

Développement d'un outil de description des populations d'inclusions dans un élastomère à partir de mesures par micro-tomographie aux rayons X

T. GLANOWSKI^{a,b}, Y. MARCO^a, V. LE SAUX^a, B. HUNEAU^c, C. CHAMPY^b, P. CHARRIER^b

a. IRDL, UMR CRNS 6027, ENSTA Bretagne, yann.marco@ensta-bretagne.fr,
vincent.le_saux@ensta-bretagne.fr

b. Vibracoustic CAE & Durability Prediction, thomas.glanowski@vibracoustic.com,
clement.champy@vibracoustic.com, pierre.charrier@vibracoustic.com

c. GeM, UMR CNRS 6183, Ecole Centrale de Nantes, bertrand.huneau@ec-nantes.fr

Résumé :

Les propriétés en fatigue des élastomères chargés sont très fortement connectées aux populations d'inclusions générées par leurs recettes complexes et les étapes successives du procédé de fabrication (mélangeage, injection et cuisson). L'optimisation de ces propriétés passe donc à la fois par une capacité à décrire les caractéristiques statistiques de ces populations d'inclusions en termes de taille, géométrie, dispersion spatiale, nature mais également par une compréhension fine des mécanismes de ruine à l'œuvre en fonction de ces paramètres, afin de définir leur criticité en termes de tenue mécanique, en particulier sous chargement cyclique. Cette étude présente les outils de description développés, basés sur une analyse fine de données de micro-tomographie aux rayons X. Ils représentent la première étape vers la détermination de la sévérité des particules.

Abstract :

The fatigue properties of filled elastomers are strongly related to the inclusions' population induced by their complex recipes and the successive stages of the manufacturing process (mixing, injection and curing). The improvement of these properties involves at first an ability to describe the statistical features of these inclusions' population in terms of size, geometry, nature and spatial distribution. Then a detailed understanding of the damage mechanisms is required in order to define the mechanical criticality of inclusions according to their characteristics under cyclic loading. The aim of the study is to take advantage of tomography observations that enable a three dimensional vision to access the statistical description of the inclusions population and of the related damage mechanisms. The aim of this communication is to present a tool used to detect the inclusions in the volume and to quantify this population through various indicators.

Mots clefs : micro-tomographie aux rayons X ; matériaux élastomères ; analyse d'images.

1 Introduction

En raison de leur capacité à subir de grandes déformations de manière quasi-réversible et de leur caractère amortissant, les matériaux élastomères sont très largement utilisés dans tous les secteurs de l'industrie. Dans le domaine de l'antivibratoire automobile notamment, ils jouent un rôle clé quant au confort perçu par les passagers sur la route. Les chargements mécaniques vus par ces pièces sont généralement cycliques et la bonne résistance en fatigue est une nécessité pour le bon dimensionnement de celles-ci. Afin de garantir ce bon dimensionnement, plusieurs approches sont possibles, mais le choix le plus naturel consiste à raisonner à l'échelle du matériau et à choisir un matériau des propriétés en fatigue optimales. Pour autant, le choix du « bon » matériau est une étape difficile en raison des très nombreux facteurs qui influent, comme la formulation, *i.e.* le choix des ingrédients ou les paramètres du procédé (mélangeage, injection, cuisson). Bien qu'il soit évident que la microstructure conditionne la résistance en fatigue, il est encore aujourd'hui délicat de pouvoir associer des indicateurs microstructuraux aux propriétés en fatigue. Pourtant, leur définition permettrait de mieux mettre en avant les liens entre la microstructure et la tenue en fatigue, ce qui constituerait une grande avancée pour les départements matériaux des caoutchoutiers.

L'objectif de ce papier est de présenter un outil de traitements d'images développés spécifiquement visant à détecter et qualifier les populations d'inclusions présentes dans un caoutchouc naturel industriel à partir de mesures par micro-tomographie aux rayons X. Le matériau et les éprouvettes utilisées sont dans un premier temps présentés. Les tomographies et leur analyses sont ensuite présentées. Les indicateurs utilisés pour décrire cette microstructure sont détaillés et mis en œuvre sur les données présentées. Une conclusion et les perspectives d'application de cet outil sont enfin présentés.

