
CARACTERISATION MECANIQUE, MICROMECHANIQUE ET MICROSTRUCTURALE

Après une première phase d'exposition et d'analyse du comportement tribologique des composites de l'étude, ce quatrième chapitre est dédié à la présentation et la discussion d'une seconde partie des résultats expérimentaux. En effet, l'objectif de ce volet est de décrire de manière synthétique le comportement mécanique des composites et de comparer les résultats obtenus pour les deux méthodologies d'élaboration citées précédemment. La détermination des propriétés mécaniques de ces composites sera opérée à travers des essais de traction. Afin de compléter au mieux cette étude, des tests de rayure ont été conduits. Par ailleurs, une étude microstructurale complémentaire a été entreprise visant à étudier l'impact des propriétés interfaciales « matrice/particule » sur le comportement mécanique.

1. Introduction

Cette étude vise à représenter, en premier lieu, les résultats des tests de traction uniaxiale élaborés sur les composites thermoplastique/lubrifiant solide. De ce fait, les fractions massiques de lubrifiants solides ajoutés aux polymères de l'étude ont été conservées. Tous les tests ont été conduits à une vitesse de traverse de 5 mm/min. La caractérisation du comportement mécanique des polymères chargés de particules de graphite ou de bisulfure de molybdène vise à explorer l'évolution des propriétés mécaniques avec le taux de charges. Une

étude complémentaire porte sur la caractérisation de l'adhésion à l'interface matrice/particule de lubrifiant solide, pour cela, des tests de rayure à charge progressive ont été effectués. Dans une dernière partie, la caractérisation microstructurale s'avère nécessaire pour identifier les mécanismes interfaciaux mis en jeu et l'impact de la méthodologie d'élaboration sur ces mécanismes. De ce fait, des observations au MEB de la surface fracturée des échantillons et des analyses par la technique de la tomographie aux rayons X ont été menées.

Caractérisation mécanique des composites par l'essai de traction uniaxiale

Cette partie consiste à déterminer l'effet de l'insertion de différents taux de lubrifiant solide sur le comportement mécanique des matrices thermoplastiques de l'étude mis en forme par deux procédés d'élaboration différents. À cette fin, des essais de traction uniaxiale ont été réalisés en gardant une vitesse de traverse fixe égale à 5 mm/min.

2.1. Caractérisation mécanique des composites directement injectés

En premier lieu, la caractérisation mécanique par l'essai de traction sera exposée en focalisant l'étude sur les échantillons élaborés par injection directe à des fractions massiques de 0%, 2%, 4%, 7% et 10% en masse de lubrifiant solide.

2.1.1. Influence des lubrifiants solides sur les propriétés mécaniques des composites en PC

Le comportement en traction uniaxiale des composites PC/MoS₂ est représenté sur la figure 4.1. L'examen de cette figure, montre une variation notable de la réponse mécanique des éprouvettes selon le taux massique de MoS₂ inséré. La rupture des éprouvettes en PC est obtenue pour une déformation de l'ordre de 10%. Cependant, une addition des taux massiques de MoS₂ supérieurs à 4% provoque une rupture prématurée des éprouvettes avant même d'atteindre la contrainte d'écoulement plastique. La déformation à la rupture moyenne à 4% de MoS₂ est de 3,02%. Elle est de 1,76% pour les échantillons en PC à 10% MoS₂. Les variations du module d'Young, de la résistance maximale (R_m) et de la déformation à la rupture (ϵ_r) en fonction du taux massique MoS₂ sont portées sur la figure 4.2.

