décrire la fissure, il est important de détailler son voisinage, et en particulier les états de surface des zones voisines, représentatifs de leurs étirements respectifs.

3.2.1 Description générale

La ***Figure 5*** représente la vue schématique du cliché de la ***Figure 4***. Quatre zones d'état de surface différent sont présentes autour de la fissure :

- La zone A est la moins étirée ; elle bénéficie du rétreint des chaînes rompues lors de la propagation ;

- La zone B est très étirée, et comme le montre la ***Figure 6***, de nombreuses craquelures sont présentes. Ici, le mot craquelure est employé pour qualifier les événements caractéristiques du craquellement de la surface de l'éprouvette. Ces craquelures ne correspondent pas aux craquelures observées dans les polymères à l'état vitreux ;
- La zone C correspond à une surface peu étirée puisque la section de l'éprouvette dans cette zone est croissante jusqu'aux inserts ;
- La zone D se situe de part et d'autre de la fissure. Des micro-cavités de surface sont présentes jusqu'à 0,2 mm du bord de la fissure, comme le montre la ***Figure 7***. Ces micro-cavités sont de l'ordre de quelques centaines de nanomètres. Ces cavités pourraient correspondre à l'empreinte d'ingrédients solides peu liés (physiquement et/ou chimiquement) à la matrice élastomère et « éjectés » lors de l'essai de fatigue, particulièrement lors de l'apparition de la fissure en surface.

3.2.2 Détail de la fissure

Le cliché de la ***Figure 8a*** montre la fissure dans son intégralité. Les différentes surfaces repérées sont reportées sur le schéma de la vue de profil ***Figure 8b***. Le fond de la fissure est une surface assez lisse, et les bords, correspondant à des surfaces rompues, sont rugueux. La rugosité de ces surfaces est due à la présence d'arrachements de matière. La zone E définit la frontière entre la partie lisse et la partie rugueuse. Un grossissement de cette zone est présenté sur le cliché de la ***Figure 9***. Les arrachements de la partie rugueuse sont de plus en plus étirés vers la partie lisse et des filaments apparaissent entre eux. Ces arrachements, présents sur les surfaces rompues, sont caractéristiques des faciès de rupture des caoutchoucs naturels sollicités en fatigue sous conditions de traction relaxante.

La ***Figure 10*** montre les longs filaments formés par la matière étirée qui constitue le fond de la fissure et la ***Figure 11*** est un grossissement de la zone la plus étirée, au centre de la fissure. Cette dernière montre qu'il y a des oxydes entre les filaments (particules blanches). Ces oxydes se trouvent dans des zones ellipsoïdales fortement étirées.

4 Identification du dommage

Comme nous venons de le voir précédemment, l'observation du fond de fissure met en évidence les différents zones issues de la fissuration. Pour comprendre le mode de formation de ces zones, il faut identifier le ou les dommages qui permettent à la fissure de se propager. Il faut donc connaître l'état microstructural de la matière qui précède le front de fissure. Pour cela, nous proposons de réaliser, pendant l'observation au MEB, des micro-découpes perpendiculaires au sens d'étirement dans le fond de fissure.

4.1 Protocole expérimental

L'essai de fatigue, qui a permis l'apparition puis la propagation de la fissure, nous garantit la présence de dommages en fond de fissure. Il faut donc, après avoir étiré l'éprouvette, entailler le fond de fissure et découvrir ainsi les zones endommagées par la fatigue. A l'échelle microscopique à laquelle nous souhaitons réaliser les observations, l'utilisation d'un outil de découpe de laboratoire est exclue. En revanche, il est possible d'apporter, in-situ, suffisamment d'énergie pour rompre les ponts sulfures entre les macromolécules constituant le fond de fissure et ainsi engendrer une micro-découpe. Deux sources d 'énergie sont utilisées simultanément. La première, de nature mécanique, consiste à étirer l'éprouvette à 1,67, c'est-à-dire un étirement supérieur à celui appliqué lors du chargement cyclique. La seconde consiste à concentrer le faisceau électronique sur la zone d'observation. L'apport d'énergie nécessaire par ce second moyen est difficilement quantifiable, puisque le nombre et la nature des liaisons ainsi que le nombre de macromolécules se trouvant dans la zone à découper ne sont pas connus. Ceci étant dit, l'expérience que nous avons acquise sur cette technique, nous permet de paramétrer correctement la puissance du faisceau d'électrons.

La zone propice à la fissuration est a priori la zone la plus étirée ; il est donc important de pouvoir la différencier des zones moins étirées. Ceci est possible par le biais de la métallisation. En effet, puisque les déformations sont importantes, la couche d'or déposée en surface ne peut pas se

déformer autant que l'élastomère. Les zones ainsi découvertes vont fortement se charger en électrons, et elles seront facilement identifiables par contraste. L'intérêt est double : à la fois mettre en évidence les parties utiles du front de fissure et permettre de concentrer de l'énergie par le faisceau d'électrons sur une zone mécaniquement favorable à la fissuration.

L'éprouvette ayant été préalablement cyclée à une élongation de 1,33, il convient de s'assurer que les phénomènes sont les mêmes en fond de fissure lorsque nous l'étirons à 1,67. Pour ce faire, nous avons comparé zone à zone les faciès de rupture des éprouvettes testées aux deux élongations. Dans les deux cas, les évènements caractéristiques sont de même nature et se situent aux mêmes endroits sur le faciès.

4.2 Résultats

La ***Figure 12*** montre le fond de fissure avant et après la micro-découpe. La zone de découpe est encerclée sur la ***Figure 12b***. La découpe, de l'ordre du dixième de millimètre, a été pratiquée dans la partie du fond de fissure la plus étirée.

Les clichés de la ***Figure 13*** et ***Figure 14*** sont des agrandissements successifs de la zone fissurée propice à la découpe puisque des micro-fissures sont déjà présentes. Lors de précédentes observations du front de fissure, nous nous sommes assurés de la présence de ces micro-fissures pour des étirements n'excédant pas celui imposé lors de l'essai de fatigue. La ***Figure 15a*** montre qu'un oxyde est présent dans une zone ellipsoïdale découverte par la micro-fissure. La concentration du faisceau sur la zone fléchée de la ***Figure 15a*** a permis d'initier une micro-fissure qui s'est propagée de droite à gauche en découvrant une cavité indiquée sur la ***Figure 15b***. En maintenant le faisceau concentré dans cette zone, de nouvelles fissures sont apparues et se sont propagées. Dans tous les cas, les fissures s'ouvrent sur des cavités qui contiennent pour la plupart un oxyde. Pour finir, de la ***Figure 15b*** à la ***Figure 15d***, le faisceau électronique a été concentré de manière à provoquer la coalescence de notre découpe avec une fissure existante.

Ces observations montrent que lors de l'essai de fatigue en traction relaxante, le mécanisme d'endommagement permettant la propagation de fissure est la cavitation qui résulte de la

décohésion de la matrice et des oxydes dans la zone précédant le front. Les parois des cavités découvertes sont peu à peu étirées et participent à la formation des filaments. De part et d'autre des filaments formés, il reste des parties planes correspondant au « fond » des cavités découvertes. Au cours de l'essai cyclique, les filaments les plus étirés cèdent et se relaxent. La ***Figure 16*** montre une zone située au pied des ligaments. La zone A correspond aux filaments et la zone B correspond à la base des filaments. La zone B est relaxée puisque chaque arrachement de cette zone est en fait un filament qui a rompu et qui s'est rétreint.

Il faut noter que, lorsque le faisceau électronique est concentré sur les filaments fortement étirés, ces derniers ne se rompent pas, même si le temps d'exposition au faisceau est augmenté. Etant donné que la puissance du faisceau électronique demeure inchangée pendant l'observation, cela semble indiquer que la microstructure des filaments est différentes de celle des zones qui les séparent. En fait, ces filaments pourraient être les zones les plus cristallisées du front de fissure, la cristallisation sous contrainte étant un phénomène bien connu dans le caoutchouc naturel [13].