2 Matériau, éprouvettes & tomographe

Le matériau considéré dans cette étude est un caoutchouc naturel industriel renforcé aux noirs de carbone. Deux types d'éprouvettes sont considérés. Les éprouvettes considérées sont des éprouvette axi-symétriques diabolo appelée AE2 (voir [3] pour la géométrie) qui sont représentatives des pièces industrielles en raison d'un certain nombre de points. Afin de pouvoir atteindre des résolutions intéressantes ($\approx 1.7 \mu\text{m}$), un barreau de petit diamètre (environ 3 mm) est extrait de ces éprouvettes à l'aide d'un emporte pièce spécifiquement développé pour cette application. Les mesures sont réalisées avec le micro-tomographe X-Radia MicroXCT-400 de l'Ecole Centrale de Nantes.

3 Analyse des tomographies

Nous avons choisi de développer nous même nos outils d'analyse (plutôt que d'utiliser une solution commerciale ou des outils « clé en main » tel ImageJ), afin de contrôler avec précision le processus d'analyse. L'ensemble des développements ont été réalisés avec le langage python, notamment la librairie scikit-image [8], et les affichages sont réalisés à l'aide de la librairie VTK [9]. Ils tirent parti des architectures modernes en profitant du multiprocessing permettant de réaliser les calculs de manière parallèle.

3.1 Démarche

L'objectif de l'analyse des données consiste à analyser la séquence d'images 2D (format TIFF non compressée, codée sur 32 bits) générées par le logiciel d'acquisition de micro-tomographe après l'étape de reconstruction pour mettre en lumière les inclusions dans le matériau. Selon le classe de matériau étudié, cette étape peut être relativement simple à réaliser en raison des contrastes marqués entre les différents constituants du matériau. Dans le cas des matériaux élastomères, la différence de contraste est peu marquée, rendant de ce fait l'analyse complexe, tout particulièrement dans le cas des agglomérats de noir de carbone [4] qui pourtant joue un rôle fondamental dans la tenue en fatigue du matériau [6, 1]. De plus, le volume de données à analyser est conséquent (environ 10Go de données pour une tomographie compte tenu des résolutions visées), ce qui nécessite des moyens informatiques spécifiques.

L'approche retenue ici est schématisée sur la figure 1 et consiste en plusieurs étapes clés. L'ensemble des

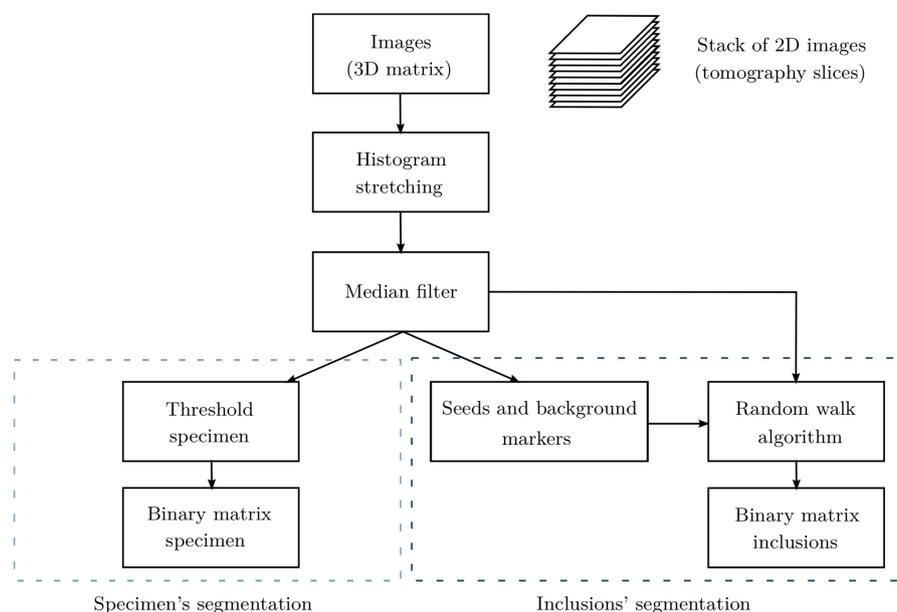


FIGURE 1 – Organigramme de l'approche proposée pour l'analyse des images.

images brutes 2D sont dans un premier temps assemblées pour former le volume d'étude 3D. Un pré-traitement est ensuite réalisé sur ce volume consistant en un étirement de l'histogramme (en tronquant les valeurs extrêmes à hauteur de 0.5%) permettant d'apporter une meilleure dynamique aux résultats. Les données sont converties en double et normalisées pour que la plage de valeur soit comprise entre 0 et 1. Un filtre médian de noyau $3 \times 3 \times 3$ est ensuite appliqué afin de supprimer l'aspect « poivre & sel » des images (cf. Figure 2). Ces images servent ensuite de base pour les traitements qui suivent.

