

# FATIGUE-FLUAGE DES POLYAMIDES RENFORCÉS

Ilan RAPHAEL<sup>a,c</sup>, Nicolas SAINTIER<sup>a</sup>,  
Lucien LAIARINANDRASANA<sup>b</sup>, Gilles ROBERT<sup>c</sup>

[ilan.raphael@ensam.eu](mailto:ilan.raphael@ensam.eu)

a. I2M, Arts et Métiers Paris Tech, Esplanade des Arts et Métiers, 33405 Talence, France

b. PSL Research University, MINES Paristech, Centre des Matériaux, BP 87, 91003 Evry Cedex, France

c. Solvay Engineering Plastics, Avenue Ramboz, BP 64, 69192 Saint-Fons, France

**MOTS CLES :** fatigue ; fluage ; polymères ; sphérolite ; microstructure

## Résumé

*La compréhension et modélisation des mécanismes d'endommagement des polymères renforcés sous chargement de fatigue est un enjeu majeur pour l'industrie. Les différentes échelles sont étudiées afin de montrer que la vitesse de déformation est un paramètre pertinent pour décrire la durabilité et que le lien avec le fluage existe aussi au niveau des mécanismes d'endommagement mis en jeu.*

## 1. Introduction

L'introduction dans l'industrie automobile de pièces en matériaux composites oblige les fabricants à en assurer la durabilité. Il faut donc décrire, comprendre et modéliser le comportement de ces matériaux sous chargement mécanique répété (fatigue) afin de pouvoir, à terme, dimensionner les pièces industrielles.

Ces pièces sont, dans notre cas, réalisées en polyamide 6.6 (PA66) renforcé de fibres de verre courtes et mises en forme par injection. Ce procédé de fabrication permet des cadences élevées de fabrication mais confère au matériau une microstructure *coeur-peau* complexe. Aux hétérogénéités locales s'ajoutent des hétérogénéités structurelles dues à la géométrie complexe des pièces, conférant un caractère multi-échelle à l'étude.

Nous nous attacherons à étudier l'endommagement du matériau à différentes échelles. Des échelles macro et microscopique grâce à des essais sur éprouvettes entaillées jusqu'à l'échelle nanoscopique par la modélisation du comportement des chaînes polymères. Le travail réalisé nous permettra de montrer la pertinence de proposer un indicateur de durabilité basé sur la vitesse de déformation.

## 2. Macro-échelle

### 2.1 Eprouvettes lisses

Lors d'un essai de fatigue à contrainte moyenne positive, la déformation moyenne par cycle augmente au cours du temps selon une courbe semblable à celle obtenue pour un essai de fluage. Par analogie, il est alors possible de définir une vitesse de déformation en stade II, que nous appellerons ici vitesse de déformation cyclique.

Les travaux successifs de Horst [1], Mourglia-Seignobos [2] et Rolland [3] ont montré que la vitesse de déformation cyclique était un paramètre unifiant les résultats de fatigue pour différentes positions et orientation de prélèvement de l'échantillon, températures d'essais et rapports de chargement (restant positifs, toutefois). Des essais plus récents nous ont permis de montrer que ce paramètre unifiait aussi les résultats pour différents taux d'humidité de la matrice polyamide.

Un critère simple peut alors être identifié pour le nombre de cycles à rupture :

$$N_r = A \left( \frac{\dot{\epsilon}_{11}}{\dot{\epsilon}_0} \right)^n \quad (1)$$

avec  $\dot{\epsilon}_{11}$  la vitesse de déformation cyclique issue du déplacement de la traverse et  $\dot{\epsilon}_0$  une vitesse de déformation unitaire.

## 2.2 Eprouvettes entaillées

Deux géométries d'entailles sont considérées dans cette étude (Fig.1). Les éprouvettes sont découpées au jet d'eau dans des plaques de 300x100 mm injectées par Solvay Performance Polyamides.

Tous les essais sont réalisés à  $R=0.1$ , à température et humidité relative contrôlées (23°C, RH50).