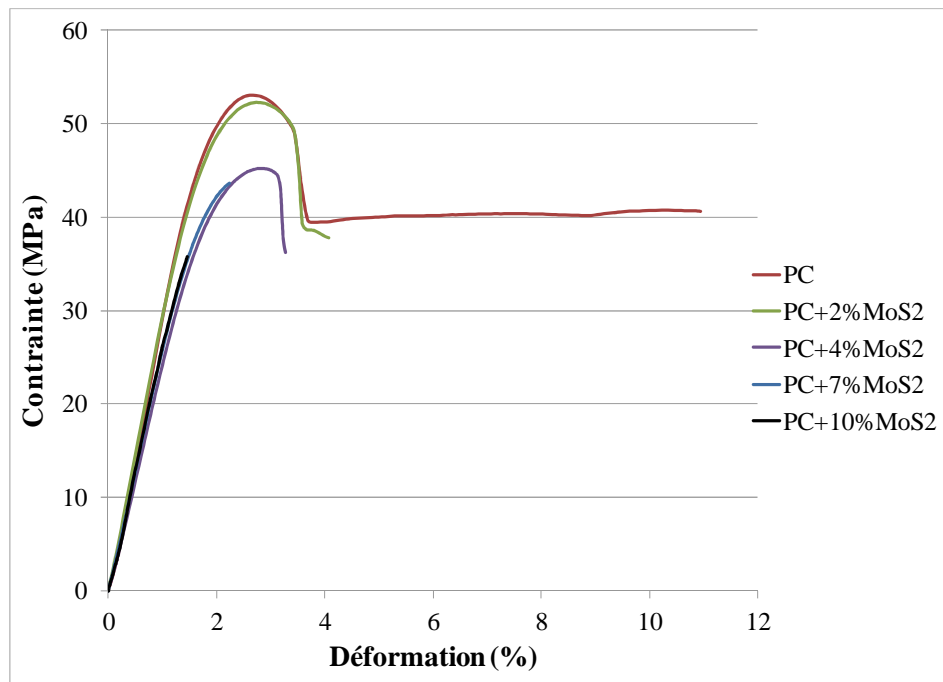


Figure 4.1 Courbes conventionnelles typiques de traction des composites en PC à différents taux massiques de MoS₂

L'examen de la figure 4.2. montre une diminution progressive des propriétés de résistance et de rigidité des composites en PC/MoS₂. La valeur de la résistance mécanique passe de 55,32 MPa pour le PC à 37,7 MPa pour le PC à 10% de MoS₂. De même, La valeur du module d'élasticité passe de 2934 MPa pour le PC à 2589 MPa pour le PC à 10% en masse de MoS₂.

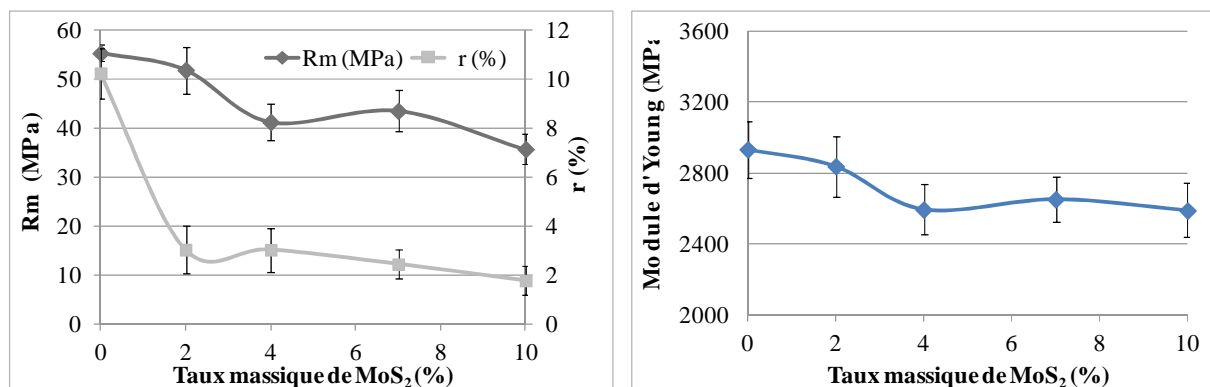


Figure 4.2 Évolution des propriétés mécaniques des composites en PC avec le taux massique de MoS₂

Similairement au cas de la poudre de bisulfure de molybdène, l'addition de graphite dans le PC a été reproduite avec les mêmes fractions massiques et on a réalisé des essais de traction uniaxiale dans les mêmes conditions. La figure 4.3 montre l'évolution de la contrainte en fonction de la déformation pour les composites PC/graphite. Sur cette figure, il apparaît qu'une rupture prématurée de l'éprouvette se développe à des fractions massiques de graphite supérieures ou égale à 2%, le composite subit une rupture avant même d'atteindre le plateau d'écoulement plastique. La valeur moyenne de la déformation à la rupture à 10% en masse de graphite est devenue extrêmement faible de l'ordre de 0,92%.