5 Conclusion

Une technique de micro-découpe du fond de fissure au sein d'un MEB a été développée et utilisée afin d'observer l'endommagement de la matière derrière le fond de fissure. Nous avons ainsi pu montrer que la cavitation est le dommage prépondérant de la propagation de fissure de fatigue dans les caoutchoucs naturels chargés aux noirs de carbone et sollicités en traction relaxante. En fait, le front de fissure avance en ouvrant les parois des cavités. Fort de ces résultats, il semble désormais possible de comprendre la contribution de la cavitation au mécanisme d'avancée de la fissure. Les résultats de nos travaux en cours fourniront prochainement un mécanisme de propagation et sa modélisation. Les modèles de cavitation existants [14, 15] ainsi qu'une meilleure connaissance du mécanisme de fissuration permettent d'envisager la construction de modèles macroscopiques de ce type de dommage utilisables dans les codes de calculs par éléments finis. A plus long terme, l'expérience acquise devrait permettre d'améliorer la prédiction de la durée de vie en fatigue des pièces industrielles.

6 Remerciements

Nous remercions pour leur participation Pierre Charrier et Elisabeth Ostoja-Kuczynski de la société Trelleborg. Nous remercions également le CETIM de Nantes pour sa collaboration lors des premières observations.

7 Bibliographie

[1] Rivlin R.S., Thomas A.G., Rupture of rubber. I. Characteristic energy for tearing , J. Polym. Sci. 10 (1953) 291-318.

[2] Argon A.S., Salama M.M., Growth of crazes in glassy polymers, Philo. Mag. 36 (1977) 1217-1234.

[3] Hui C.Y., Ruina A., Creton C., Kramer E.J., Micromechanics of crack growth into a craze in a polymer glass, Macromolecules 25 (1992) 3948-3955.

[4] Sha Y., Hui C.Y., Ruina A., Kramer E.J., Detailed simulation of craze fibril failure at a crap tip in a glassy polymer, Acta Mater. 45 (1997) 3555-3563.

[5] Tijssens M.G.A, Van Der Giessen E., A possible mechanism for cross-tie fibril generation in crazing of amorphous polymers, Polymer 43 (2002) 831-838.

[6] Choudhury N.R., Bhowmick A.K., Micromechanism of failure of thermoplastic rubber, J. Mater. Sci. 25 (1990) 2985-2989.

[7] Fukahori Y., Fractography and fracture mechanics in rubber, in Fractography of rubber materials, Bhowmick A.K.et De S.K. (éd.), Elsevier Applied Science, London and New York, 1991.

[8] Bhowmick A.N., Quantitative fractography of rubber by image processing technique, Rubber Chem. Technol. 68 (1995) 132-135.

[9] André N., Cailletaud G. and Piques R., Haigh diagram for fatigue crack initiation prediction of natural rubber components , Kaut. Gummi Kunstst. 52 (1999) 120-123.

[10] Robisson A., Comportement visco-hyperélastique endommageable d'élastomères SBR et PU : Prévision de la durée de vie en fatigue. Thèse, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris,

Evry, France, 2000.

[11] Beatty J. R., Fatigue of Rubber, Rubber Chem. Technol. 37 (1964) 1341-1364.

[12] Le Cam J-B., Ostoja-Kuczynski E, Charrier P., Verron E., Gornet L., Pérocheau F. et Briançon C., Influence de la fréquence de sollicitation sur le faciès de rupture de pièces élastomères en fatigue, 38ème Colloque annuel de Rhéologie, Physique-Chimie des produits formulés, Brest, France, du 14 au 17 octobre 2003.

[13] Flory P. J., Thermodynamics of crystallization in high polymers. 1. crystallization induced by stretching, J. Chem. Phys. 15 (1947) 397.

[14] Gent A. N., Cavitation in rubber: a cautionary tale, Rubber Chem. Technol. 63 (1990) G49-G53.

[15] Horgan C.O. and Polignone D.A., Cavitation in nonlinearly elastic solids: a review, Appl. Mech. Rev. 48 (1995) 471-485.

Liste des tableaux

Tableau I : Formulation et caractéristiques mécaniques du matériau
Material formulation and mechanical properties

Formulation (pce)	
NR	100,00
Oxyde de zinc	9,85
Plastifiant	3,00
Noir de carbone	34,00
Acide stéarique	3,00
Antioxydant	2,00
Accélérateurs	4,00
Caractéristiques mécaniques	
Densité	1,13
Dureté shore A	58,00
Contrainte à rupture (Mpa)	22,90
Allongement à rupture (%)	635,00

Tableau I : Formulation et caractéristiques mécaniques du matériau

Liste des figures

Figure 1 : éprouvette Diabolo 14
Figure 2 : éprouvette fissurée 15
Figure 3 : montage de mise en tension, la fissure est rendue accessible pour l'observation au MEB 16
Figure 4 : ouverture de la fissure (élongation de 1,33) 17
Figure 5 : trois zones d'état de surface différent autour de la fissure 18
Figure 6 : zone B (grossissement 900x) 19
Figure 7 : micro-cavités de la zone D (bord de fissure en bas) 20
Figure 8 : (a) fissure de 5 mm pour une élongation de 1,33 ; (b) profil de la fissure. Des parties rugueuses jouxtent le fond lisse de la fissure 21
Figure 9 : zone E de la Figure 8 : interface entre la partie rugueuse et la partie lisse 22
Figure 10 : filaments au fond de la fissure 23
Figure 11 : présence d'oxydes entre les filaments 24
Figure 12 (a) fond de fissure avant découpe ; (b) fond de fissure après découpe 25
Figure 13 : zone propice à la découpe 26
Figure 14 : grossissement de la zone cerclée de la Figure 13 27
Figure 15 (a) départ de la découpe, formation d'une fissure ; (b) coalescence de deux fissures ; (c) la fissuration continue dans l'épaisseur de l'éprouvette ; (d) dernier cliché avant le cliché de la Figure 12b 28
Figure 16 : base des filaments 29

Figure 1: Diabolo sample
Figure 2: Cracked sample
Figure 3: Tensile apparatus. The crack can be observed with a scanning electron microscope
Figure 4: Crack opening (the extension ratio is equal to 1.33)
Figure 5: Three different surface morphologies in the neighbourhood of the crack
Figure 6: Area B (magnification 900x)
Figure 7: micro-cavities in area D (the crack edge is at the bottom)
Figure 8: (a) 5mm crack for an extension ratio equal to 1.33; (b) crack shape. Rough areas are around the smooth crack tip
Figure 9: Area E of Figure 8: frontier between smooth and rough zones
Figure 10: Crack tip ligaments
Figure 11: Oxides between ligaments
Figure 12 (a) crack tip before cutting; (b) crack tip after cutting
Figure 13: Propitious area for cutting
Figure 14: Magnification of the circle in Figure 14
Figure 15 (a) first cut, initiation of a crack; (b) coalescence of two cracks; (c) crack propagation in the sample stiffness; (d) last picture before Figure 13b
Figure 16: Bottom of ligaments