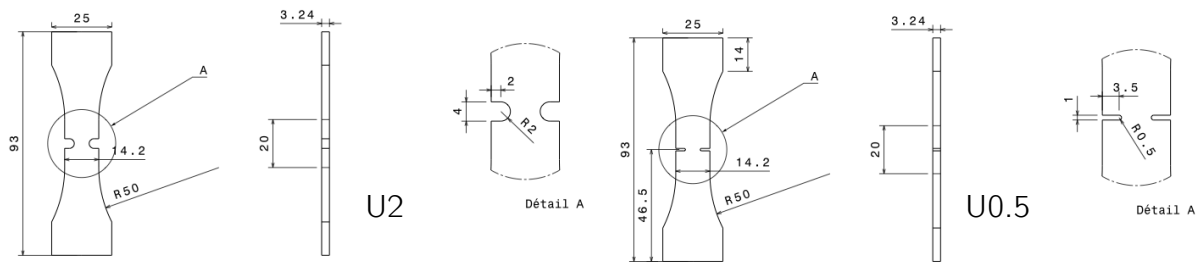


Fig. 1. Plans des deux géométries d'entailles considérées dans cette étude.

La vitesse de déformation cyclique locale est mesurée afin de prendre en compte l'effet d'entaille sur la durabilité en fatigue. Cette mesure est réalisée en surface de l'éprouvette par corrélation d'images cadencées. Une photographie de l'échantillon est prise tous les 50 cycles au maximum du cycle de chargement. Le logiciel Vic2D est ensuite utilisé pour déterminer les champs de déformation et de vitesse de déformation locaux.

En considérant uniquement la vitesse de déformation cyclique axiale  $\dot{\epsilon}_{11}$  locale en fond d'entaille, les paramètres du critère de durabilité présenté en Eq.(1) peuvent être ré-identifiés. Le nouveau critère ainsi obtenu unifie les résultats (Fig.2a) pour les différentes géométries d'éprouvettes, les différentes orientations de fibres, et même pour le PA66 pur (*i.e.* sans fibres de verre).

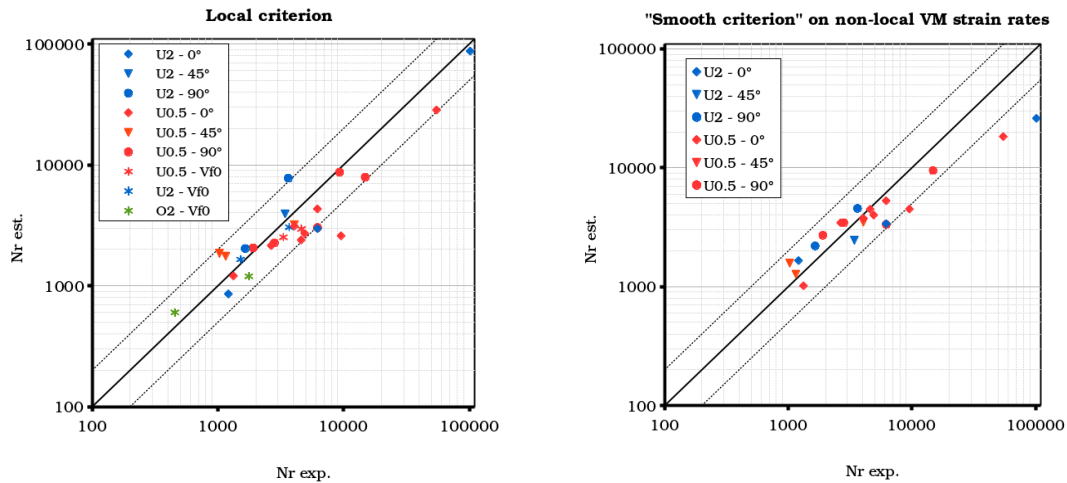
La vitesse de déformation cyclique n'est pas homogène dans le ligament. Un deuxième critère -non local cette fois- peut être identifié en considérant une vitesse de déformation cyclique équivalente moyennée sur une distance correspondant au diamètre  $2R$  de fond d'entaille. Nous avons alors :

$$N_r = A \left( \frac{\dot{\epsilon}_{VMm}}{\dot{\epsilon}_0} \right)^n \quad (2)$$

$$\dot{\epsilon}_{VMm} = \frac{1}{2R} \int_0^{2R} \dot{\epsilon}_{VM}(s) ds \quad (3)$$

avec  $\dot{\epsilon}_{VM}$  la valeur locale de la vitesse de déformation équivalente de Von Mises moyennée par cycle.