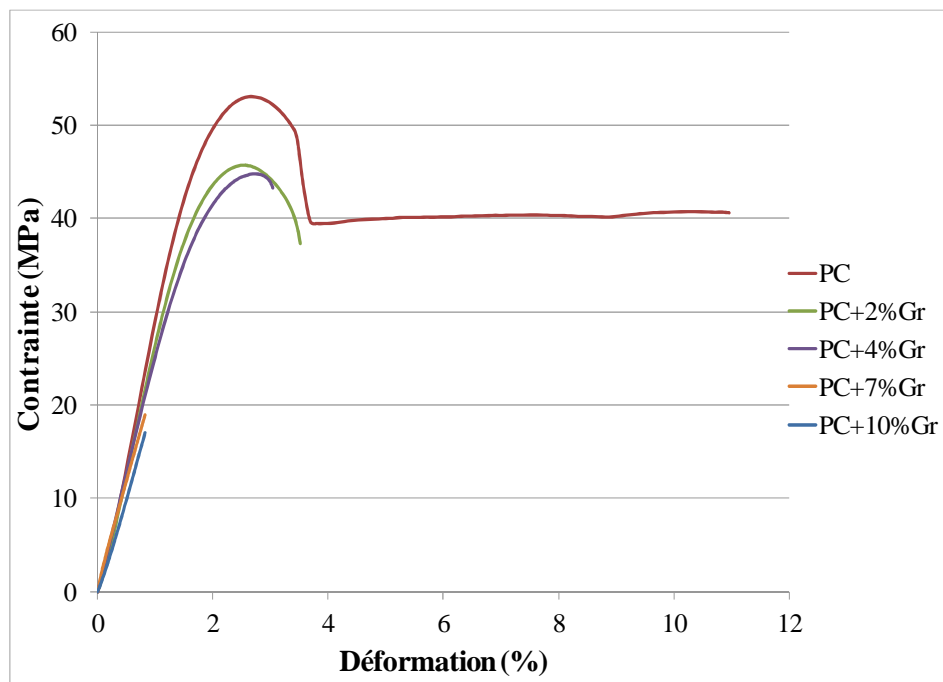


Figure 4.3 Courbes conventionnelles typiques de traction des composites en PC à différents taux massiques de graphite

La figure 4.4 montre clairement une chute notable des valeurs moyennes de la déformation à la rupture (ϵ_r) dès l'addition de 2% en masse de graphite. Les valeurs des trois propriétés mécaniques représentées sur la figure 4.4 montrent une chute considérable pour un taux de 7% en masse de la poudre de graphite. À ce pourcentage, la valeur moyenne de la résistance mécanique passe de 55,32 MPa à 20,65 MPa, similairement, le module élastique passe de 2994 MPa à 2107 MPa.

À partir de ce qui précède, on déduit aisément que l'introduction de la poudre de graphite dans le polymère en PC a causé une dégradation des propriétés mécaniques du polymère et

que cette dégradation s'accroît avec la concentration de ce lubrifiant solide. Une rupture fragile des éprouvettes, située dans la zone de déformation élastique, apparaît à partir de 7% en masse de graphite.

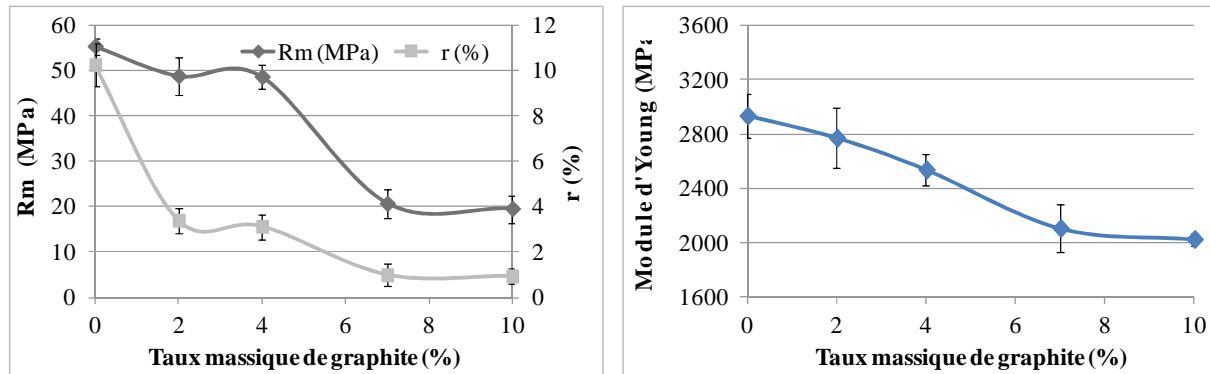


Figure 4.4 Évolution des propriétés mécaniques des composites en PC avec le taux massique de graphite

Dans cette section 2.1.1, nous avons constaté que l'addition de différents taux de lubrifiant solide à une matrice en PC altère les propriétés mécaniques du polymère. Cet effet est d'autant plus prononcé que le taux de lubrifiant solide incorporé est élevé. De plus, en comparant l'effet de l'addition du graphite et du MoS₂, on constate que le graphite affecte le comportement mécanique du PC beaucoup plus que le MoS₂. Cet effet est remarqué par une rupture extrêmement fragile des échantillons à partir de 7% en masse de graphite incorporé. Ce résultat est en parfait accord avec nos travaux réalisés sur des composites en ABS/graphite (Ben Difallah et al., 2012a). Les résultats ont montré une diminution significative du module élastique et de la déformation à la rupture suite à l'insertion du graphite à la matrice ABS. Ramasubramanian *et al.* ont réalisé des travaux similaires sur l'influence de l'introduction de particules de lubrifiant solide, à savoir le graphite et le MoS₂, sur le comportement mécanique en traction et en compression de l'UHMWPE (Ramasubramanian et al., 1993). Ces auteurs ont déduit que l'altération des propriétés mécaniques de ce polymère dépend fortement de la structure cristalline intrinsèque et de la taille des molécules du lubrifiant solide. De plus, elle est influencée par les répulsions électrostatiques entre les molécules de lubrifiant solide et les chaînes du polymère. Notons aussi que l'effet de la taille des particules peut jouer un rôle important sur le comportement mécanique des polymères (Fu et al., 2008; Chao et al., 2013). Les études montrent que plus la taille des particules est petite, meilleure est la réponse

mécanique au sein des composites (Wacharawichanant et *al.*, 2008; He et *al.*, 2008). De ce fait, en examinant la taille des particules de poudres de lubrifiant solide ajoutées (chapitre II, section 1.2), on constate que la taille des particules de graphite est supérieure à celles du MoS₂. Cet effet peut être la cause d'une dégradation plus élevée avec les inclusions de graphite.