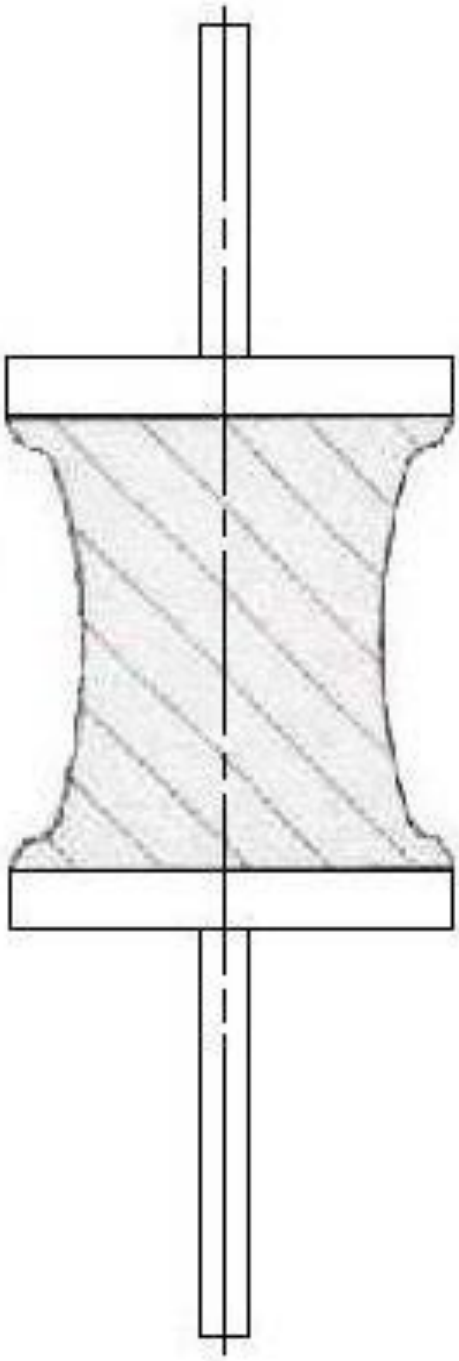

Figure 1 : éprouvette Diabolo

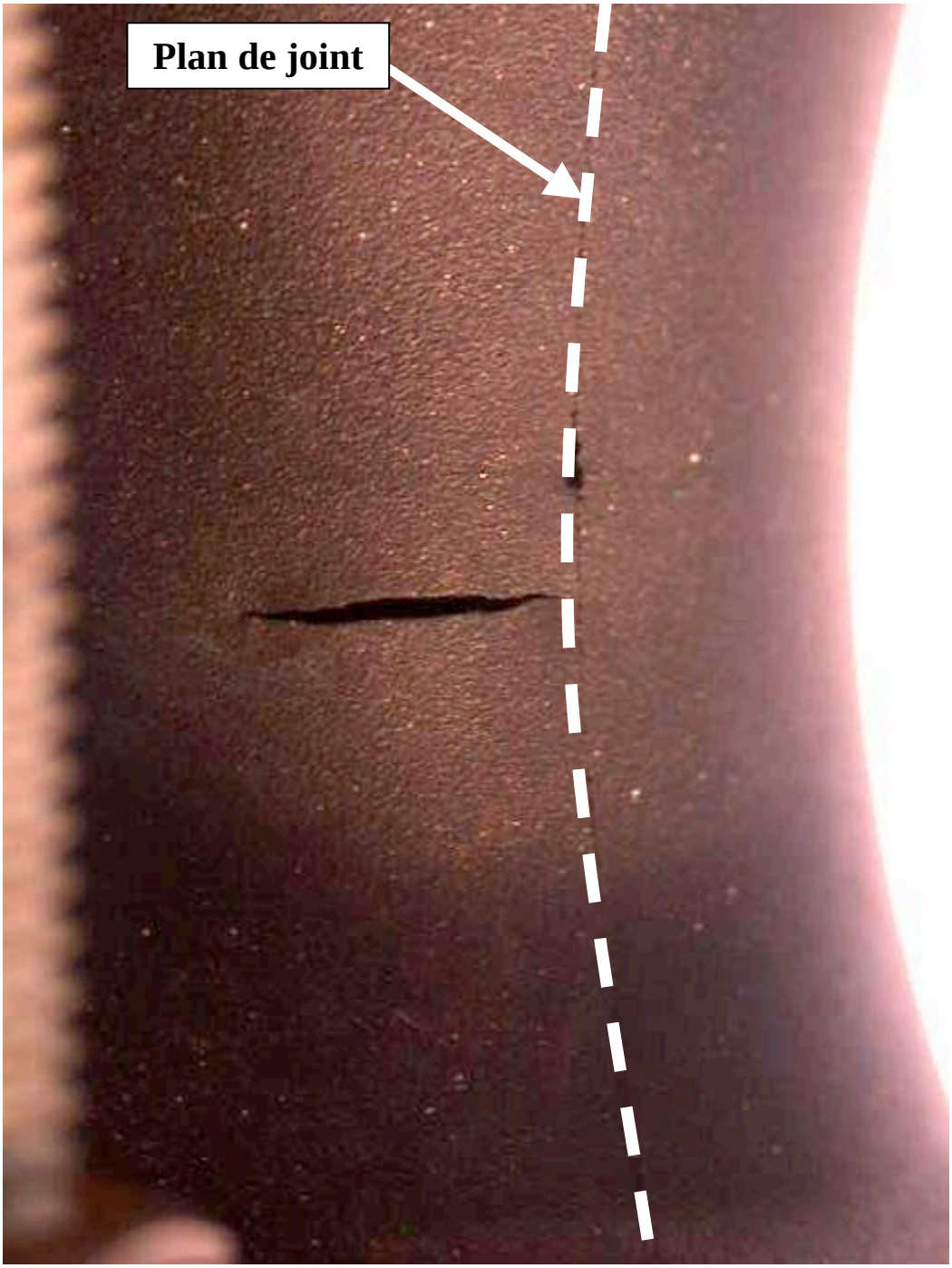

Figure 2 : éprouvette fissurée

Figure 3 : montage de mise en tension, la fissure est rendue accessible pour l'observation au MEB

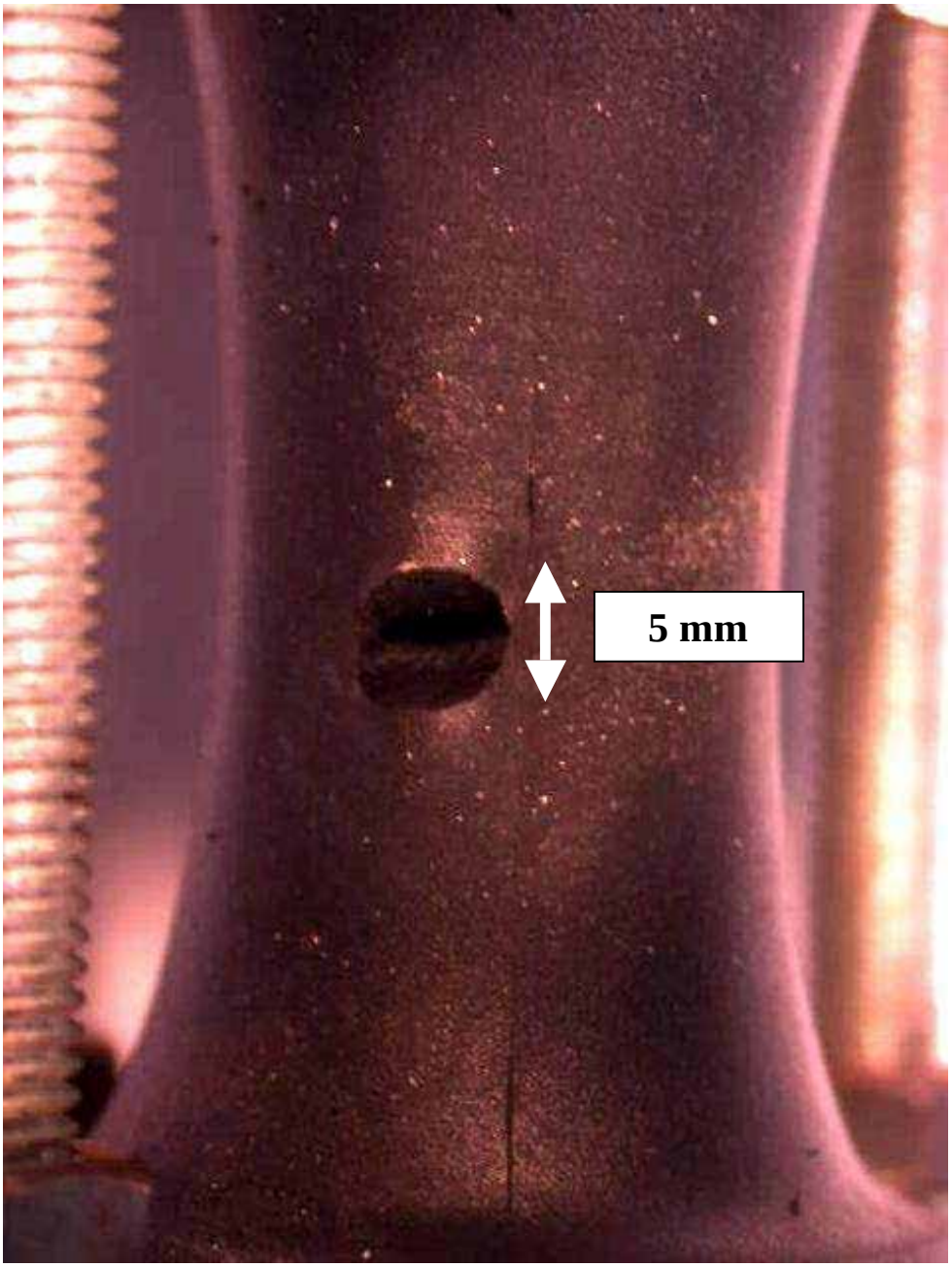

Figure 4 : ouverture de la fissure (élongation de 1,33)