Dans ce cas, il est possible d'utiliser les paramètres  $A$  et  $n$  identifiés sur éprouvettes lisses. Les résultats sont satisfaisants excepté pour les trop grandes durées de vie (Fig.2b).



**Fig. 2.** Comparaison des critères local et non-local avec les résultats expérimentaux pour différents échantillons entaillés en PA66 pur (Vf0) et PA66 renforcés (0°, 45°, 90°).

## 2.3 Modélisation

La déformation est partitionnée entre une contribution élastique et visco-plastique :

$$\epsilon = \epsilon^e + \epsilon^{vp} \quad (4)$$

Une loi de Norton est utilisée pour calculer le taux de déformation plastique :

$$\dot{p} = \left( \frac{\phi}{K} \right)^n \quad (5)$$

avec:

$$\phi = \sigma - R(p) \quad (6)$$

et l'écroutissage isotrope donné par :

$$R(p) = R_0 + Q \left( 1 - \exp(-bp) \right) \quad (7)$$

L'identification des paramètres ( $R_0$ ,  $Q$ ,  $b$ ) a d'abord été réalisée par méthode inverse à l'aide d'un algorithme génétique sur des tests quasi-statiques à  $\dot{\epsilon} = 10^{-2} s^{-1}$  et  $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$  afin d'obtenir des réponses satisfaisante en contrainte-déformation et en ouverture de l'entaille (NOD) (Fig.3).

Les paramètres ont ensuite été ajustés pour le chargement cyclique afin d'obtenir une réponse correcte de la vitesse de déformation cyclique globale (équivalente à celle déterminée à expérimentalement à partir du déplacement traverse).

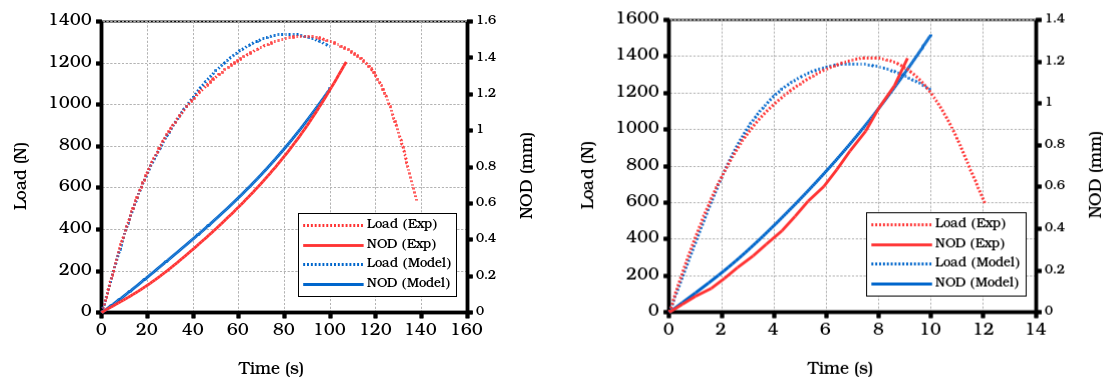


Fig. 3. Charge et NOD pour un échantillon de PA66 entaillé U2 sous chargement quasi-statique  $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$  &  $\dot{\epsilon} = 10^{-2} s^{-1}$ .

Le modèle ainsi identifié permet de capter correctement le profil de vitesse de déformation cyclique dans le ligament ainsi que l'évolution de la vitesse d'ouverture de l'entaille (Fig.4).