L'objectif du traitement qui suit répond à deux objectifs : séparer l'éprouvette du fond et séparer les inclusions de la matrice. La première action est réalisée simplement à l'aide d'un seuillage classique. Cette opération est rendue possible par le contraste marqué entre le fond et l'éprouvette (cf. Figure 2b). La détection des inclusions au sein de la matrice est plus délicate car les variations de contrastes sont nettement plus subtiles. D'une manière générale, il est possible de détecter des oxydes métalliques de plus forte densité que la matrice (qui apparaissent plus clairs sur les clichés), des agglomérats de noir de carbone dont la densité est très proche de celle de la matrice (rendant leur détection très complexe) et des particules de natures diverses qui peuvent être plus dense ou moins dense que la matrice en fonction

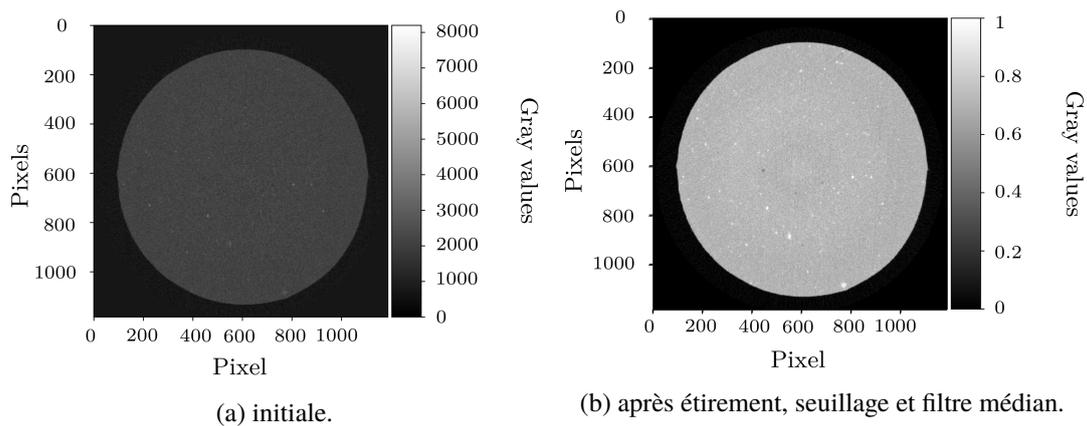


FIGURE 2 – Illustration du pré-traitement réalisé sur les images.

de leur nature. Les différences de contrastes, quelque soit la nature de la particule, restent peu marquées, rendant leur détection par seuillage classique délicat car très fortement dépendant du seuil retenu.

Nous avons retenu dans cette étude une approche basée sur l'algorithme du « random walk » de Grady [7]. Le principe de fonctionnement est présenté sur la figure 3 et consiste à définir deux seuils qui peuvent être définis dans trop d'ambiguïté : le premier concerne le niveau de gris pour lequel on est certain d'être dans une particule, et le second dans la matrice. Entre ces deux seuils se trouve une zone indéterminée où

