



**HAL**  
open science

# Caractérisation mécanique des phénomènes dépendants du temps par nanoindentation instrumentée en température

Paul Baral

► **To cite this version:**

Paul Baral. Caractérisation mécanique des phénomènes dépendants du temps par nanoindentation instrumentée en température. Autre. Université de Lyon, 2018. Français. NNT : 2018LYSEC038 . tel-02162071

**HAL Id: tel-02162071**

**<https://theses.hal.science/tel-02162071>**

Submitted on 21 Jun 2019

**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.



ÉCOLE  
CENTRALE LYON

N° d'ordre NNT : 2018LYSEC038

## THÈSE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE LYON

opérée au sein de  
l'École Centrale de Lyon

École Doctorale ED162  
Mécanique, Énergétique, Génie Civil, Acoustique

Spécialité de doctorat : Mécanique

Soutenue publiquement le 29/11/2018, par :

**Paul BARAL**

---

# Caractérisation mécanique des phénomènes dépendants du temps par nanoindentation instrumentée en température

---

Devant le jury composé de :

Vincent KERYVIN, Professeur des Universités, UBS

Rapporteur

Thomas PARDOEN, Professeur des Universités, UCL

Rapporteur

Mathilde LAURENT-BROCQ, Chargée de Recherche CNRS, ICMPE

Examinatrice

Khemais SAANOUNI, Professeur des Universités, UTT

Président

Jean-Luc LOUBET, Directeur de Recherche CNRS, ECL

Directeur de thèse

Jean-Michel BERGHEAU, Professeur des Universités, ENISE

Co-directeur de thèse

Guillaume KERMOUCHE, Professeur, EMSE

Co-directeur de thèse



# Résumé

Ce mémoire présente une étude sur la caractérisation des propriétés mécaniques dépendantes du temps par nanoindentation instrumentée à différentes températures.

Ce sujet de recherche porte sur l'adaptation des méthodes d'indentation classiques aux problématiques de la caractérisation à hautes températures. Les méthodes développées dans ces travaux ont pour premier objectif d'apporter une meilleure compréhension des phénomènes dépendants du temps et de la température par une approche locale. Le second objectif est d'apporter des éléments de comparaison entre le comportement à l'échelle microscopique et macroscopique.

Les méthodes proposées sont principalement fondées sur l'essai de relaxation en indentation. Ses développements et applications aux matériaux polymères et métalliques sont étudiés de manière analytique puis expérimentale. L'étude analytique nous montre que ce type d'essais en indentation peut être directement comparé à un essai uniaxial. Elle montre également que la cinétique de chargement a une grande influence sur la qualité des résultats obtenus en relaxation.

L'étude expérimentale proposée, en température, permet d'extraire la sensibilité à la vitesse de déformation ainsi que l'énergie d'activation des phénomènes visqueux. Cependant, la dérive thermique limite la durée des essais – la durée maximum du segment de relaxation reste inférieure à quelques minutes. Une autre étude réalisée à température ambiante ouvre la voie à des durées de caractérisation plus longues. Celle-ci se fonde sur l'équivalence entre aire et raideur de contact pour un matériau homogène. Un maintien de l'aire de contact constante pendant 10 heures est effectué sans signes de dérive.

Finalement, l'application de la nanoindentation à hautes températures à la caractérisation in situ des changements microstructuraux pour un alliage d'aluminium est étudiée. Les résultats de l'étude montrent qu'il est possible d'obtenir la cinétique de recristallisation avec un seul échantillon et en un temps limité.

**Mots clés :** Nanoindentation, Haute température, Relaxation, Viscoélasticité, Viscoplasticité, Recristallisation



# Abstract

This manuscript presents a study on the mechanical properties' characterization of time dependent phenomena using instrumented nanoindentation at different temperatures.

This research subject treats the development of methods dealing with the adaptation of classical indentation methodologies to high temperature characterizations. Bringing a better understanding of time and temperature dependent phenomena at a local scale is the first aim of the methods developed. The second objective is to compare materials behaviors measured at micro and macro-scale.

The proposed methods are based on indentation relaxation tests. Their development and applications to polymers and metals characterization are studied analytically and experimentally. The analytical study shows that the indentation relaxation test is equivalent to the uniaxial one. This study also highlights the great influence of loading kinetics on the measured relaxation behavior.

The proposed experimental study in temperature permits the extraction of the strain rate sensitivity and the activation energy of the viscous phenomena. However, thermal drift limits the characterization duration – i.e. the maximum experimental time remains limited to a couple of minutes. Another experimental study configuration, at room temperature, opens the way to longer test durations. It is based on the equivalence of contact area and stiffness for a homogeneous material. With this configuration, we successfully hold the contact area constant for 10 hours without any evidences of drift.

Eventually, the high temperature nanoindentation application to in situ microstructural changes characterization of an aluminum alloy is studied. Measurements and limitations are carefully discussed for a better understanding of the studied phenomenon. The results show that the recrystallization kinetics can be successfully described with reduced test duration and samples' set.

**Key words :** Nanoindentation, High temperature, Relaxation, Viscoelasticity, Viscoplasticity, Recrystallization



# Remerciements

Ces travaux de recherche ont été réalisés au sein du Laboratoire de Tribologie et de Dynamique des Systèmes, dans le groupe COMpréhension des Phénomènes Élémentaires en Tribologie, situé à l'École Centrale de Lyon.

Je tiens à remercier en premier lieu mes directeurs de thèse pour m'avoir successivement convaincu, guidé puis soutenu tout au long de ces trois dernières années. Jean-Luc, merci pour ta vision de la science et ta façon de la partager. J'ai gardé en mémoire notre premier échange : "*La thèse c'est une aventure. La destination importe peu, c'est le voyage qui compte!*". Je le trouve très juste. Merci Guillaume pour ton implication, ton soutien et ton dynamisme. Et merci pour m'avoir permis de collaborer avec l'ICMPE. Merci Jean-Michel pour ta bienveillance. Travailler en autonomie est une chose mais le faire avec la confiance de ses pairs a bien plus de valeur.

Je tiens à remercier en second lieu tous les membres du jury qui ont participé à l'évaluation de mes travaux : Vincent Keryvin et Thomas Pardoën pour avoir rapporté ce manuscrit avec intérêt et soin ; Mathilde Laurent-Brocq pour avoir pris part au jury mais surtout pour m'avoir accueilli à l'ICMPE dans le cadre de notre collaboration ; Khemais Saanouni pour m'avoir fait l'honneur d'être président du jury.

Je tiens également à remercier Gaylord qui a grandement participé à la réalisation de ces travaux.

Un grand merci à Mehdi, toujours disponible pour boire un café et discuter de nos avancées scientifiques. Merci à Sophie, Juliette, Denis, Michel, Julien S., Julien F., Manuel et Michelle, pour leur aide précieuse. Merci à Sandrine, Hélène et Sylvie pour les réponses aux questions administratives ardues. Un sincère merci aux personnels de l'École des Mines de Saint Étienne qui m'ont permis de réaliser mes études microstructurales : Marilynne Mondon et Sergio Joao pour leur aide sur les cartographies EBSD ; Michel Blanc pour l'obtention de polissages exceptionnels !