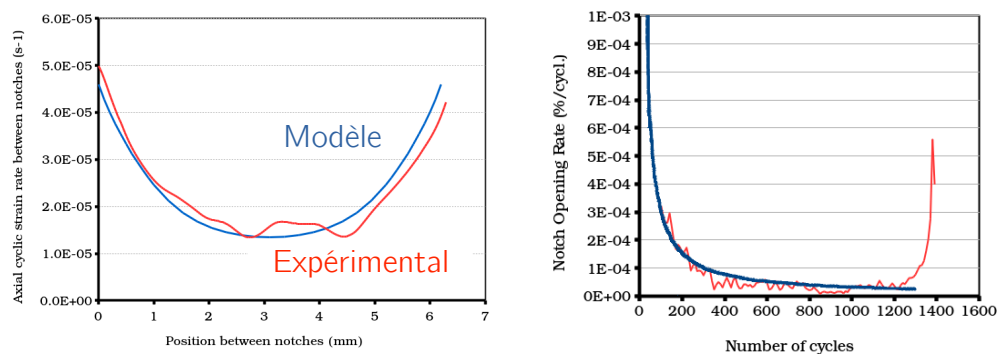


Fig. 4. Profil de vitesse de déformation cyclique dans le ligament à mi-vie et évolution de la vitesse d'ouverture d'entaille pour un échantillon de PA66 entaillé U2 sous chargement de fatigue ( $F_{max}=45MPa$ ,  $R=0.1$ ,  $f=0.5Hz$ ).

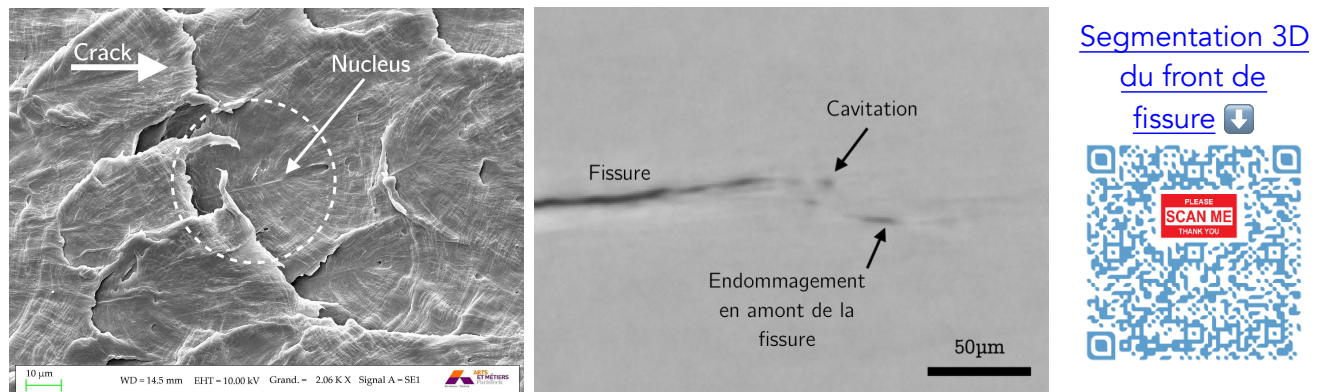
### 3. Micro-échelle

#### 3.1 Mécanismes

Les mécanismes d'endommagement en fatigue usuellement décrits dans la littérature se concentrent généralement sur les renforts du matériaux composite [1,3,4]. Or il apparait désormais que l'endommagement matriciel sous forme de cavitation puis de fissures micrométriques est précurseur des autres types d'endommagement [5]. La compréhension des mécanismes d'endommagement du polymère en fatigue est donc essentielle. Le PA66 s'organise sous forme de sphérolites, colonies *sphériques* composées d'une succession nanométrique de lamelles cristallines et de zones amorphes constituant une structure semi-cristalline.

Nos précédents travaux en tomographie synchrotron et au microscope électronique à balayage (MEB) permettent de montrer que ces sphérolites jouent un rôle majeur dans l'apparition et la propagation de l'endommagement par fatigue [6,7].