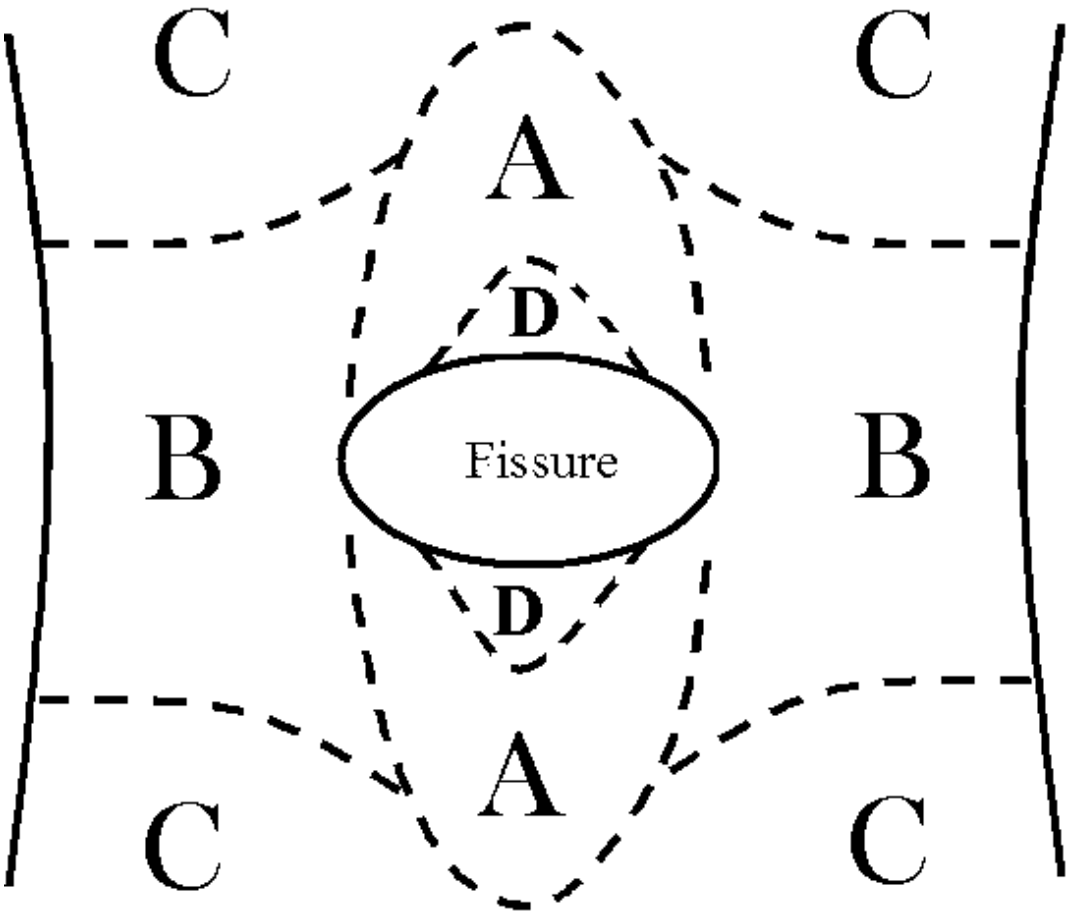

Figure 5 : trois zones d'état de surface différent autour de la fissure

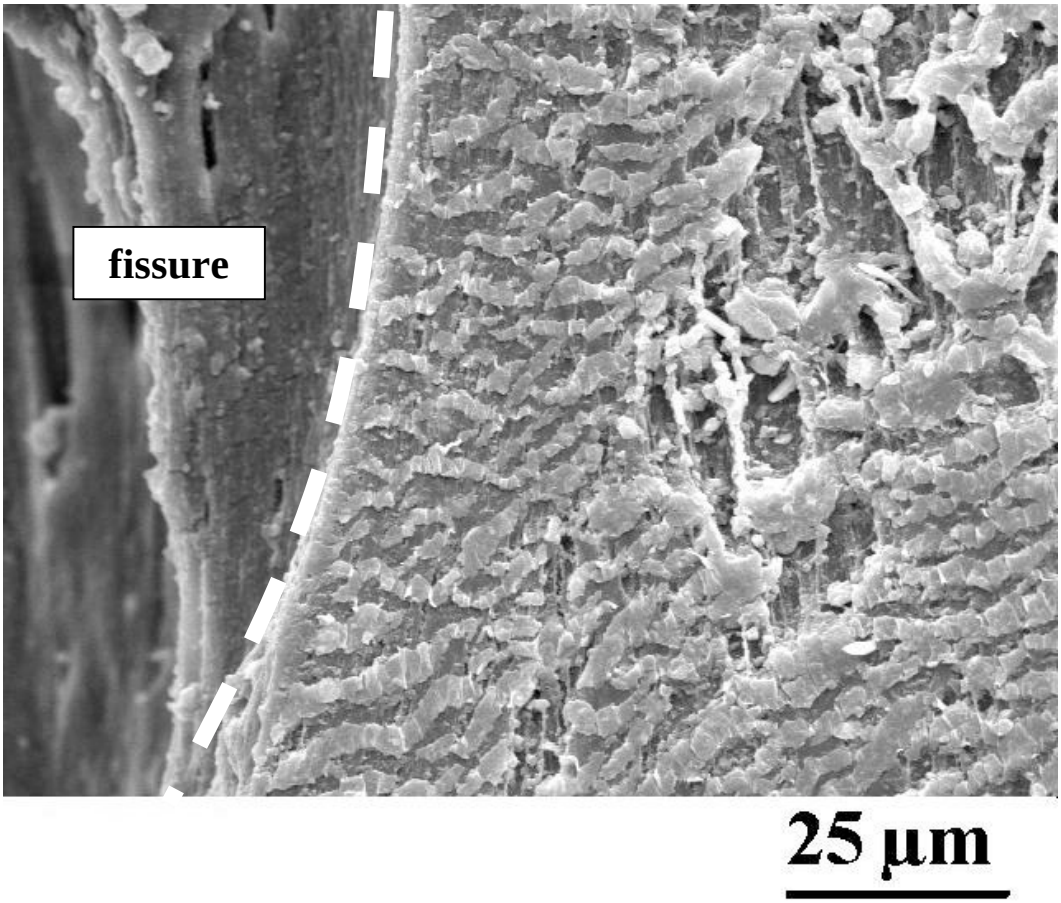

Figure 6 : zone B (grossissement 900x)