Merci à la fine équipe du badminton : Davy pour les discussions scientifiques (mais surtout pour m'avoir laissé gagner mon dernier match avant la soutenance) ; Thomas, Nazario et Thierry pour votre dynamisme et votre bienveillance ! Merci également aux footballeurs, notamment Enora, Nathanaël, Arthur, (Nazario et Thomas encore!).

Un merci ému aux (très) anciens du H10 : Eloi, mon illustre prédécesseur ; Thomas, l'homme au chapeau ; Julien et nos discussions sans fin autour d'un café (ou d'une bière) ; Gilles, le maquettiste ; Simon, Adalberto et Alexia rencontrés à la Marquise avant même de se voir au labo... !

Nicolas et Sylvain, mes compagnons de cordée, deux vrais gentils, mais surtout amis : ce fut un plaisir de partager avec vous les difficultés et les exaltations de ces trois années de thèse. Merci

également à Jonas, Camille, Thibaut D., Karl, Yann, Cédric et Fadlallah pour les bons moments passés au labo et à l'extérieur! Merci aux doctorants du D4 : Julien, Florent, Pierre, Nora, Alixe et Estelle pour les repas de Noël mémorables!

"Last but not least"<sup>1</sup>, Thibaut C., mon co-bureau de cœur, certainement une des rencontres les plus importantes de ma thèse : Merci! Pour avoir découvert Gérard Palaprat, pour l'avoir chanté... à maintes reprises, pour m'attendre dans les montées, pour parcourir le Ladakh, pour utiliser Parula, pour discuter de tout, de rien, tout le temps : Merci! Une liste exhaustive serait vaine, je m'arrête ici. A bientôt, l'ami.

Un remerciement spécial au Crew et à tous mes amis du PACA et d'ailleurs qui m'ont accompagné durant ces trois dernières années et sans aucun doute m'accompagneront au cours des prochaines!

Enfin, merci à mes parents et à mes Céline(s) pour leur soutien.

---

1. En référence au "*deuz*" de tes remerciements;)

# Table des matières

Résumé . . . . .	i
Abstract . . . . .	iii
Remerciements . . . . .	v
Table des matières . . . . .	vii
<b>Introduction générale</b>	<b>1</b>
<b>1 État de l'art</b>	<b>3</b>
1 Comportement mécanique des matériaux . . . . .	3
1.1 Domaine élastique . . . . .	3
1.1.1 Contrainte et déformation . . . . .	3
1.1.2 Hypothèses de l'élasticité linéaire . . . . .	4
1.1.3 Lois élastiques linéaires simples . . . . .	4
1.2 Viscoélasticité : application aux polymères . . . . .	6
1.2.1 Éléments rhéologiques simples . . . . .	6
1.2.2 Modèles rhéologiques . . . . .	6
1.2.3 Propriétés mécaniques . . . . .	7
1.2.4 Interconversions des fonctions viscoélastiques . . . . .	10
1.2.5 Température de transition vitreuse . . . . .	10
1.2.6 Équivalence temps-température . . . . .	11
1.3 Plasticité et viscoplasticité : application aux métaux . . . . .	12
1.3.1 Modèles rhéologiques . . . . .	12
1.3.2 Origine physique de la plasticité des métaux . . . . .	13
1.3.3 Origine physique de la viscoplasticité des métaux . . . . .	13
2 L'essai de nanoindentation . . . . .	16
2.1 Un peu d'histoire . . . . .	16
2.2 Mesure des propriétés mécaniques . . . . .	17
2.2.1 Principe de similarité géométrique . . . . .	17
2.2.2 Expression de la dureté et du module d'élasticité . . . . .	18
2.2.3 Raideur de contact . . . . .	19
2.2.4 Aire de contact . . . . .	23
2.3 Mesure des propriétés dépendantes du temps par nanoindentation instrumentée	26
2.3.1 Notion de vitesse de déformation représentative . . . . .	26

2.3.2	Sensibilité à la vitesse de déformation . . . . .	27
2.3.3	Analyse dynamique (DMA) . . . . .	29
2.3.4	Fluage . . . . .	29
2.3.5	Relaxation . . . . .	31
2.4	Nanoindentation à très hautes températures . . . . .	33
2.4.1	La course à la haute température . . . . .	33
2.4.2	Systèmes de chauffage et dérive thermique . . . . .	33
2.4.3	L'échantillon . . . . .	35
2.4.4	Les matériaux de la pointe . . . . .	36
3	Orientations de recherche . . . . .	38
<b>2</b>	<b>L'essai de relaxation en indentation</b>	<b>39</b>
1	Modèle analytique viscoélastique linéaire – VEL – . . . . .	39
1.1	Cas d'un chargement à vitesse de déplacement constante . . . . .	39
1.1.1	Calcul analytique . . . . .	39
1.1.2	Mise en évidence d'un faux effet d'échelle . . . . .	40
1.2	Cas d'un chargement à vitesse de déformation constante . . . . .	41
1.2.1	Calcul analytique . . . . .	41
1.2.2	Fonction d'atténuation . . . . .	43
2	Méthodes expérimentales . . . . .	44
2.1	Dispositif expérimental . . . . .	44
2.1.1	SA2 <sup>®</sup> . . . . .	44
2.2	Matériaux . . . . .	44
2.2.1	Polyméthacrylate de méthyle – PMMA – . . . . .	44
2.2.2	Élastomère . . . . .	44
2.3	Procédures expérimentales . . . . .	45
2.3.1	Types de chargement . . . . .	45
2.3.2	Asservissement du maintien à déplacement constant . . . . .	48
2.3.3	Détermination du segment de relaxation . . . . .	50
2.3.4	Dérive thermique . . . . .	51
2.3.5	Calcul des propriétés mécaniques . . . . .	52
3	Résultats . . . . .	53
3.1	PMMA . . . . .	53
3.1.1	Comparaison des cinétiques de chargement . . . . .	53
3.1.2	Résultats de la littérature à température ambiante . . . . .	55
3.2	Élastomère . . . . .	56
3.2.1	Module et spectre de relaxation . . . . .	56
3.2.2	Comparaison avec des essais macroscopiques . . . . .	57
4	Discussion . . . . .	57
4.1	Comportement viscoélastique-viscoplastique du PMMA ? . . . . .	57
4.1.1	Caractérisation de la fonction d'atténuation expérimentale . . . . .	57
4.1.2	Une atténuation moindre . . . . .	59