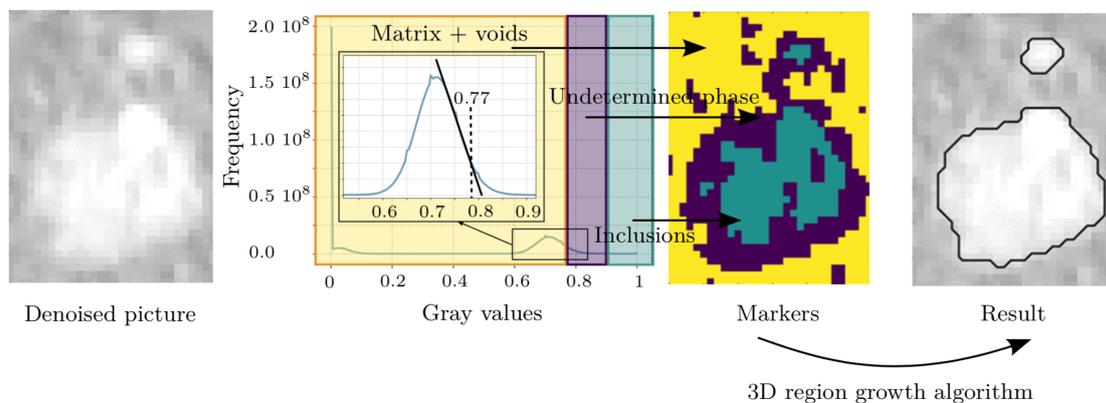


FIGURE 3 – Illustration de l'algorithme de segmentation par croissance régionale dans le cas d'un oxyde de zinc.

il est difficile de statuer quand à la nature de l'objet présent. L'algorithme va chercher, selon une approche par croissance régionale, à lever le voile sur cette zone de flou. Cette approche est très largement moins dépendante de la valeur des seuils et permet de trouver de manière très fine les contours des inclusions. Cette approche est appliquée plusieurs fois pour différentes valeurs de seuils propres à chaque nature d'inclusion afin de détecter l'ensemble des inclusions, quelque soit leur densité.

3.2 Classification des inclusions

L'étape précédente nous permet de disposer d'un catalogue d'inclusions voxelisées. Il est nécessaire de procéder à une classification afin de pouvoir les associer à des constituants de la formulation. Cette étape est réalisée en se basant sur différents critères : la densité (via le code couleur), la taille et la morphologie. Nous pouvons ainsi classer les inclusions en différentes familles. Afin de ne pas surcharger inutilement

cette communication, seuls les oxydes métalliques (type oxyde de zinc) et les géodes seront analysés plus en détails.

3.3 Définition d'indicateurs

L'étape précédente permet une détection des inclusions sous la forme d'un « amas » de voxels. Afin de pouvoir aller plus loin, la définition d'indicateurs est nécessaire. La première étape consiste en la définition de la géométrie sur laquelle s'appuyer pour le calcul des indicateurs. La représentation voxelisée est convertie en maillage triangulaire par l'algorithme du « marching cube » afin de disposer d'une géométrie plus « réaliste » (cf. Figure 4).

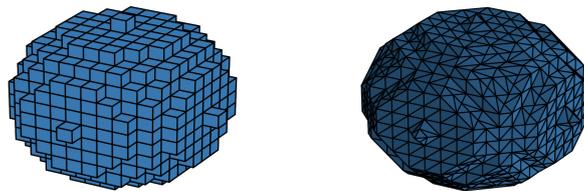


FIGURE 4 – Inclusion voxelisée (à gauche) puis facétisée à l'aide de l'algorithme du marching cube (à droite).

A partir de cette géométrie, on définit plusieurs indicateurs :

- l'indice de sphéricité I_S

$$I_S = \frac{\pi^{1/3}(6V)^{2/3}}{A} \quad (1)$$

où V est le volume de l'inclusion et A l'aire de sa surface extérieure. La plage de variation est comprise entre 0 et 1, et plus la valeur est proche de 1, plus l'inclusion est proche d'une sphère ;

- la diamètre équivalent d'une sphère de même volume ;
- l'orientation préférentielle de l'inclusion. Cette orientation est évaluée après avoir préalablement identifié la meilleure ellipse selon l'algorithme de Moshtagh.

La figure 5 donne l'évolution des diamètres équivalents et de l'indice de sphéricité pour les oxydes métalliques et les géodes. Comme nous pouvons le constater, les inclusions sont petites (diamètre moyen autour de $15 \mu\text{m}$) et essentiellement sphériques. La figure 6 confirme ce résultat. Notons toutefois que

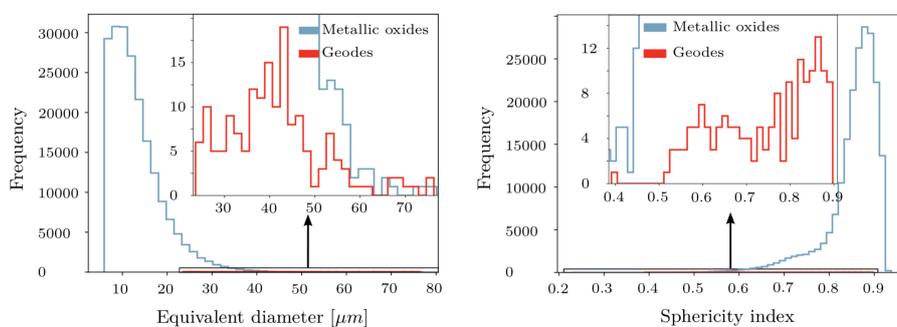


FIGURE 5 – Diamètre équivalent et indice de sphéricité.