influence des lubrifiants solides sur les propriétés mécaniques des composites en PA

Une seconde série d'éprouvettes en PA6-6 a été produite afin de tester le comportement en traction des échantillons à différents taux massiques de lubrifiant solide ajoutés. La figure 4.5 illustrent l'évolution des allures typiques des courbes de traction des composites en PA à différents taux massiques de MoS₂. L'examen de la figure montre une dégradation notable des propriétés mécaniques du PA6-6 qui est d'autant plus accentuée que le taux de MoS₂ est élevé. À partir de 7% en masse de MoS₂, la rupture des éprouvettes s'est produite avant le plateau d'écoulement plastique montrant ainsi un caractère à dominance fragile. Les caractéristiques mécaniques les plus significatives sont représentées sur la figure 4.6.

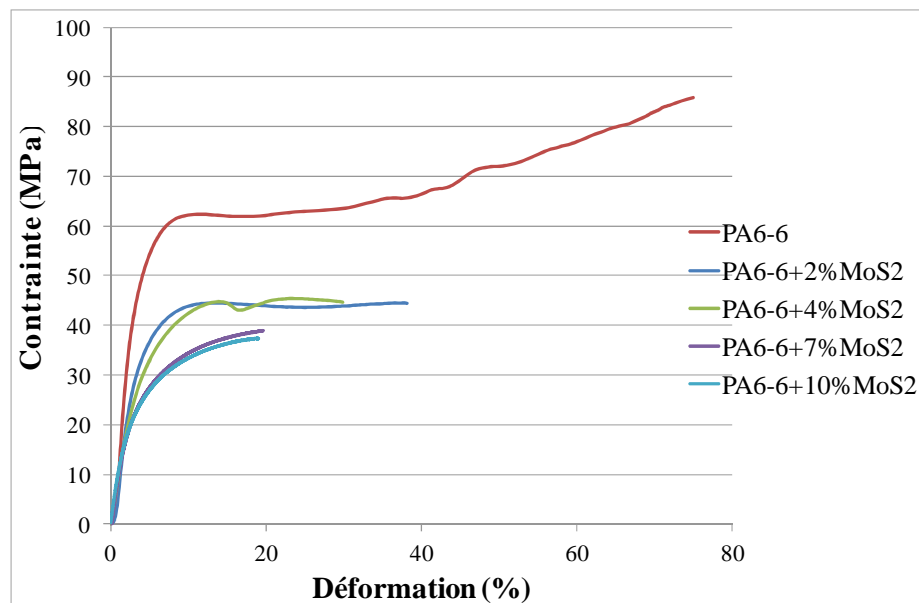


Figure 4.5 Courbes conventionnelles typiques de traction des composites en PA6-6 à différents taux massiques de MoS₂

La figure 4.6 montre que l'insertion de 2% en masse de MoS₂ engendre une baisse notable des valeurs de la résistance mécanique et de la déformation à la rupture. La valeur moyenne

de la déformation à la rupture qui était initialement de 71% passe à 41,25% pour le composite en PA6-6 à 2% de MoS₂ alors que la valeur moyenne de la résistance mécanique passe de 84,17 MPa à 45 MPa. Le module élastique a tendance à diminuer de façon quasi-linéaire avec l'augmentation du taux de MoS₂, et ce, jusqu'à un pourcentage massique de 7% au-delà duquel il augmente légèrement.