4.1.3	Correction des spectres de relaxation . . . . .	60
4.2	Comportement viscoélastique de l'élastomère? . . . . .	61
4.2.1	Caractérisation de la fonction d'atténuation expérimentale . . . . .	61
5	Bilan des études . . . . .	63
5.1	Importance de la cinétique de chargement . . . . .	63
5.2	Effet de la vitesse de déformation . . . . .	63
5.3	Dérive thermique . . . . .	64
5.4	Vers une caractérisation des énergies d'activation . . . . .	64
5.5	Vers une mesure de la relaxation aux temps longs . . . . .	64
<b>3</b>	<b>Nanoindentation à hautes températures</b>	<b>65</b>
1	Méthode expérimentale . . . . .	65
1.1	Dispositifs expérimentaux . . . . .	65
1.1.1	XPCLim <sup>®</sup> . . . . .	65
1.1.2	Ti950 <sup>®</sup> . . . . .	65
1.1.3	Mesure de la raideur de contact . . . . .	66
1.1.4	Mesures dynamiques – DMA – . . . . .	66
1.2	Matériaux . . . . .	66
1.2.1	PMMA . . . . .	66
1.2.2	Alliage d'aluminium – AA1050 – . . . . .	66
1.3	Procédure expérimentale . . . . .	67
1.3.1	Types de chargements . . . . .	67
1.3.2	Asservissement du maintien à déplacement constant . . . . .	67
1.3.3	Dérive thermique . . . . .	68
1.3.4	Vérification des mesures sur Ti950 <sup>®</sup> . . . . .	70
2	Résultats . . . . .	71
2.1	Application au PMMA . . . . .	71
2.1.1	Modules et spectres de relaxation en température . . . . .	73
2.2	Application à l'alliage d'aluminium – AA1050 – . . . . .	73
2.2.1	Contrainte d'écoulement plastique . . . . .	73
2.2.2	Évolution de la contrainte d'écoulement dans le temps et en température . . . . .	73
2.2.3	Estimation de la vitesse de déformation plastique . . . . .	73
3	Discussion . . . . .	77
3.1	Caractérisation de la relaxation $\beta$ du PMMA . . . . .	77
3.1.1	Équivalence temps-température . . . . .	77
3.1.2	Énergie d'activation . . . . .	78
3.1.3	Comparaison avec les essais DMA . . . . .	78
3.2	Comportement viscoplastique de l'aluminium . . . . .	79
3.2.1	Indice de viscoplasticité . . . . .	79
3.2.2	Énergie d'activation . . . . .	80
3.2.3	Estimations du comportement viscoplastique en température . . . . .	81

4	Bilan et ouvertures . . . . .	84
4.1	Estimation de la vitesse de déformation plastique . . . . .	84
4.2	Obtention des propriétés mécaniques . . . . .	84
4.3	Vers une mesure des changements microstructuraux . . . . .	85
<b>4</b>	<b>Relaxation à raideur de contact constante</b>	<b>87</b>
1	Principe de la méthode . . . . .	87
1.1	Hypothèses et modèle utilisé . . . . .	87
1.1.1	Hypothèses . . . . .	87
1.1.2	Géométries du contact . . . . .	88
2	Méthode expérimentale . . . . .	88
2.1	Dispositif expérimental . . . . .	88
2.2	Matériaux . . . . .	89
2.3	Procédure expérimentale . . . . .	89
2.3.1	Types de chargement . . . . .	89
2.3.2	Asservissement et segment de relaxation . . . . .	89
2.3.3	Dérive thermique . . . . .	91
2.3.4	Calcul des propriétés mécaniques . . . . .	94
2.3.5	Vérification de la méthode sur silice fondue . . . . .	95
3	Résultats . . . . .	97
3.1	PMMA, PS, PC . . . . .	97
3.1.1	Modules et spectres de relaxation . . . . .	97
3.1.2	Comparaison avec la littérature . . . . .	98
3.1.3	Comparaison avec les essais en température pour le PMMA . . . . .	99
3.2	Élastomère . . . . .	100
3.2.1	Module et spectre de relaxation . . . . .	100
3.2.2	Hétérogénéité et volume caractéristique . . . . .	101
4	Bilan et ouvertures . . . . .	105
4.1	Mesure de la relaxation aux temps longs . . . . .	105
4.2	Problématique de la caractérisation aux temps courts . . . . .	106
4.3	Couplage avec les essais en température . . . . .	106
4.4	Estimation de l'hétérogénéité du matériau par la raideur de contact . . . . .	106
4.5	Vers une approche statistique de l'hétérogénéité du matériau . . . . .	106
<b>5</b>	<b>Evolutions microstructurales caractérisées par nanoindentation</b>	<b>107</b>
1	Motivations de l'étude . . . . .	107
2	Méthode expérimentale . . . . .	108
2.1	Préparation des échantillons . . . . .	108
2.1.1	Échantillons . . . . .	108
2.1.2	Polissage . . . . .	108
2.1.3	Caractérisation métallographique . . . . .	108
2.2	Cinétique de chauffage et procédure d'indentation . . . . .	108

2.2.1	Description des échantillons et des cinétiques . . . . .	110
2.2.2	Dérive thermique . . . . .	110
2.3	Caractérisation de la cinétique de recristallisation . . . . .	111
2.3.1	Équivalence dureté - fraction recristallisée . . . . .	111
2.3.2	Essais <i>in situ</i> sur Ti950 <sup>®</sup> . . . . .	111
2.3.3	Essais <i>post mortem</i> sur duromètre Vickers . . . . .	112
3	Résultats sur Al1050 . . . . .	112
3.1	Évolutions microstructurales . . . . .	112
3.2	Courbes d'indentation . . . . .	112
3.3	Propriétés mécaniques . . . . .	114
3.3.1	Dureté et module d'élasticité . . . . .	114
3.3.2	Apparition de pop-in . . . . .	115
3.3.3	Indice de viscoplasticité . . . . .	116
4	Discussion . . . . .	118
4.1	Les indicateurs de la recristallisation . . . . .	118
4.1.1	Approche par les densités de dislocations . . . . .	118
4.1.2	Apparition des pop-in . . . . .	119
4.2	Cinétique de recristallisation . . . . .	119
4.2.1	Mesure de dureté . . . . .	119
4.2.2	Modèle de Johnson Mehl Avrami Kolmogorov – JMAK – . . . . .	120
4.3	Limites et considérations . . . . .	121
4.3.1	Considérations statistiques . . . . .	121
4.3.2	Influence de la zone de déformation plastique . . . . .	121
4.3.3	Effet de l'évolution de l'indice de viscoplasticité . . . . .	122
4.3.4	Temps de stabilisation et dérive thermique . . . . .	123
4.3.5	Ouverture à la cartographie rapide des propriétés mécaniques . . . . .	123
5	Conclusion . . . . .	123
5.1	Avantages de la méthode . . . . .	123
5.2	Améliorations à venir . . . . .	124
<b>Conclusion générale et perspectives</b>		<b>125</b>
<b>A Asservissement des essais de relaxation</b>		<b>129</b>
1	Principe général de l'asservissement PID . . . . .	129
2	Essais à déplacement constant . . . . .	131
2.1	Essais à température ambiante – Chapitre 2 – . . . . .	131
2.2	Essais à hautes températures – Chapitre 3 – . . . . .	132
3	Essais à raideur de contact constante – Chapitre 4 – . . . . .	132
<b>B Traitements numériques des données en relaxation</b>		<b>135</b>
1	Essais à déplacement constant . . . . .	135
1.1	Traitement numérique du segment de relaxation . . . . .	135