certaines ellipses ont des rapports de forme élevées, et sont essentiellement dues à des biais de détection liée à une mauvaise segmentation d'inclusions proches qui tendent à être identifiées comme une seule entité.

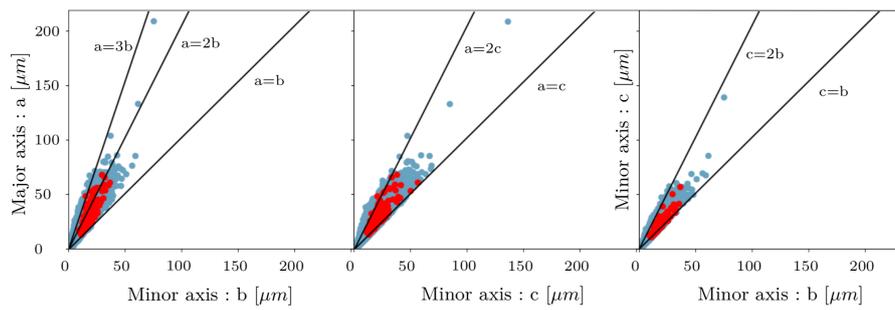


FIGURE 6 – Evolution des axes des ellipsoïdes.

Une première manière de classer les inclusions en termes de sévérité consiste à analyser l'angle entre l'axe principal de l'ellipse, et une direction préférentielle (lié au chargement par exemple). La figure 7 présente par exemple l'évolution de cet angle pour une direction préférentielle considérée comme étant l'axe de révolution *i.e.* la direction \vec{z} ici. Nous constatons un angle moyen d'environ 65° . Ce résultat pourrait laisser penser que les inclusions sont mal orientées vis à vis du chargement. Ce résultat est cependant à nuancer car les inclusions étant essentiellement sphériques, la notion d'angle perd de son sens.

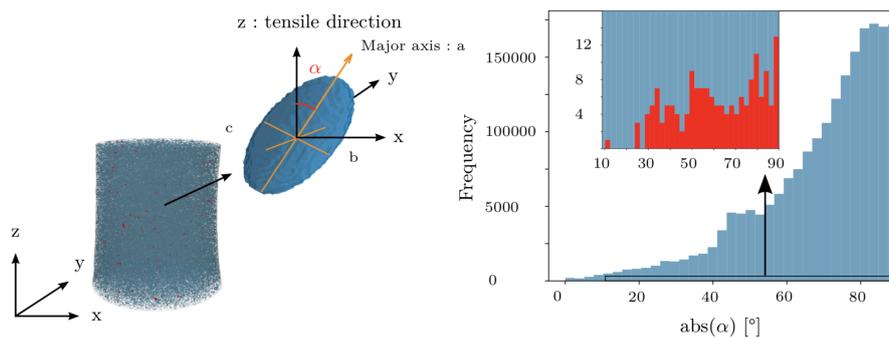


FIGURE 7 – Orientation des ellipsoïdes identifiées pour chaque inclusion.

Pour pouvoir statuer quant à des éventuelles interactions entre les inclusions (qui ne sont pas prises en compte à travers les critères précédents), il est nécessaire de définir des indicateurs relatifs à la distribution spatiale des inclusions. Le premier indicateur est la distance au plus proche voisin, mais il ne permet en aucun de caractériser la population dans sa globalité et ne sera donc pas étudié ici. Nous utilisons par contre la fonction de Ripley K :

$$K(r) = \frac{1}{\lambda} \sum_i \sum_{j \neq i} 1 \{ \|x_i - x_j\| \leq r \} c(x_i, x_j, r) \quad (2)$$