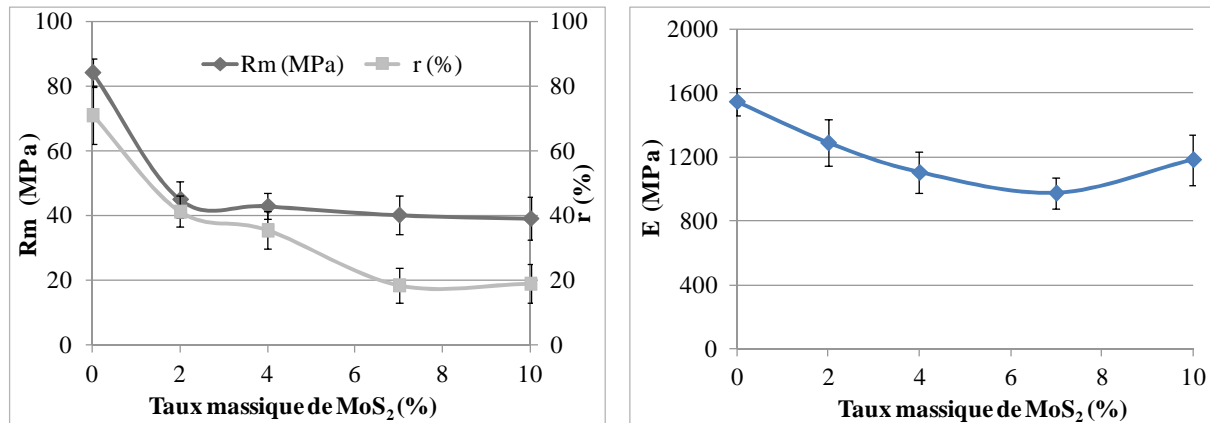


Figure 4.6 Évolution des propriétés mécaniques des composites en PA6-6 avec le taux massique de MoS₂

Dans les paragraphes précédents de la section 2.1.2, nous avons porté une attention particulière au comportement en traction du PA6-6 à différents taux de MoS₂. La partie suivante concerne l'étude du comportement mécanique de ce même polymère en insérant des taux similaires de graphite. À cette fin, une autre série d'essais de traction a été effectuée. Les courbes typiques de traction résultantes sont représentées sur la figure 4.7.

De la même manière que dans le cas du MoS₂, nous retrouvons une altération importante des propriétés mécaniques pour les quatre fractions massiques considérées du graphite. Pour des taux de graphite supérieurs à 7% en masse, il y a rupture avant le plateau d'écoulement plastique montrant un caractère à dominance fragile. Afin de mieux comprendre l'influence de l'addition du graphite sur le comportement en traction du composite, les évolutions des principales caractéristiques mécaniques en fonction du taux de charges sont portées sur la figure 4.8.

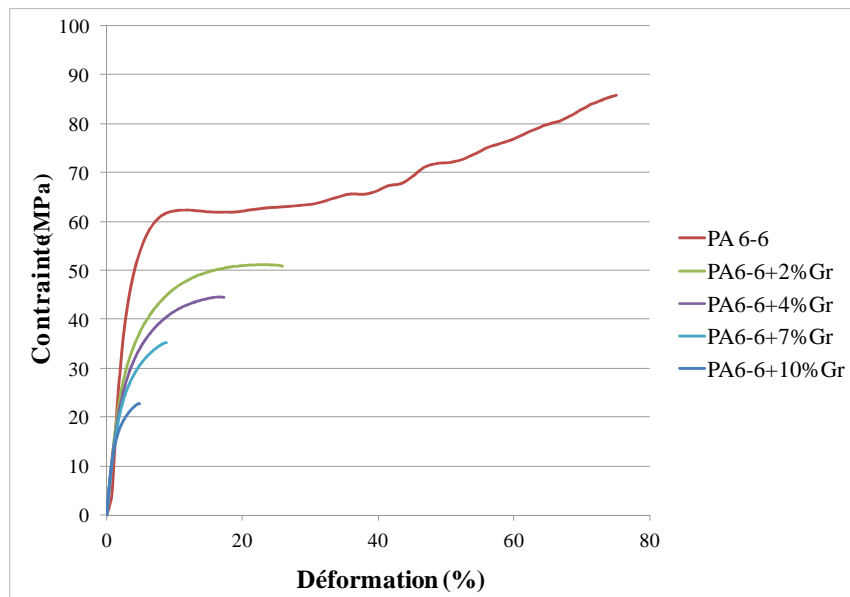


Figure 4.7 Courbes conventionnelles typiques de traction des composites en PA6-6 à différents taux massiques de graphite

À partir de la figure, on note que l'addition de 10% de graphite dans la matrice en PA6-6 affecte notablement la valeur de la déformation à la rupture qui chute de 71% à 4,28%.

Similairement, on note une chute de la résistance mécanique qui passe de 84,17 MPa à 22,68 MPa. De plus, on observe une régression au niveau du module élastique qui passe d'une valeur de 1544 MPa pour le PA6-6 à 1218 MPa à 7% de graphite additionné. L'examen détaillé des principales propriétés mécaniques du PA et de ses composites en graphite montre donc une forte altération des caractéristiques mécaniques d'autant plus importante que le taux de charges est élevé. Le graphite semble dégrader les caractéristiques du polymère plus que le MoS₂.