1.1.1	PMMA – Chapitre 2 – . . . . .	135
1.1.2	Élastomère – Chapitre 2 – . . . . .	135
1.1.3	PMMA à hautes températures – Chapitre 3 – . . . . .	135
1.2	Obtention de la vitesse de déformation plastique . . . . .	136
2	Essais à raideur de contact constante – Chapitre 4 – . . . . .	136
2.1	Traitement numérique du segment de relaxation . . . . .	136
2.1.1	Polymères amorphes vitreux . . . . .	136
2.1.2	Élastomère . . . . .	136
2.2	Obtention de la vitesse de déformation plastique . . . . .	136
<b>C</b>	<b>Traitements numérique des images MET et détection des sauts de raideur</b>	<b>139</b>
1	Numérisation de l'image MET . . . . .	139
2	Définition de la matrice "pointe" . . . . .	139
3	Caractérisation des "sauts" sur les courbes de chargements . . . . .	140
<b>D</b>	<b>Notations</b>	<b>143</b>
	<b>Bibliographie</b>	<b>147</b>
	<b>Table des figures</b>	<b>159</b>
	<b>Liste des tableaux</b>	<b>165</b>

# Introduction générale

Le comportement mécanique de matériaux à l'échelle micrométrique et sub-micrométrique est étudié par nanoindentation instrumentée depuis une trentaine d'année. L'obtention des propriétés mécaniques classiques que sont la dureté et le module d'élasticité est maintenant parfaitement maîtrisée à température ambiante. Ce sujet de recherche porte sur l'adaptation des méthodes d'indentation classiques aux problématiques de la caractérisation à hautes températures. En effet, que ce soit pour des matériaux métalliques ou polymères, l'augmentation de la température entraîne des phénomènes visqueux et des changements physiques d'état de la matière. Les propriétés mécaniques mesurées dans ces conditions sont donc plus sensibles à l'échelle de temps de mesure. Les méthodes développées dans ces travaux ont pour premier objectif d'apporter une meilleure compréhension des phénomènes dépendants du temps et de la température, par une approche locale. Le second objectif est d'apporter des éléments de comparaison entre le comportement à l'échelle microscopique et celui macroscopique.

Pour répondre à ces objectifs, l'étude est scindée en cinq chapitres. Dans le premier chapitre, un rappel concernant les principales théories visant à définir le comportement mécanique macroscopique des matériaux est proposé. Une attention particulière est portée à l'étude des modèles visqueux – viscoélasticité et viscoplasticité – et des liens entre physique de la matière et loi de comportement. Un état de l'art étendu sur la caractérisation des propriétés mécaniques dépendantes du temps en nanoindentation est proposé. L'application de ces méthodes à hautes températures est également discutée, à la lumière des derniers travaux publiés à ce sujet.

Nous définirons ainsi une direction de recherche pour répondre aux objectifs et verrons présentés dans ce chapitre. Nous verrons notamment que l'essai de relaxation en indentation se révèle être une bonne alternative à l'essai de fluage utilisé classiquement en indentation.

Dans le deuxième chapitre, la méthode de relaxation des contraintes appliquée à l'indentation est définie. L'influence des différents paramètres liés à l'essai d'indentation sur la mesure de relaxation sont étudiés de manière théorique, via un modèle analytique en viscoélasticité linéaire, et de manière expérimentale, au travers d'essais réalisés sur du PMMA. Cette première étude est complétée de résultats obtenus sur un élastomère chargé.

Nous réaliserons une comparaison systématique des essais de nanoindentation et des essais macroscopiques de manière à évaluer un potentiel effet d'échelle ou au contraire des similarités dans le comportement mécanique. Nous verrons également en quoi la sensibilité à la vitesse de déformation du matériau peut modifier son comportement en relaxation et proposerons une fonction de

correction des résultats expérimentaux.

Nous élargissons le spectre d'utilisation de la méthode, détaillée dans le chapitre 2, au sein du troisième chapitre. En effet celui-ci traite du comportement en température d'un polymère et d'un métal, en relaxation. La caractérisation des vitesses de déformation représentatives en relaxation ainsi que de l'énergie d'activation des phénomènes physiques étudiés est discutée. Les résultats sont systématiquement comparés à la littérature disponible, à l'échelle nano et macroscopique.

Nous verrons qu'il est possible d'interpréter les résultats de relaxation de la même manière qu'un essai de fluage classique.

Le quatrième chapitre traite tout particulièrement d'un des verrous les plus contraignant en indentation : la stabilité de la mesure du déplacement dans le temps. Cette problématique est d'autant plus prégnante dans le cas de la mesure du fluage ou de la relaxation où un maintien d'effort, respectivement, d'aire de contact doit être effectué pendant une durée relativement importante.

Nous proposons une nouvelle méthode, basée sur le maintien de la raideur de contact, pour répondre à cet enjeu. Les apports et limites de cette méthode dans la caractérisation aux temps longs des propriétés mécaniques locales sont discutés au travers d'essais sur de la silice fondue et sur différents polymères. Cependant, s'ajoute à la dérive de mesure en déplacement, l'inconnue sur la géométrie réelle de contact et sur l'homogénéité du matériau indenté. Dans ce cadre, nous présenterons un comportement intéressant observé sur un élastomère chargé.

Dans le dernier chapitre, nous nous intéressons aux changements d'états physiques d'un matériau à haute température. Une nouvelle méthode de caractérisation *in situ* de l'évolution microstructurale d'un alliage d'aluminium en température est proposée. Cette méthode est basée sur la mesure de dureté et du module d'élasticité à haute température. Nous caractérisons, par cette dernière, la cinétique de recristallisation d'un alliage d'aluminium en fonction de son temps de recuit.

Nous montrerons que les cinétiques de recristallisation extraites des mesures de nanodureté à chaud sont cohérentes avec les résultats obtenus par une étude classique de dureté *post mortem* ainsi qu'avec les résultats de la littérature.

# Chapitre 1

## État de l'art

### 1 Comportement mécanique des matériaux

#### 1.1 Domaine élastique

La définition de la mécanique des matériaux, ou mécanique du solide, ne peut se faire que par l'établissement de paramètres permettant l'interprétation des sollicitations thermomécaniques appliquées au solide.