où λ représente l'intensité du processus, le terme $1 \{ \|x_i - x_j\| \leq r \}$ une grandeur valant 1 si les points i et j sont à une distance au plus égale à r , sinon elle vaut 0. L'expression $c(x_i, x_j, r)$ est un facteur correctif qui permet la prise en compte des effets de bords sur la région analysée. Elle renseigne, pour chaque inclusion, le nombre moyen de voisins compris dans un cercle de rayon r centré autour de la particule. La figure 8 présente la fonction de Ripley calculée pour deux familles d'inclusions et compare les fonctions à celle obtenue dans le cadre d'un processus ponctuel de poisson (PPP). D'une manière générale, on constate que ces deux familles suivent un PPP. Les inclusions sont donc réparties de manière complètement aléatoire dans le volume, et on ne constate pas la présence de clusters ou de regroupements

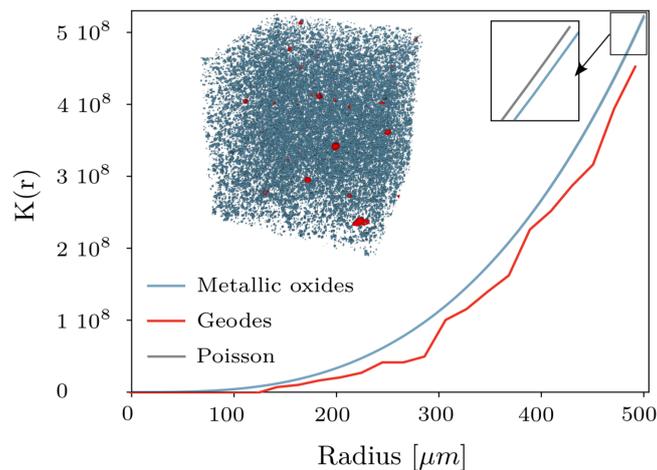


FIGURE 8 – Fonction de Ripley et comparaison à la distribution spatiale associée à un processus ponctuel de poisson.

préférentiels d'inclusions. Ce résultat est précieux pour les services matières car il est la conséquence d'un matériau bien mélangé.

4 Conclusion

Nous avons présenté dans cette communication un ensemble d'outils d'analyse de mesures par tomographie aux rayons X visant à décrire les populations d'inclusions dans un matériau élastomère à formulation industrielle. Ces outils ont permis une détection fine des inclusions, ont permis leur classification selon leur nature et la définition d'indicateurs. L'étape suivante consiste à appliquer la même démarche à des éprouvettes endommagées ayant subies différentes conditions de chargement afin de pouvoir associer à chaque micro-fissure une particule, nous permettant alors de statuer quant à la sévérité des particules vis à vis de la tenue en fatigue du matériau.

Références

- [1] B. Huneau, I. Masquelier, Y. Marco, V. Le Saux, S. Noizet, C. Schiel, P. Charrier, Fatigue crack initiation in a carbon black-filled natural rubber, *Rubber Chemistry and Technology*, 89 (2016) 126–141.
- [2] A.N. Gent, C. Pulford, Micromechanisms of fracture in elastomers, *Journal of Materials Science*, 19 (1984) 3612–3619.
- [3] V. Le Saux, Y. Marco, S. Calloch, P. Charrier, Evaluation of the fatigue defect population in an elastomer using X-ray computed micro-tomography, *Polymer Engineering and Science*, 51 (2011) 1253–1263.
- [4] K. Le Gorju Jago, X-ray computed microtomography of rubber, *Rubber Chemistry and Technology*, 85 (2012) 387–407.
- [5] J.B Le Cam, B. Huneau, E. Verron, Fatigue damage in carbon black filled natural rubber under uni- and multiaxial loading conditions, *International Journal of Fatigue*, 52 (2013) 82–94.

- [6] I. Masquelier, Influence de la formulation sur les propriétés en fatigue d'élastomères industriels. Thèse, Université de Bretagne Occidentale, 2014.
- [7] L. Grady, Random walks for image segmentation, IEEE Transactions On Pattern Analysis and Machine Intelligence, 28 (2006) 1768–1783.
- [8] E. Guillart, J. Nunez-Iglesias, S. van der Walt, Analyzing microtomography data with Python and the scikit-image library Advanced Structural and Chemical Imaging (2016) 2–18.
- [9] W. Schroeder, K. Martin, B. Lorensen, The Visualization Toolkit (4th ed.), 2006, Kitware, ISBN 978-1-930934-19-1