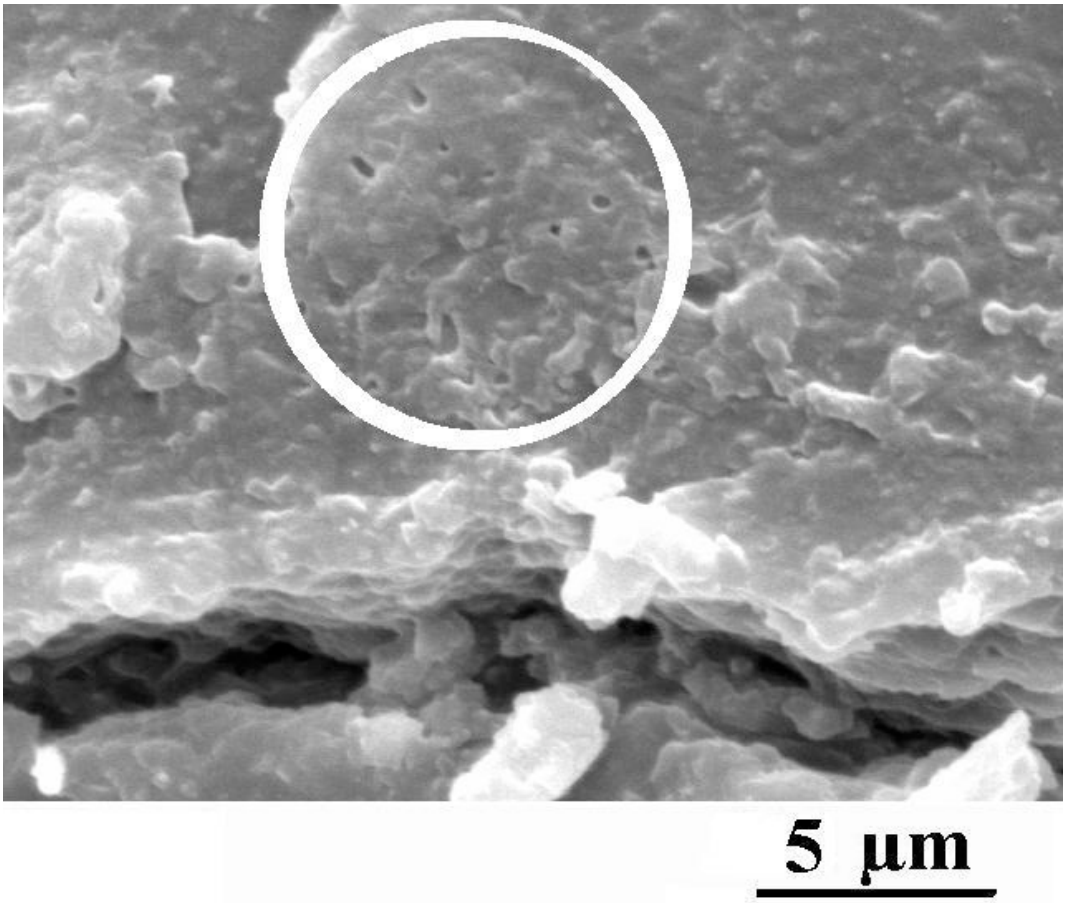

Figure 7 : micro-cavités de la zone D (bord de fissure en bas)

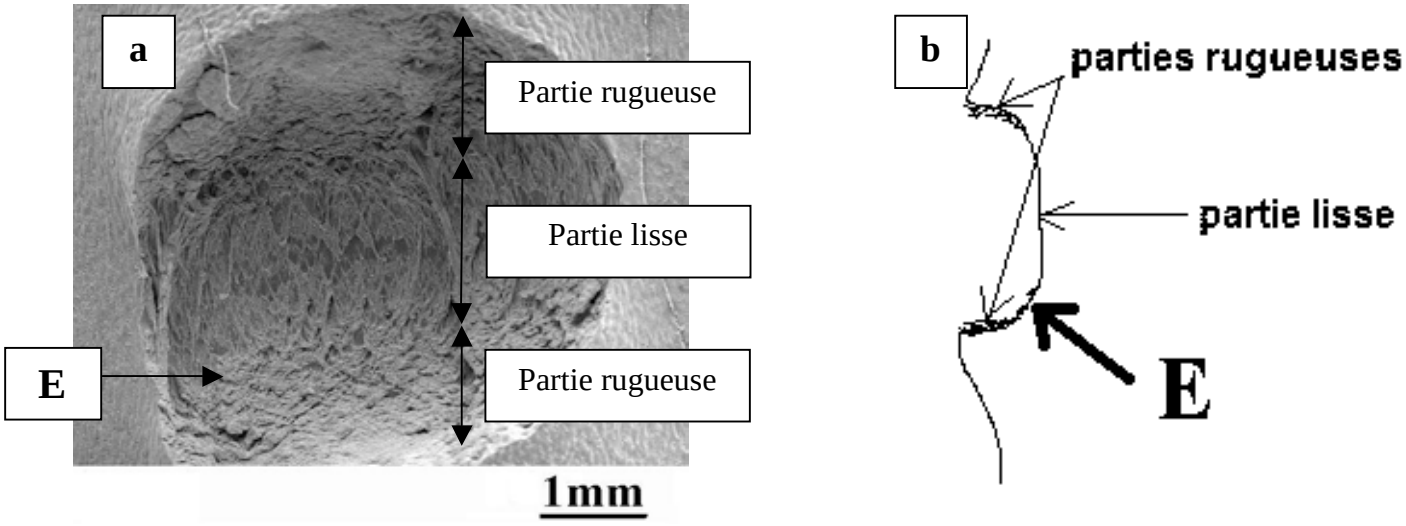

Figure 8 : (a) fissure de 5 mm pour une élongation de 1,33 ; (b) profil de la fissure. Des parties rugueuses jouxtent le fond lisse de la fissure

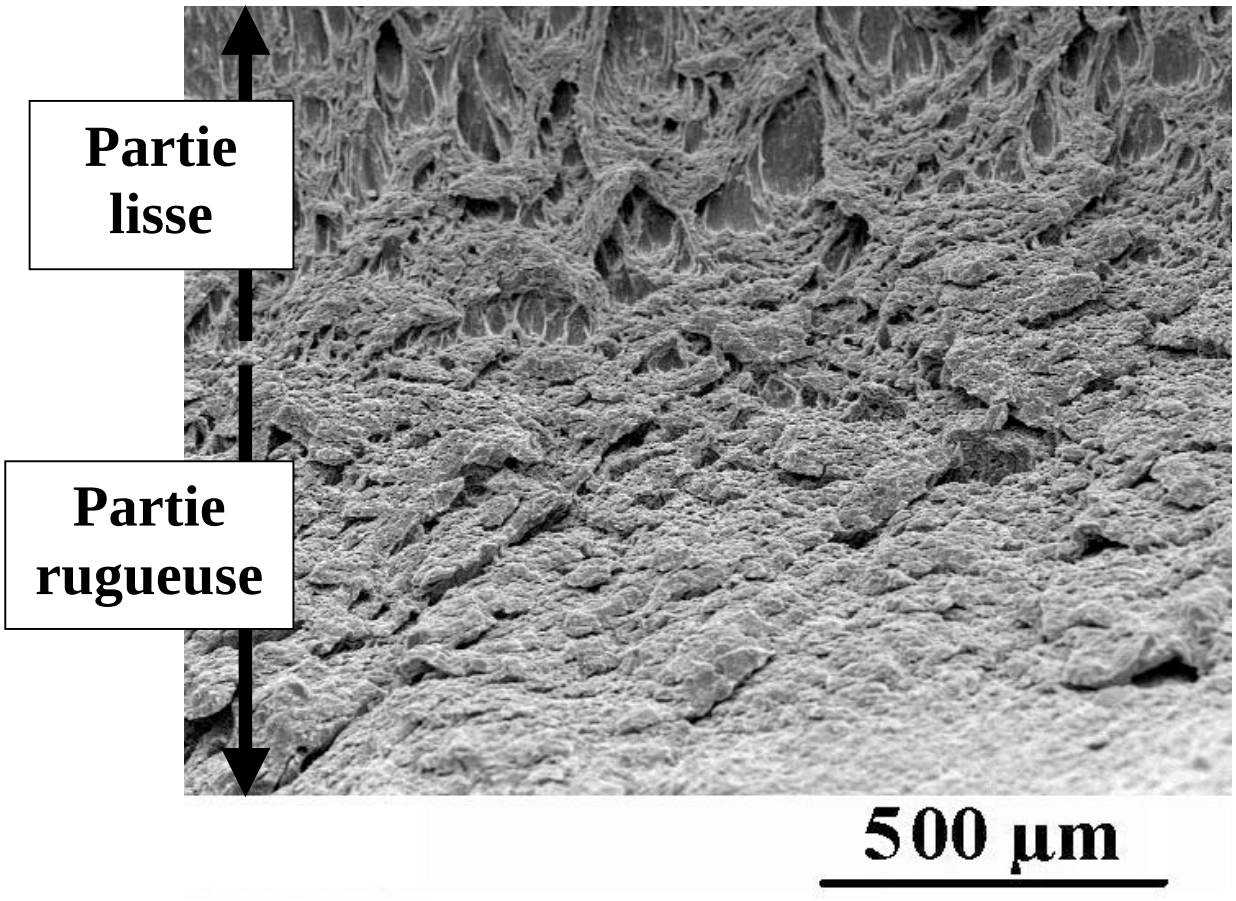

Figure 9 : zone E de la Figure 8 : interface entre la partie rugueuse et la partie lisse