##### 1.1.1 Contrainte et déformation

Ces paramètres élémentaires sont la contrainte,  $\sigma$ , et la déformation,  $\epsilon$ . Dans le cadre de la mécanique des milieux continus dans lequel nous nous plaçons, les contraintes et déformations sont liés à un volume élémentaire représentatif – VER – décrit figure 1.1. A l'équilibre, chaque VER au sein du solide est soumis à une force  $\delta F$  s'appliquant sur un élément de surface  $\delta A$  – la contrainte est définie par  $\delta F/\delta A$ . En général, la direction de la contrainte n'est pas normale à l'élément de surface. Nous notons alors la contrainte selon deux composantes : normale,  $\sigma$  et tangentielle,  $\tau$ . Les indices utilisés décrivent la direction d'application de la contrainte – les composantes normales sont notées  $(x, y, z)$  et les composantes tangentielles sont notées telles que le premier indice donne la direction de la normale à la face concernée et le second donne celle de la contrainte [1] – voir figure 1.1. Son unité est en *Pascal*. La déformation résultante est elle aussi exprimée selon deux composantes qui sont, respectivement,  $\epsilon$  et  $\gamma$ , avec  $\epsilon = \Delta l/l_0$  et  $\gamma$  l'angle du volume élémentaire par rapport à la verticale. Cette dernière est sans unité.

La notation tensorielle de la loi de Hooke, qui décrit la relation entre  $\sigma$  et  $\epsilon$ , s'écrit :

$$\bar{\bar{\sigma}} = \bar{\bar{C}} : \bar{\bar{\epsilon}} \quad (1.1a)$$

$$\bar{\bar{\epsilon}} = \bar{\bar{S}} : \bar{\bar{\sigma}} \quad (1.1b)$$

Avec  $\bar{\bar{C}}$  et  $\bar{\bar{S}}$  les tenseurs d'élasticité et de complaisance du quatrième ordre, respectivement [2].

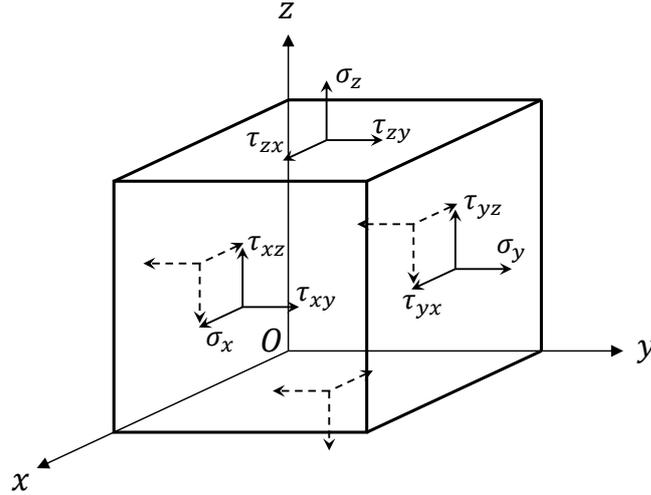


FIGURE 1.1 – Composantes des contraintes appliquées à un volume élémentaire représentatif – VER – d'après Timoshenko et Goodier [1].

### 1.1.2 Hypothèses de l'élasticité linéaire

Dans le cas général, les tenseurs  $\overset{\equiv}{\underline{\underline{C}}}$  et  $\overset{\equiv}{\underline{\underline{S}}}$  comportent *a priori* 81 composantes indépendantes. Cependant, la symétrie des tenseurs de contraintes et de déformations simplifie la notation, tel que :

$$C_{ijkl} = C_{jikl} = C_{ijlk} \quad (1.2)$$

De plus, en respectant les conditions d'intégrabilité de Cauchy pour la forme différentielle de l'énergie de déformation, nous obtenons :

$$\frac{\partial \sigma_{ij}}{\partial \epsilon_{kl}} = \frac{\partial \sigma_{kl}}{\partial \epsilon_{ij}} \iff C_{ijkl} = C_{klij} \quad (1.3)$$

Les équations 1.2 et 1.3 montrent que les tenseurs  $\overset{\equiv}{\underline{\underline{C}}}$  et  $\overset{\equiv}{\underline{\underline{S}}}$  ne comportent que 21 constantes indépendantes [2, 3]. Enfin, une hypothèse dite de "stabilité" définit le tenseur d'élasticité positif. Cette dernière exprime le fait que l'énergie interne du matériau atteint son minimum dans l'état de référence. Autrement dit, il faut fournir un travail positif pour déformer le matériau à partir de son état naturel [3].

$$C_{ijkl} \epsilon_{ij} \epsilon_{kl} = \varphi \epsilon_{ij} \epsilon_{kl}, \varphi > 0 \quad (1.4)$$

### 1.1.3 Lois élastiques linéaires simples

Dans le cas d'un matériau isotrope, les tenseurs d'élasticité et de complaisance définis par les expressions 1.1a et 1.1b s'écrivent à partir de deux paramètres indépendants :

$$\sigma_{ij} = \lambda \epsilon_{kk} \delta_{ij} + 2\mu \epsilon_{ij} \quad (1.5a)$$

$$\epsilon_{ij} = \frac{1}{2\mu} \sigma_{ij} - \frac{\lambda}{2\mu(3\lambda + 2\mu)} \sigma_{kk} \delta_{ij} \quad (1.5b)$$

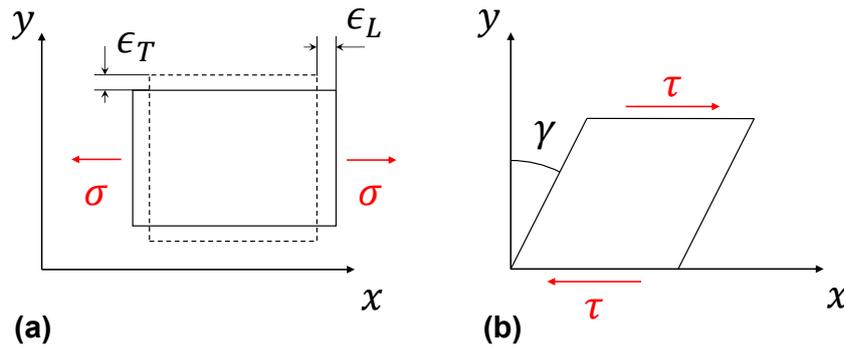


FIGURE 1.2 – Solide élémentaire sollicité; (a) en traction simple par la contrainte  $\sigma$ , les déformations qui en résultent sont un allongement  $\epsilon_L$  et une striction  $\epsilon_T$ ; (b) en cisaillement par la contrainte  $\tau$ . La déformation résultante est liée à l'angle  $\tan(\gamma) \approx \gamma$ , dans le cadre des petites déformations.

Avec  $\lambda$  et  $\mu$  les coefficients de Lamé, qui s'écrivent eux mêmes en fonction du module d'élasticité  $E$  et du coefficient de Poisson,  $\nu$ , tel que :

$$\lambda = \frac{E\nu}{(1+\nu)(1-2\nu)} \quad (1.6a)$$

$$\mu = \frac{E}{2(1+\nu)} \quad (1.6b)$$

Nous pouvons noter que  $\mu$  est également appelé module de cisaillement, aussi noté  $G$  par la suite. Pour des considérations thermodynamiques le coefficient de Poisson sera toujours inférieur ou égal à 0,5 – dans le cas d'un matériau incompressible  $\nu = 0,5$ . Nous définissons par la suite deux états de contraintes et de déformations simples afin de mettre en valeur les paramètres définis précédemment.