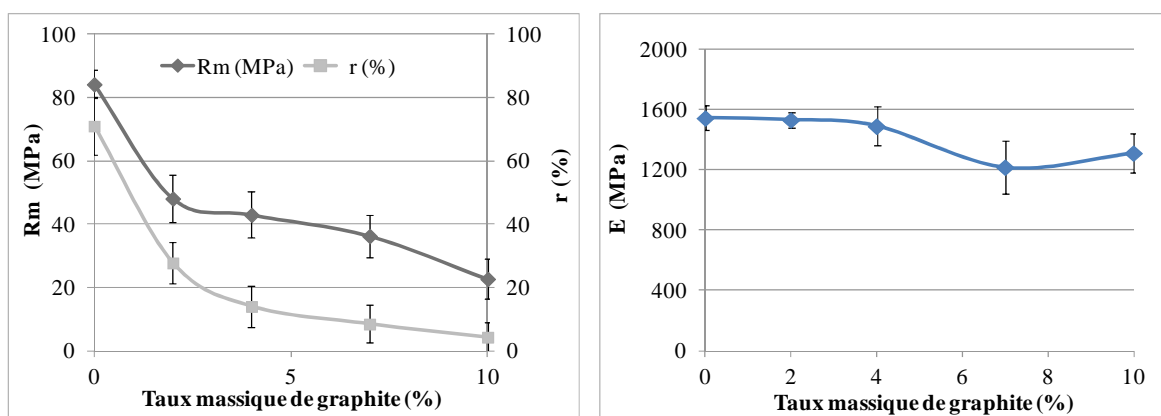


Figure 4.8 Évolution des propriétés mécaniques des composites en PA6-6 avec le taux massique de graphite

2.1.3. Conclusion sur les caractéristiques mécaniques en traction des composites injectés directement

Cette partie concerne l'étude de l'effet de l'incorporation de deux types de lubrifiants sous forme de poudre aux polymères thermoplastiques (PC et PA6-6) élaborés par injection directe. La réponse mécanique en traction des composites varie selon la nature de la matrice thermoplastique ainsi que selon la nature et le taux du lubrifiant solide. En effet, le PC de structure amorphe semble être extrêmement fragilisé par l'addition du lubrifiant solide. Le PA, de structure semi-cristalline, montre un caractère à dominance fragile à partir d'une certaine fraction massique de lubrifiant solide. Ramasubramanian *et al.* expliquent ce résultat par l'absence de chaînes cristallines à partir desquelles le lubrifiant solide puisse suivre l'alignement et donc glisser dans des mêmes directions de glissement, (Ramasubramanian *et al.*, 1993). Wang *et al.* prétendent que cette altération est due à la difficulté de l'établissement des liaisons chimiques entre le polymère et la poudre de lubrifiant solide, (Wang *et al.*, 2005). Par ailleurs, les résultats ont montré que le graphite altère notablement le polymère en comparaison avec le MoS₂. Ce résultat est probablement dû à de fortes répulsions électrostatiques entre les molécules de graphite et les chaînes du polymère. La taille la plus importante des particules de graphite peut aussi être la cause de ce résultat.

2.2. Impact du prétraitement des poudres de lubrifiants solides sur la réponse mécanique des composites

Dans les paragraphes suivants, on exposera l'effet de la préparation des échantillons par la seconde méthodologie d'élaboration sur le comportement en traction des composites de l'étude. De ce fait, plusieurs séries d'échantillons à 0%, 4%, 7% et 10% en masse de lubrifiant solide ont été préparées. Les propriétés mécaniques les plus significatives seront mesurées et comparées. D'une manière générale, les courbes conventionnelles de traction ont conservé leurs allures, elles ne seront pas représentées dans ce qui suit.

2.2.1 Cas des composites en PC

L'examen des propriétés mécaniques des composites PC/MoS₂ montre une régression générale de celles-ci quand le taux de poudre de MoS₂ prétraitée augmente (Figure 4.9). La résistance mécanique et le module élastique diminuent faiblement d'une façon quasi-linéaire. La valeur de la résistance mécanique passe de 51,90 MPa à 42,08 MPa suite à l'incorporation de 10% en masse de MoS₂, de même, le module élastique passe d'une valeur de 2910 MPa à

une valeur de 2650 MPa. Notons aussi que la déformation à la rupture diminue à fur et à mesure que le taux de MoS₂ augmente. Nous remarquons néanmoins que celle-ci arrive à atteindre la zone de déformation plastique pour les diverses fractions massiques de MoS₂ ajoutées. La déformation à la rupture passe de 10,60% pour le PC à 4,27% pour le composite PC+10% MoS₂.