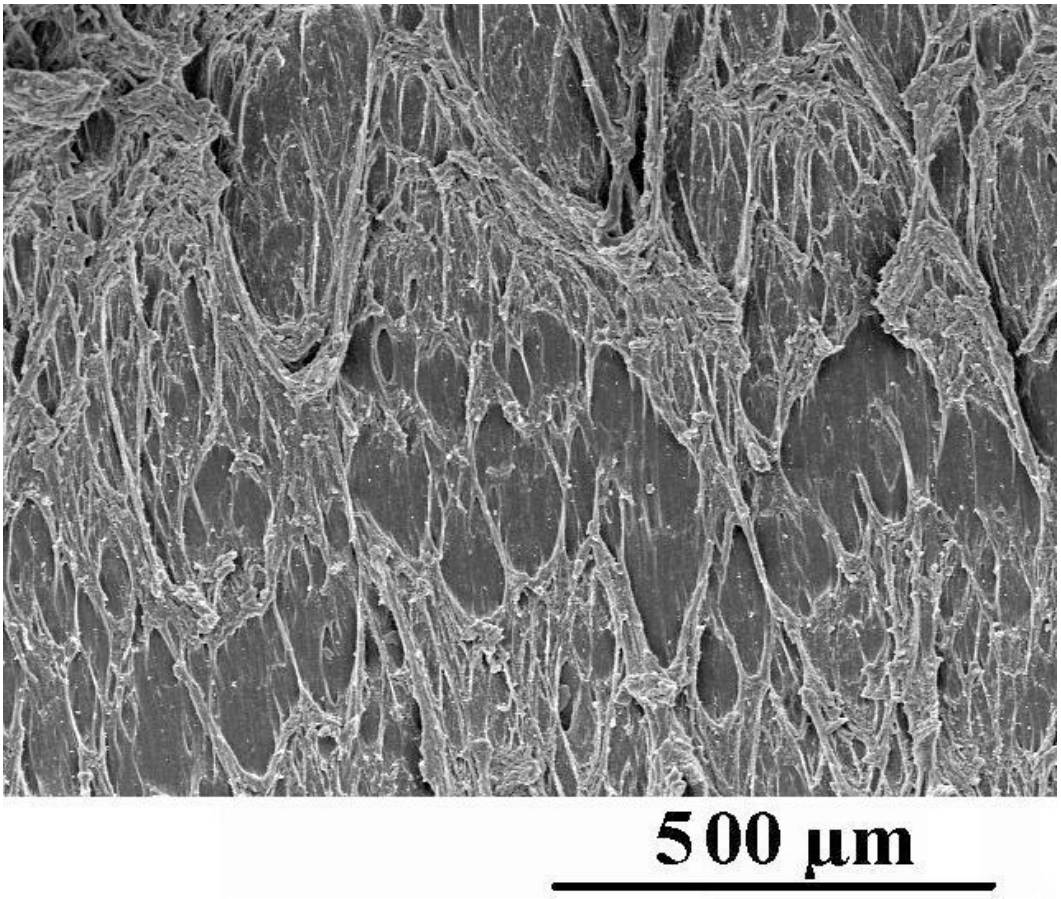

Figure 10 : filaments au fond de la fissure

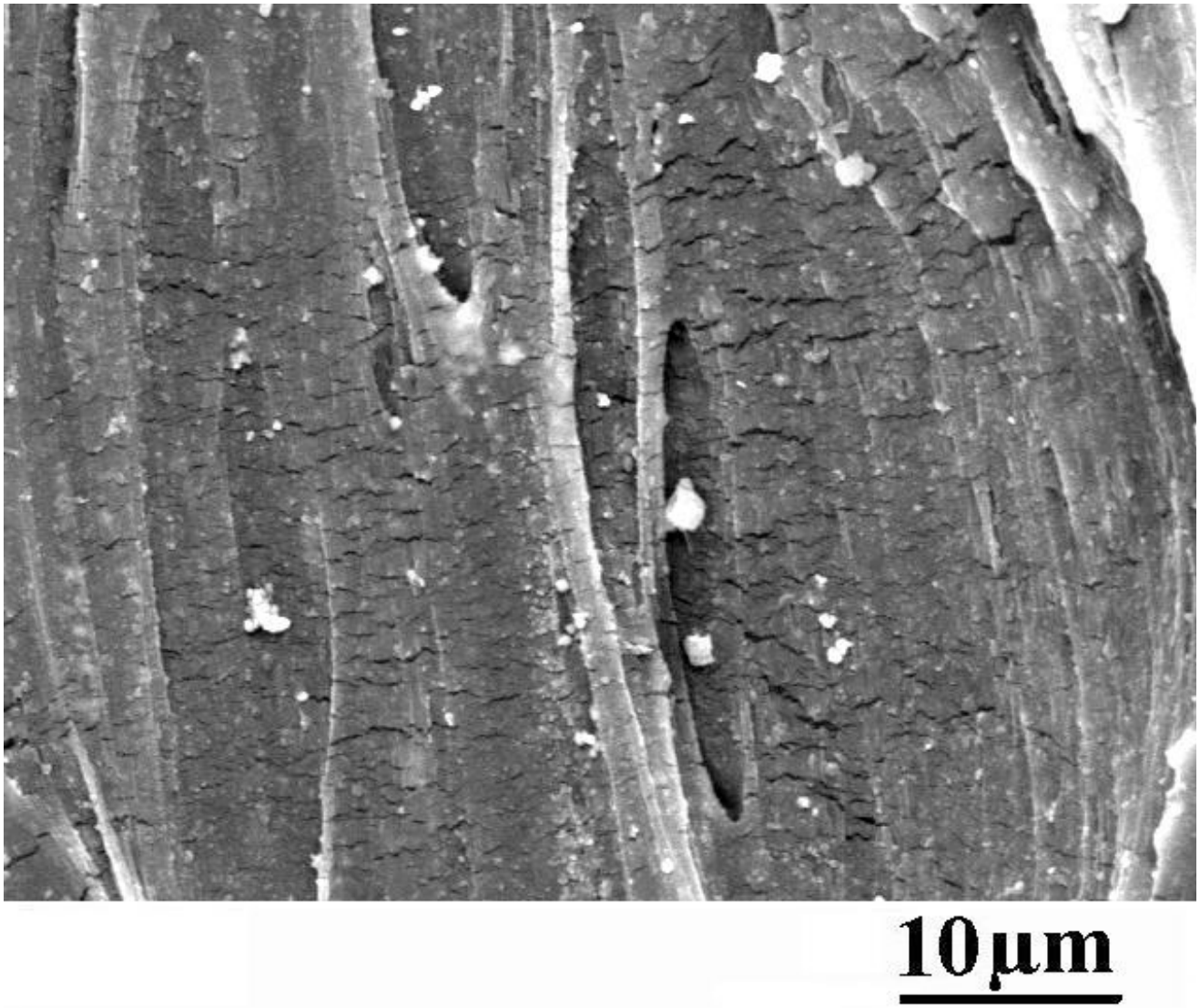

Figure 11 : présence d'oxydes entre les filaments

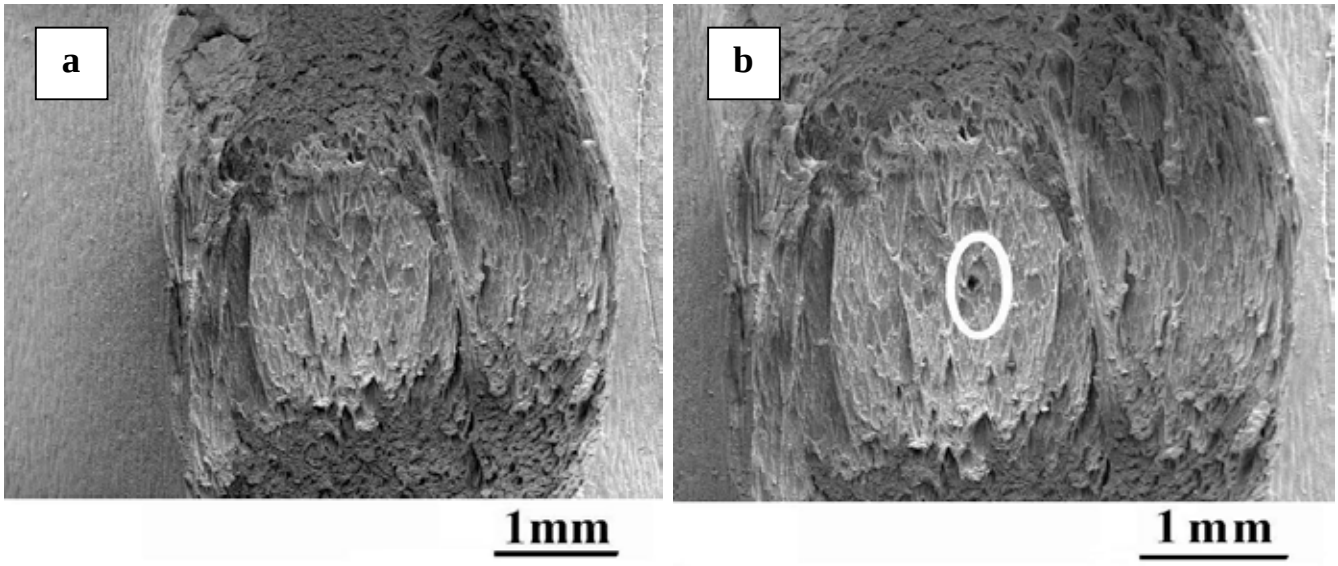

Figure 12 (a) fond de fissure avant découpe ; (b) fond de fissure après découpe