La fissure se propage par ouverture des sphérolites dans leurs plans équatoriaux, laissant les noyaux et la structure lamellaire radiale bien visible. Des observations complémentaires permettent de montrer que cet endommagement a lieu en amont du front de fissure principale dans un volume où une cavitation importante mène à l'ouverture progressive des sphérolites (Fig.5).



**Fig. 5.** Fractographie MEB montrant des sphérolites ouvertes dans leurs plans équatoriaux & coupe tomographique montrant l'endommagement en amont du front de fissure.

Le scénario proposé est proche des observations faites en fluage sur du PA6 [12] et un polyéthylène [13], où la microstructure semi-cristalline joue un rôle primordial dans le développement de l'endommagement.

### 3.2 Calculs de microstructure

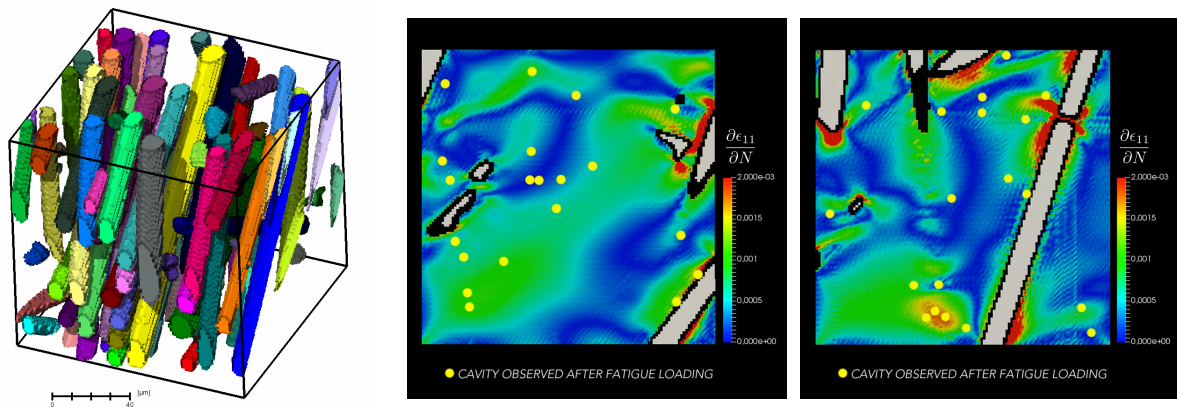
Des microstructures ont été segmentées à partir de données tomographiques haute résolution (taille du bord voxel de 1.1 μm) acquises au synchrotron SOLEIL. Les simulations ont été réalisées sur des volumes cubiques (120 voxels de côté) contenant près d'une centaine de segments de fibres (Fig.6a).

Les fibres sont considérées comme ayant un comportement élastique linéaire, et la matrice un comportement visco-plastique. Un chargement de traction cyclique est imposé en pilotant la déformation globale.

Les calculs ont été effectués à l'aide d'un algorithme basé sur la transformée de Fourier rapide mis au point au LAMPA. L'utilisation d'un tel algorithme, plutôt que d'une approche classique par éléments finis, permet de simuler une région d'intérêt donnée sans qu'il soit nécessaire de mailler la microstructure.

Quatre principaux types de mécanismes d'endommagement ont été étudiés : endommagement à l'extrémité des fibres, rupture de fibres, fissuration et cavitation dans la matrice semi-cristalline.

Nous nous concentrerons ici sur les premiers stades de l'endommagement matriciel sous forme de cavitation. Les résultats des calculs permettent de déterminer pour chaque voxel du volume la vitesse de déformation cyclique, un paramètre dont on sait qu'il est déterminant pour l'évaluation de la durée de vie en fatigue à l'échelle macro. Dans cet exemple nous représentons  $\dot{\epsilon}_{11}$ . Il est également possible d'étudier les autres composante du tenseur ou de calculer une vitesse de déformation cyclique équivalente locale.



**Fig. 6.** Volume d'intérêt pour le calcul de microstructure & cartographies de la vitesse de déformation cyclique axiale avec les positions des cavités reportées en jaune.