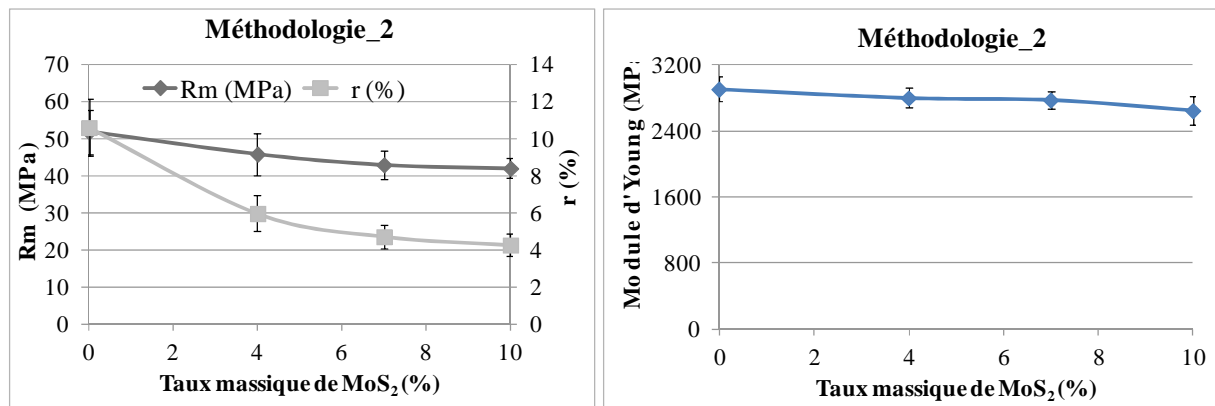


Figure 4.9 Évolution des propriétés mécaniques des composites en PC, élaborés par la seconde méthodologie, avec le taux massique de MoS₂

Les propriétés mécaniques des composites PC/graphite élaborés avec le prétraitement des poudres sont représentées sur la figure 4.10. On remarque que, similairement au cas de la poudre de MoS₂, le graphite affecte défavorablement le comportement en traction du polymère étudié. Cela se traduit principalement par une légère diminution au niveau de son module élastique et de sa résistance à la traction ainsi qu'une importante décroissance au niveau de la déformation à la rupture dès l'addition de 4% en masse de graphite. La valeur de la déformation à la rupture passe de 10,60% pour le PC à 4,27% pour le composite à 4% en masse de graphite.

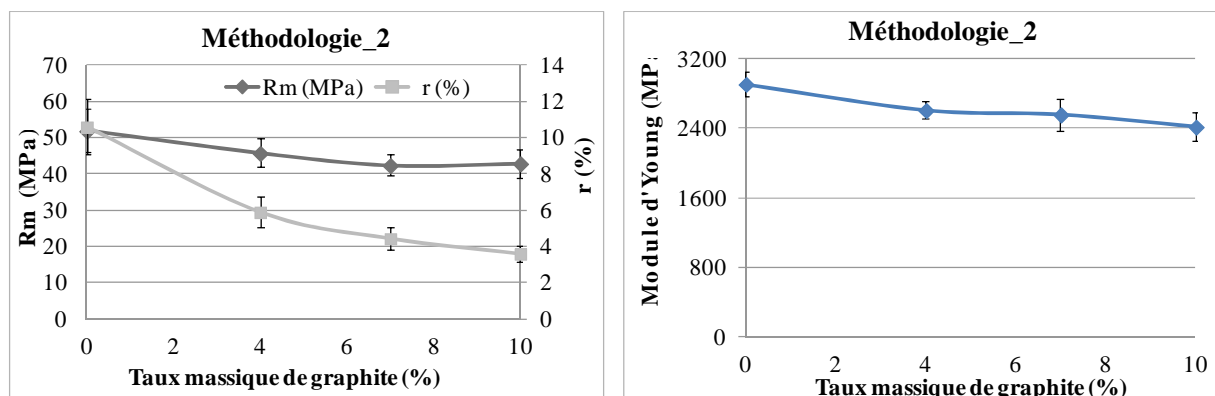


Figure 4.10 Évolution des propriétés mécaniques des composites en PC, élaborés par la seconde méthodologie, avec le taux massique de graphite

L'examen des différentes propriétés mécaniques obtenues montre de faibles écarts types en les comparant à ceux obtenus avec la première méthode, cela signifie que la dispersion des valeurs est moindre et qu'il y a une meilleure reproductibilité des résultats. Cet effet pourra être attribué à l'ajout d'une étape de mélangeage dont le rôle est la contribution à éliminer les effets d'agglomération des particules de lubrifiants solides. Les particules agglomérées présentent un terrain favorable à la concentration des contraintes et l'apparition des microfissures, ce qui conduit à une fragilisation du composite (Suresha *et al.*, 2010). Cet effet sera mieux souligné dans le volet de caractérisation microstructurale par tomographie X. L'effet négatif de l'ajout du lubrifiant sous forme de poudre à la matrice en PC semble être atténué par la seconde méthodologie. Le tableau suivant récapitule la variation des propriétés de traction entre les particules traitées et non traitées du lubrifiant solide :

Tableau 4.1 Récapitulatif des propriétés de traction en fonction de la méthodologie d'élaboration pour les composites PC/lubrifiant solide