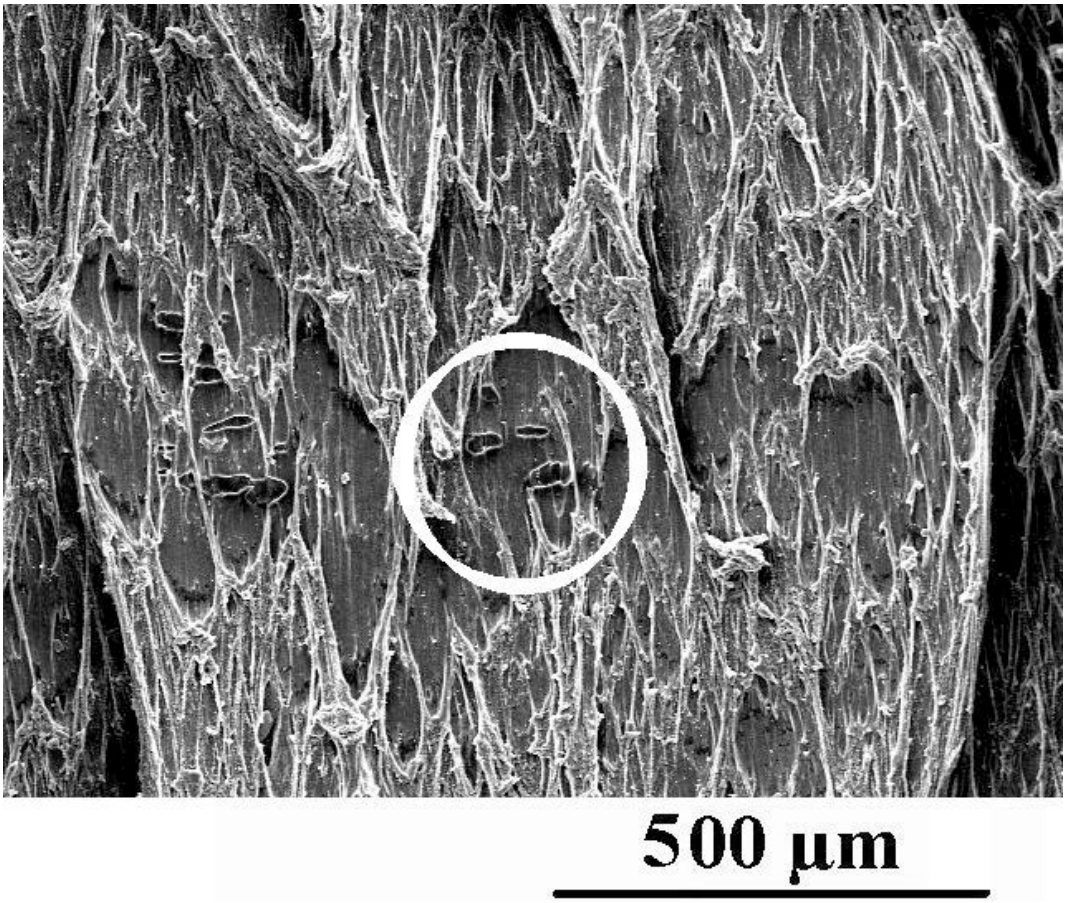

Figure 13 : zone propice à la découpe

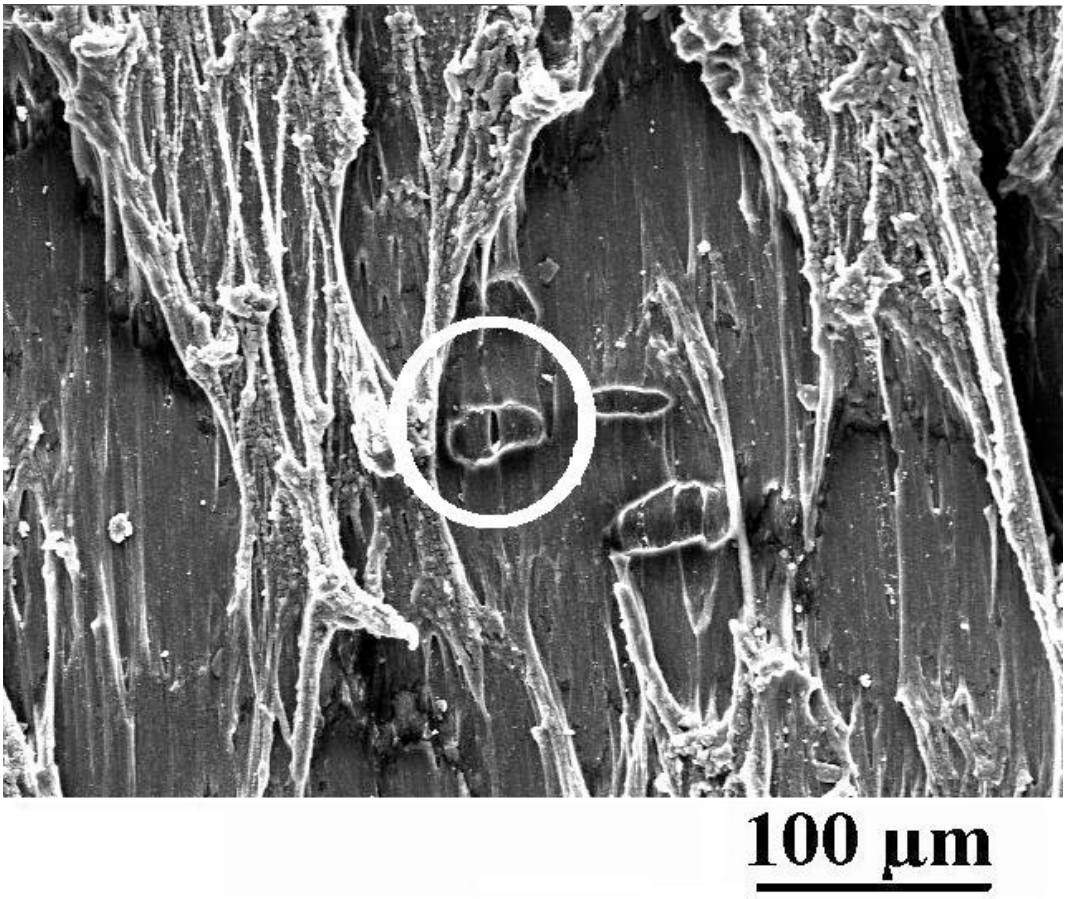

Figure 14 : grossissement de la zone cerclée de la Figure 13

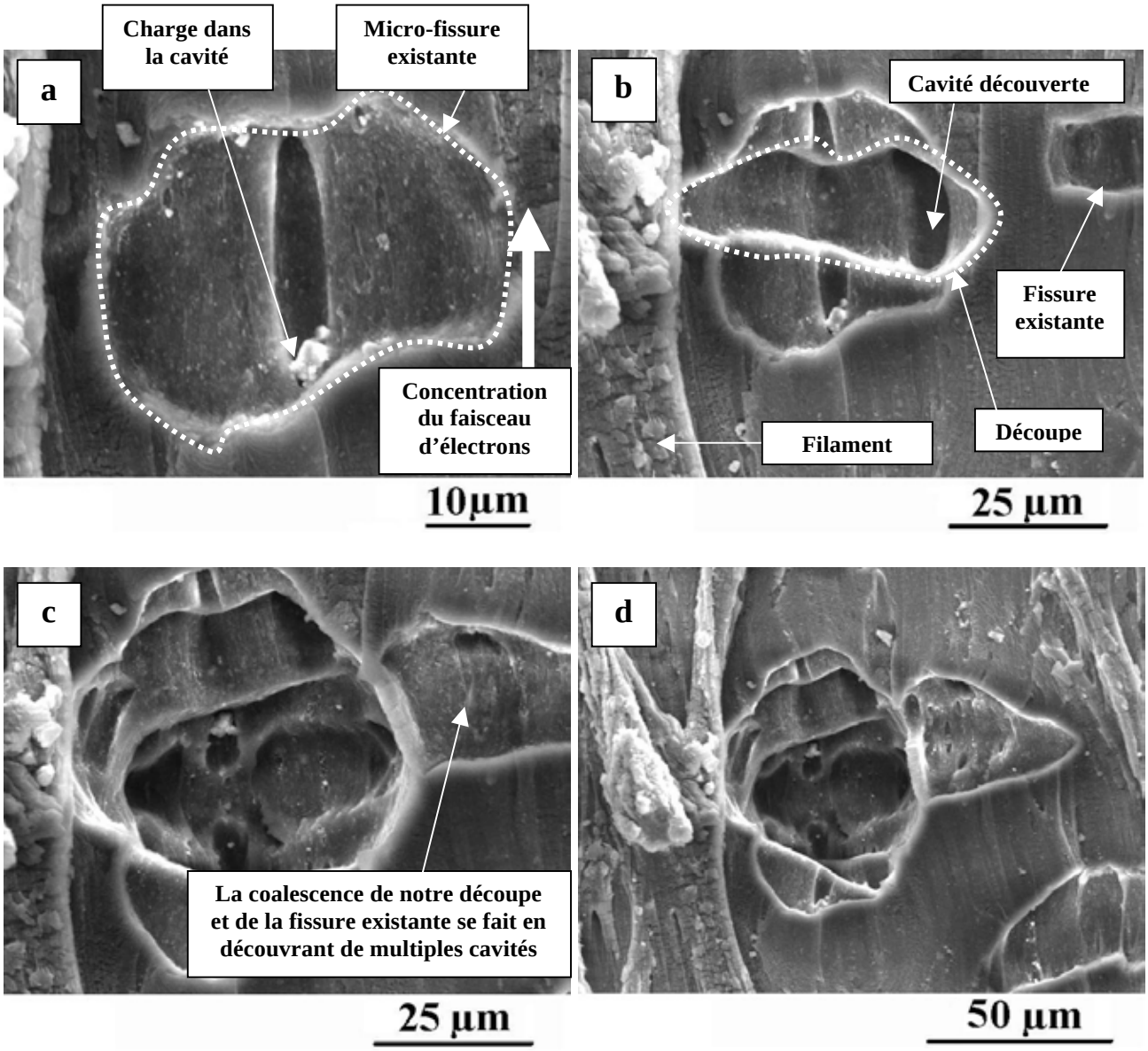