**Traction uniaxiale** Pour le cas simple de la traction uniaxiale représenté figure 1.2.a, une contrainte est appliquée suivant l'axe  $x$  et entraîne une déformation suivant les axes  $x$ ,  $y$  et  $z$ . Nous pouvons écrire les matrices de contraintes et de déformations :

$$\bar{\sigma} = \begin{bmatrix} \sigma_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad \bar{\epsilon} = \begin{bmatrix} \epsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{yy} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{bmatrix}$$

Avec  $\epsilon_{xx} = \epsilon_L = \sigma/E$  et  $\epsilon_{yy} = \epsilon_{zz} = -\nu\epsilon_{xx}$ .

**Cisaillement simple** Pour le cas simple du cisaillement représenté figure 1.2.b, une contrainte est appliquée suivant l'axe  $x$  et entraîne une déformation suivant les axes  $x$  et  $y$ . Nous pouvons alors écrire les matrices de contraintes et de déformations :

$$\bar{\sigma} = \begin{bmatrix} 0 & \tau_{xy} & 0 \\ \tau_{yx} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \quad \bar{\epsilon} = \begin{bmatrix} 0 & \gamma_{xy}/2 & 0 \\ \gamma_{yx}/2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}$$

Avec  $\gamma_{xy} = \gamma_{yx} = \tau_{xy}/(2\mu)$ . La déformation est définie à partir de l'hypothèse des petites déformations qui permet d'écrire  $\tan(\gamma) \approx \gamma$ .

## 1.2 Viscoélasticité : application aux polymères

### 1.2.1 Éléments rhéologiques simples

Le comportement mécanique des matériaux est dirigé par la physique de la matière. Pour étudier ce comportement sans postuler sur les phénomènes physiques à son origine, une représentation schématique est couramment utilisée. Celle-ci se base sur l'agencement de différents éléments rhéologiques simples, que sont le ressort et l'amortisseur, en viscoélasticité. Ces éléments sont représentés sur la figure 1.3.

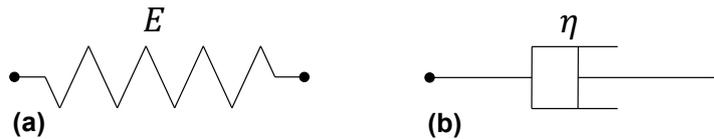


FIGURE 1.3 – Éléments rhéologique simples : (a) le ressort, défini par sa raideur,  $E$ ; (b) l'amortisseur, défini par sa constante de viscosité,  $\eta$ .

- Le ressort représente le caractère élastique pur du solide, il stocke l'énergie. La loi de comportement associée est simplement celle de Hooke, tel que  $\sigma = E\epsilon$ ;
- et l'amortisseur, quant à lui, représente la composante visqueuse au travers de son paramètre  $\eta$  – constante de viscosité. Celui-ci dissipe de l'énergie. La loi la plus simple associée à cet élément s'écrit  $\sigma = \eta\dot{\epsilon}$ , mais nous verrons qu'il en existe d'autres plus complexes.

### 1.2.2 Modèles rhéologiques

A partir des éléments simples décrits dans la section précédente, nous pouvons modéliser des comportements plus complexes par l'agencement de ces briques élémentaires. Nous détaillons, ci-dessous, certains des modèles les plus utilisés en viscoélasticité linéaire.

**Modèle de Maxwell** Le modèle de Maxwell correspond à l'assemblage d'un ressort et d'un amortisseur en série – voir table 1.1. Ce montage correspond à un fluide pour une vitesse de sollicitation tendant vers 0 et à un solide élastique lorsque cette dernière tend vers l'infini. L'équation différentielle qui régit ce modèle s'écrit :

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_1 + \dot{\epsilon}_2 = \frac{\dot{\sigma}}{E} + \frac{\sigma}{\eta} \quad (1.7)$$

**Modèle de Kelvin-Voigt** Le modèle de Kelvin-Voigt correspond à l'assemblage d'un ressort et d'un amortisseur en parallèle – voir table 1.1. La contrainte peut être calculée par l'intermédiaire de l'équation différentielle suivante :

$$\sigma = E\epsilon + \eta\dot{\epsilon} \tag{1.8}$$

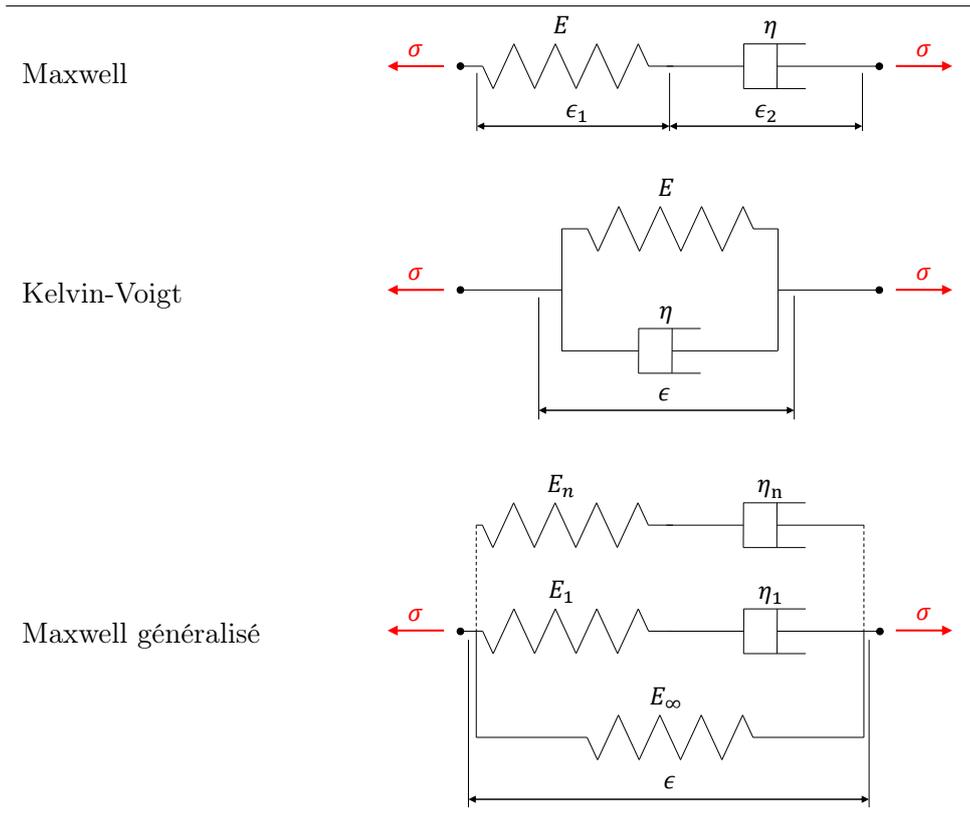
**Modèle de Maxwell généralisé** Le modèle de Maxwell généralisé est une association de  $n$  modèles de Maxwell en parallèle et d'un ressort de raideur  $E_\infty$  – appelé module relaxé – qui correspond à la raideur du système pour une vitesse de sollicitation tendant vers 0 – voir table 1.1.