	%MoS ₂	Module (MPa)	m (MPa)	r (%)	%Gr	Module (MPa)	m (MPa)	r (%)
Méthodologie 1	0	2934	55,32	10,24	0	2934	55,32	10,24
	4	2595	41,24	3,02	4	2537	48,59	3,12
	7	2653	43,52	2,44	7	2108	20,65	0,98
	10	2589	35,70	1,77	10	2026	19,51	0,92
Méthodologie 2	0	2911	51,91	10,61	0	2911	51,91	10,61
	4	2803	45,91	5,98	4	2611	45,77	5,91
	7	2779	43,03	4,73	7	2561	42,45	4,45
	10	2651	42,08	4,28	10	2421	42,91	3,61

Dans la littérature, l'effet du traitement des additifs sur le module élastique et la résistance mécanique des composites est contradictoire. Cependant, certaines études ont mis en lumière des points importants de l'impact de huit agents de couplage différents sur les propriétés en traction des composites en PP/CaCO₃ (Demjén *et al.*, 1998). Les auteurs ont classé le silane amino-fonctionnel (AMP TES) employé comme étant un traitement réactif vu que la limite élastique et la résistance mécanique des composites ont augmenté en les comparant aux additifs non traités. Ils expliquent ce résultat par la présence des réactions chimiques entre des groupes amino et des groupes carboxyles formés sur les chaînes du PP au cours de l'étape d'homogénéisation (Demjén *et al.*, 1999). Le résultat de cette réaction est la formation d'un

fort groupement amide provoquant un couplage chimique, d'où, une amélioration de l'interaction à l'aire interfaciale entre le polymère et l'additif (Phueakbuakhao et *al.*, 2008). D'autres travaux ont été focalisés sur le rôle de deux agents de couplage différents sur les propriétés mécaniques des composites fibres/PC (Deng et *al.*, 2004). Pour cela, des modèles interfaciaux ont été construits et le travail d'adhésion a été calculé à partir des simulations de la dynamique moléculaire (MD). Les résultats ont montré une diffusion profonde des chaînes de PC sur la surface de l'AMPTES ce qui a provoqué une amélioration de la ductilité et a permis à l'interface AMPTES/PC d'entretenir la meilleure aptitude à la déformation. Dans notre cas, nous avons assisté à une amélioration des performances mécaniques des composites en PC suite au traitement des particules de lubrifiant avec l'AMPTES. Nous suggérons que la création de fortes liaisons chimiques pourra être entretenue vu que le polycarbonate présente sur sa chaîne polymérique un groupement carboxyle prêt à établir des liaisons chimiques fortes avec le silane employé.

2.2.2 Cas des composites en PA

Dans cette partie, on examinera les propriétés mécaniques issues des essais de traction uniaxiale pour les composites en PA chargés de lubrifiant solide sous forme de poudre traitée. La figure 4.11 expose la variation des propriétés sélectionnées en fonction du taux massique de MoS₂ ajouté. Une chute notable est observée pour ces caractéristiques suite à l'ajout de 7% en masse de poudre de MoS₂. Le module élastique initial de 1490 MPa passe à 1201 MPa, de même, la résistance mécanique varie de 76 MPa à 48 MPa et la déformation à la rupture passe de 63% à 18,30%. Au-delà de ce pourcentage massique, ces propriétés mécaniques évoluent très peu. La variation globale des caractéristiques en traction est proche de celle observée sans traitement des poudres mais avec un moindre écart type.

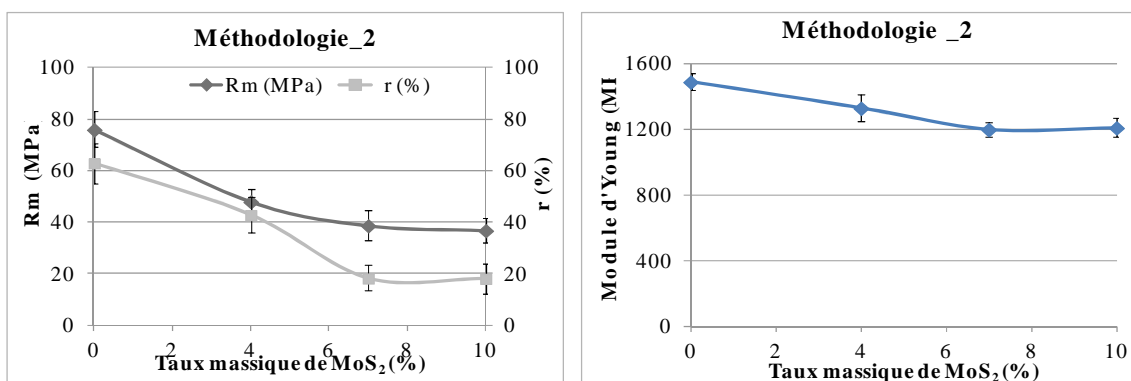


Figure 4.11 Évolution des propriétés mécaniques des composites en PA6-6, élaborés par la seconde méthodologie, avec le taux massique de MoS₂