Figure 15 (a) départ de la découpe, formation d'une fissure ; (b) coalescence de deux fissures ; (c) la fissuration continue dans l'épaisseur de l'éprouvette ; (d) dernier cliché avant le cliché de la Figure 12b

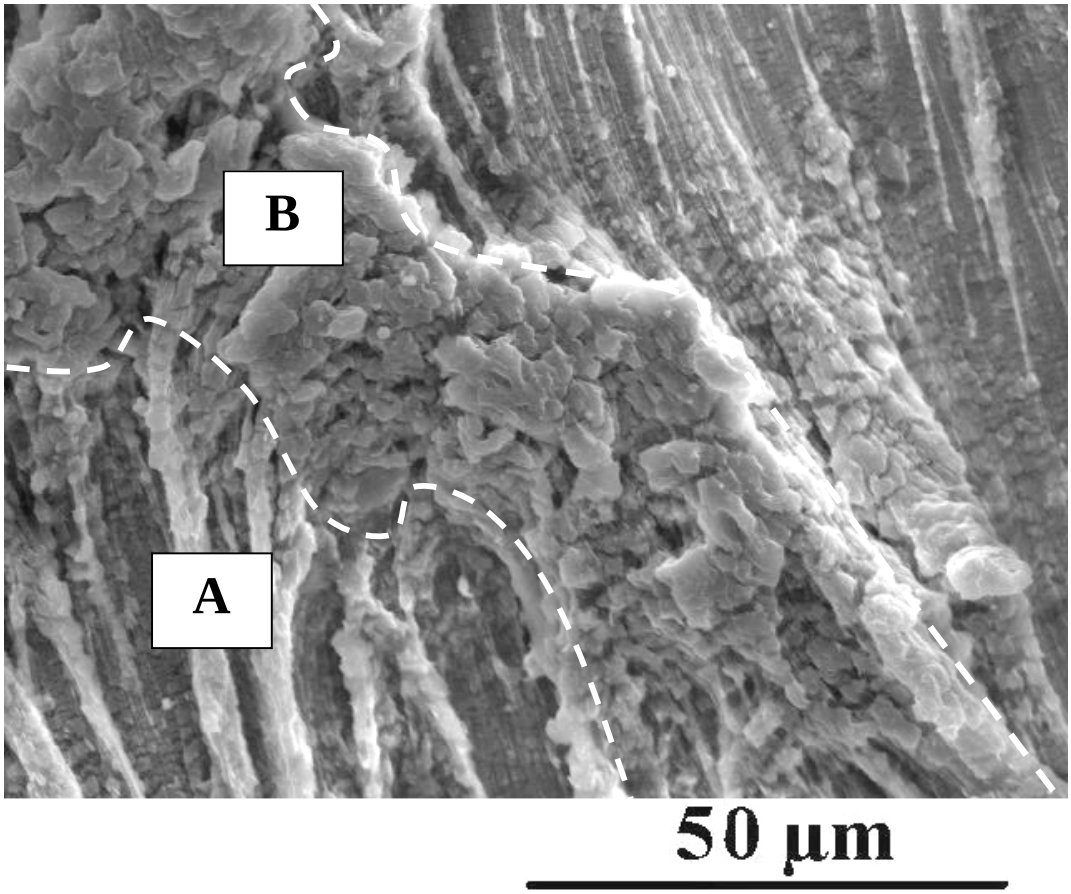

Figure 16 : base des filaments

View publication stats