L'expression temporelle du module de relaxation uniaxial s'écrit alors :

$$E(t) = E_\infty + \sum_{i=1}^n E_i \exp\left(-\frac{t}{\lambda_i}\right) \tag{1.9}$$

Avec  $\lambda_i = \eta_i/E_i$  les temps de relaxation du système.

TABLE 1.1 – Assemblages d'éléments rhéologiques simples. Modèle de Maxwell : ressort et amortisseur en série, avec  $\epsilon_i$ , la déformation associée à chacun des éléments et  $\sigma$ , la contrainte appliquée au montage ; modèle de Kelvin-Voigt : ressort et amortisseur en parallèle, avec  $\epsilon$  ; modèle de Maxwell généralisé : association en parallèle de  $n$  modèles de Maxwell et d'un ressort de raideur  $E_\infty$ .



### 1.2.3 Propriétés mécaniques

**Cartographie des comportements** Le comportement mécanique des polymères est connu pour varier en fonction des sollicitations thermiques et mécaniques de son environnement. Celui-ci peut

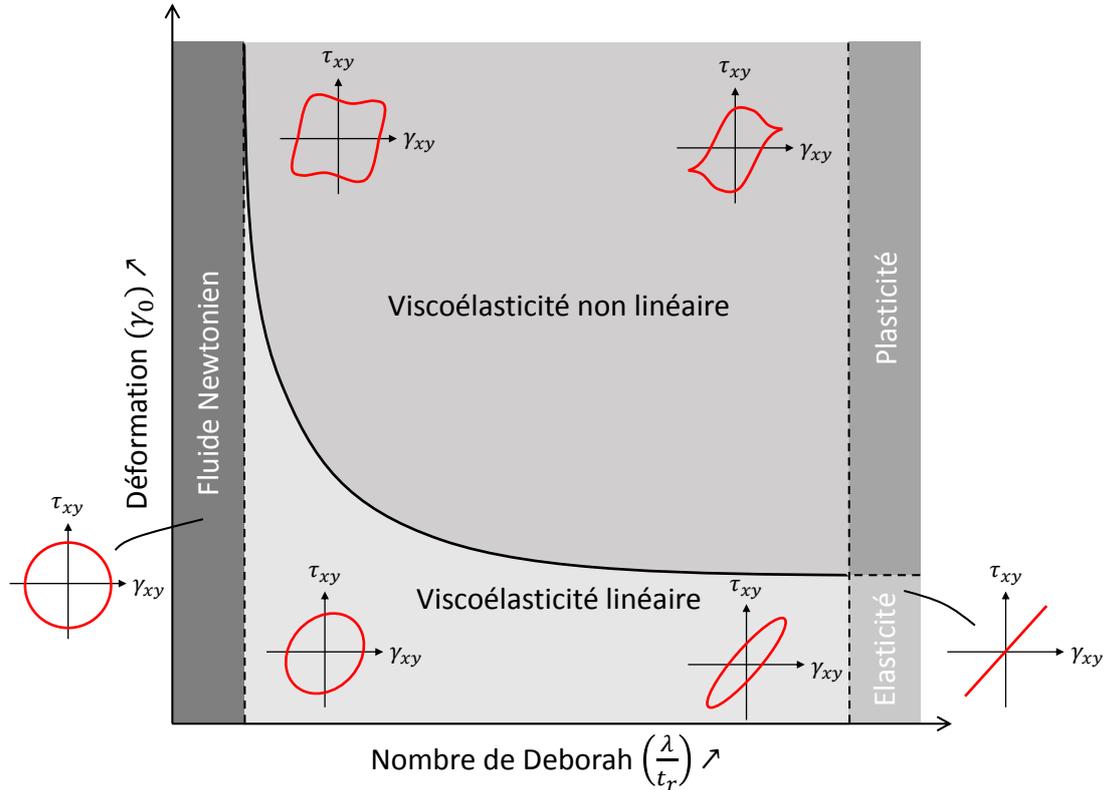


FIGURE 1.4 – Cartographie schématique des comportements mécanique d’un polymère en fonction de son niveau de déformation,  $\gamma_0$ , et du nombre de Deborah,  $De$ . Les figures de Lissajous représentent l’évolution de la contrainte de cisaillement,  $\tau_{xy}$ , en fonction de la déformation,  $\gamma_{xy}$ , pour des cas particuliers – d’après [5].

passer d’un comportement de type fluide Newtonien à un comportement purement élastique, en passant par un comportement viscoélastique. D’un point de vue mécanique, ces transitions peuvent être exprimées en fonction d’un paramètre matériau tel que le temps de relaxation  $\lambda$ , et du niveau de déformation  $\gamma_0$ .

Nous pouvons introduire le nombre de Deborah<sup>1</sup>, défini comme le rapport du temps de relaxation sur le temps d’observation du phénomène,  $t_r$  – ce dernier est nul dans le cas d’un fluide et tend vers l’infini dans le cas de l’élasticité pure. Une représentation schématique de la répartition des comportements mécaniques en fonction de ces deux paramètres est donnée en figure 1.4. Dans la suite de cette section, nous nous placerons dans les conditions de viscoélasticité linéaire.

**Module de cisaillement et angle de perte** Dans le cadre de la rhéologie, les déformations et contraintes sont exprimées en cisaillement. La déformation et la contrainte prennent alors les notations  $\gamma_{xy}$  et  $\tau_{xy}$ , comme exprimées sur la figure 1.4.

En appliquant une sollicitation harmonique en contrainte tel que  $\tau_{xy} = \tau_0 \exp(j\omega t)$ , la réponse en déformation sera retardée tel que  $\gamma_{xy} = \gamma_0 \exp(j(\omega t - \delta))$  avec  $j^2 = -1$ . Le déphasage est ici

1. Le nombre de Deborah a été défini par Marcus Reiner. Son nom fait référence au cantique de Deborah, Juges 5 : 5 : "Les montagnes s’écoulèrent devant le Seigneur". Pour Reiner cette image reflète parfaitement l’idée que tout s’écoule si tant est que le temps d’observation du phénomène soit assez long [4].

exprimé par l'angle de perte,  $\delta$ .