Les positions des cavités sont repérées en aveugle par deux observateurs sur les coupes tomographiques. Elles sont ensuite reportées (ici en jaune) sur les résultats des calculs de microstructure (Fig.6).

On montre ainsi que la cavitation semble se développer préférentiellement dans les zones à vitesse de déformation cyclique élevée. Ce paramètre est donc également pertinent à l'échelle de la microstructure comme pilotant l'apparition de l'endommagement sous forme de cavitation.

## 4. Nano-échelle

### 4.1 Mise en place des calculs

L'endommagement en fatigue est localisé dans la zone amorphe dans le plan équatorial des sphérolites. Une modélisation en dynamique moléculaire permet de mieux appréhender les mécanismes à l'échelle de cette zone amorphe inter-lamellaire.

Les calculs sont réalisés avec le code LAMMPS [8]. Dans un premier temps ils sont réalisés sur un modèle composé de 10 chaînes de 1000 pseudo atomes  $\text{CH}_2$  de polyéthylène amorphe - plus simple et couramment utilisé que le PA66 [9]. La frontière supérieure du volume est soumise à un déplacement imposé tandis que la frontière inférieure est maintenue fixe. Les vitesses de chargement imposées correspondent à des vitesses de déformation globales de  $5 \cdot 10^{-6} \text{ fs}^{-1}$ ,  $5 \cdot 10^{-5} \text{ fs}^{-1}$  et  $5 \cdot 10^{-4} \text{ fs}^{-1}$ .

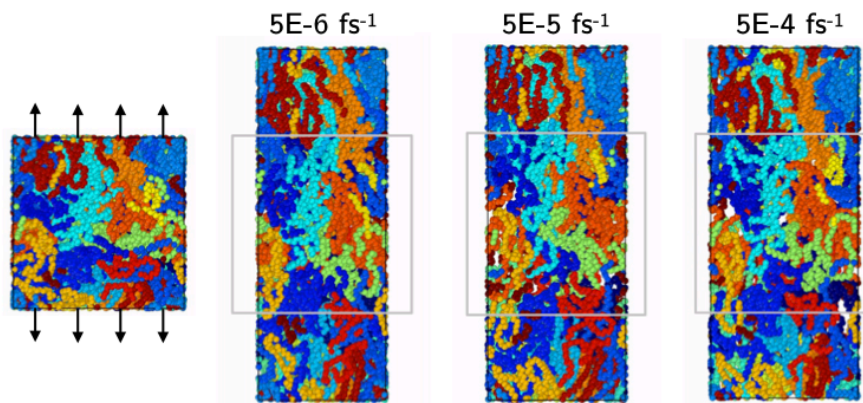


Fig. 7. Volume initial et volumes déformés à différentes vitesses imposées. Les carrés gris montrent la forme du volume initial.

### 4.2 Résultats sur polyéthylène

L'observation des volumes déformés montre un effet Poisson moins important à *haute* vitesse de déformation (Fig.7). Les chaînes polymères ont alors moins le temps de se réarranger pour accommoder la déformation et des vides apparaissent dans le volume. Aux sources de la viscosité du polymère, on peut donc illustrer l'importance de la vitesse de déformation comme paramètre pilotant l'apparition de nano-cavités au sein de la phase amorphe.

### 4.3 Vers un modèle plus complexe

Aller vers un modèle plus complexe peut se faire de plusieurs façons : amélioration des conditions aux limites pour plus de représentativité, passage à un modèle semi-cristallin, mise en place d'un polymères plus complexe.

Améliorer les conditions aux limites pour être plus représentatif pose un problème immédiat : il faut une référence. Empêcher les déformations transverse entraine une cavitation plus précoce dans le polymère amorphe. Cependant il n'est pas évident de savoir si ces conditions sont plus représentatives de la réalité. Evaluer dans quelle mesure les lamelles cristallines empêchent la déformation transverse

de l'amorphe inter-lamellaire n'est pas trivial et pose des questions sur ce qu'est réellement une sphérolite en trois dimensions, au-delà des schémas classiques.

Simuler un ensemble semi-cristallin est possible bien que complexe, comme en témoignent les travaux de plusieurs équipes de recherche [10, 11]. Cependant cette étape est nécessaire pour prendre en compte la complexité de l'interphase lamelle cristalline - amorphe avec des phases amorphes rigides par exemple.

Finalement, la modélisation de chaînes polymères plus complexes comme le PA66 peut se faire de plusieurs manières : en utilisant des pseudo-atomes (approche *gros-grains*) ou en représentant tous les atomes.

### 3. Conclusion

Une étude à plusieurs échelles du comportement en fatigue du PA66 a été réalisée.

La vitesse de déformation pilote l'apparition de nano-cavités à l'échelle des chaînes polymères suivant la capacité des macro-molécules à se réarranger. Cela se retrouve à l'échelle de la microstructure où les cavités observées par tomographie synchrotron (de tailles microscopique) sont préférentiellement formées dans les zones où la vitesse de déformation cyclique est importantes. Tout comme en fluage, l'endommagement est confiné et croît dans des zones précises des sphérolites - ici le plan équatorial. Après percolation des cavités, les sphérolites s'ouvrent en deux et leur structure est observable sur le faciès de rupture. A l'échelle macroscopique, la vitesse de déformation cyclique constitue un indicateur pertinent sur lequel baser des critères de résistance à la fatigue.

La même grandeur, assimilable à une vitesse de fluage, pilote donc la durabilité à toutes les échelles pour des chargements de fatigue.

### Remerciements

Les auteurs remercient Solvay Performance Polyamides pour le soutien à ce travail.

### Références

- [1] Horst JJ. Influence of fibre orientation on fatigue of short glassfibre reinforced Polyamide. 1997.
- [2] Mourglia Seignobos E. Compréhension des mécanismes physiques de fatigue dans le polyamide vierge et renforcé de fibres de verre. 2009.
- [3] Rolland H. Comportement en fatigue et mécanismes d'endommagement du polyamide 6,6 renforcé de fibres courtes. 2017.
- [4] Sato N, Kurauchi T, Sato S, Kamigaito O. Microfailure behaviour of randomly dispersed short fibre reinforced thermoplastic composites obtained by direct SEM observation. *J Mater Sci*. 1991.
- [5] Rolland H, Saintier N, Raphael I, Lenoir N, King A, Robert G. In-situ fatigue damage mechanisms in short fibre reinforced PA66 as observed by synchrotron X-ray microtomography. *Compos Part B Eng*. 2018.
- [6] Raphael I, Saintier N, Bega J, Laiarinandrasana L, Robert G. Spherulitic fatigue damage in semi-crystalline thermoplastics. *To be published...*
- [7] Raphael I, Saintier N, Laiarinandrasana L, Robert G. Investigation of the fatigue behavior of notched reinforced thermoplastics. In *MATEC Web of Conferences*. EDP Sciences. 2018.
- [8] Plimpton, Fast Parallel Algorithms for Short-Range Molecular Dynamics. 1995.
- [9] Tschopp MA, Bouvard JL, Ward DK, Horstemeyer MF. Atomic Scale Deformation Mechanisms of Amorphous Polyethylene under Tensile Loading. *Suppl Proc Mater Fabr Prop Charact Model*. 2011.
- [10] Lee S, Rutledge GC. Plastic deformation of semicrystalline polyethylene by molecular simulation. *Macromolecules*. 2011;44(8):3096-3108. doi:10.1021/ma1026115.
- [11] Clavier G. Étude à l'échelle moléculaire des propriétés mécaniques des polymères semi-cristallins. 2017.

- [12] Selles N, Nguyen F, Morgeneyer TF, Proudhon H, Ludwig W, Laiarinandrasana L. Comparison of voiding mechanisms in semi-crystalline polyamide 6 during tensile and creep tests. *Polym Test*. 2016
- [13] Hamouda HBH, Laiarinandrasana L, Piques R. A local approach to creep fracture by slow crack growth in an MDPE : Damage modelling. *Int J Press Vessel Pip*. 2009.