Nous pouvons ainsi introduire les modules complexes de cisaillement – relaxation – et de compliance – fluage – en écrivant  $G^* = 2\tau_{xy}/\gamma_{xy}$  et  $J^* = \gamma_{xy}/2\tau_{xy}$ , respectivement. Dans le plan complexe, ces grandeurs s'écrivent tel que :

$$G^* = G' + jG''$$

$$J^* = J' - jJ''$$

Avec  $(G', J')$  les modules de restitution et  $(G'', J'')$  les modules de perte. A noter que le module de relaxation uniaxial  $E^*$  peut s'écrire à partir de l'expression de  $G^*$  en sachant que  $E = 2(1 + \nu)G$  d'après l'équation 1.6b. Finalement, l'angle de perte  $\delta$  défini plus haut s'écrit :

$$\tan(\delta) = \frac{G''}{G'} = \frac{J''}{J'} = \frac{E''}{E'} \quad (1.10)$$

**Notion de spectre de relaxation** Les modules de relaxation et de fluage peuvent également s'exprimer dans l'espace temporel et de manière continue, tel que [6] :

$$G(t) = G_0 + \int_0^\infty H_s(\theta) \exp\left(-\frac{t}{\theta}\right) d\theta \quad (1.11)$$

$$J(t) = J_0 + \int_0^\infty L_s(v) \exp\left(-\frac{t}{v}\right) dv \quad (1.12)$$

Avec  $H_s(\theta)$  et  $L_s(v)$ , les spectres de relaxation et de fluage. Ces spectres représentent l'évolution temporelle de la contribution viscoélastique du matériau.

Il n'est pas possible d'accéder à l'expression exacte de ces spectres à partir des modules  $G(t)$  et  $J(t)$ . En revanche, nous pouvons estimer ces spectres par la méthode de Schwarzl *et al.* [7] fondée sur l'approximation de la transformée de Laplace du module considéré. Ainsi, l'approximation d'ordre  $n$  des spectres de relaxation et de fluage peut être calculée. Nous donnerons ici deux exemples, que sont les approximations d'ordre 1 et 2. Le calcul de ces approximations permet de caractériser le comportement viscoélastique du matériau sans postuler un modèle rhéologique *a priori*.

TABLE 1.2 – Approximations du premier et du second ordre des spectres de relaxation – colonne de gauche – et de fluage – colonne de droite [7].

$$H_{s1}(\theta) = -t \frac{dG(t)}{dt} \Big|_{t=\theta} \quad (1.13) \quad L_{s1}(v) = t \frac{dJ(t)}{dt} \Big|_{t=v} \quad (1.14)$$

$$H_{s2}(\theta) = t^2 \frac{d^2G(t)}{dt^2} \Big|_{t=2\theta} \quad (1.15) \quad L_{s2}(v) = -t^2 \frac{d^2J(t)}{dt^2} \Big|_{t=2v} \quad (1.16)$$

### 1.2.4 Interconversions des fonctions viscoélastiques

Nous avons vu dans les sections précédentes que les fonctions viscoélastiques peuvent s'écrire suivant une notation temporelle ou fréquentielle. De nombreux auteurs ont proposé des méthodes pour passer de l'une à l'autre à partir d'une seule d'entre elles [8, 9, 10, 11]. Nous présentons rapidement dans cette section deux méthodes permettant d'effectuer le passage [temporel  $\rightarrow$  fréquentiel] et inversement – dans le cas de la viscoélasticité linéaire.

**Du module de relaxation statique aux modules dynamiques** Lorsque une expression analytique du module de relaxation statique est connue en notation temporelle, il est possible de calculer les composantes complexes en effectuant une transformée de Laplace de cette expression [8]. Park et Schapery [11] proposent d'utiliser un modèle de Maxwell généralisé – défini en section 1.2.2 par l'équation 1.9 – pour calculer les composantes complexes du module de relaxation,  $E^*$ . Les expressions de  $E'(\omega)$  et  $E''(\omega)$  sont données tel que :

$$E'(\omega) = E_\infty + \sum_{i=1}^n \frac{\lambda_i^2 \omega^2 E_i}{\lambda_i^2 \omega^2 + 1} \quad (1.17)$$

$$E''(\omega) = E_\infty + \sum_{i=1}^n \frac{\lambda_i \omega E_i}{\lambda_i^2 \omega^2 + 1} \quad (1.18)$$

Avec  $E_\infty$ ,  $E_i$  et  $\lambda_i$  les paramètres du modèle de Maxwell généralisé défini par l'équation 1.9. Il suffit alors d'ajuster le modèle de Maxwell généralisé aux données de relaxation disponibles afin d'obtenir les paramètres du modèle [11]. Cette méthode permet une estimation simple de l'interconversion des fonctions viscoélastiques mais reste très dépendante du modèle analytique choisi pour effectuer le calcul.

**Des modules dynamiques au module de relaxation statique** Une autre méthode est proposée par Ninomiya et Ferry [9, 10]. Celle-ci est déterminée empiriquement pour minimiser l'erreur entre les fonctions à convertir. Le module de relaxation uniaxial  $E(t)$  est alors obtenu tel que :

$$E'(t) \approx [E'(\omega) - 0,4E''(0,4\omega) + 0,014E''(10\omega)]_{\omega=1/t} \quad (1.19)$$

### 1.2.5 Température de transition vitreuse

Nous avons montré dans la section 1.2.3 (p. 7) que le comportement d'un polymère varie en fonction des sollicitations mécaniques de son environnement. De la même façon, son comportement est dépendant de la température.

La figure 1.5 représente, schématiquement, l'évolution du module d'élasticité et du facteur de perte,  $\tan(\delta)$ , en fonction de la température. Nous retrouvons ici les différents états d'un polymère : passant d'un comportement élastique – état vitreux – à un comportement viscoélastique – caractérisé par une forte variation du module d'élasticité avec la température. La température de transition vitreuse  $T_g$  est définie au maximum du facteur de perte. Au delà de cette température le polymère est dans un état caoutchouteux. Cet état est caractérisé par un faible module d'élasticité

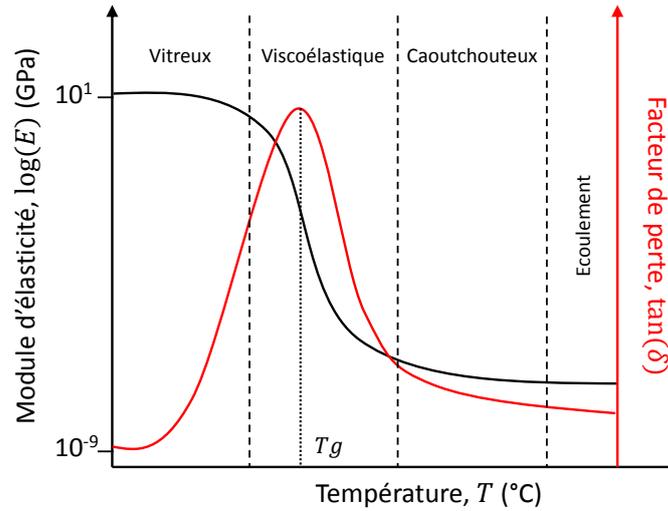


FIGURE 1.5 – Schéma de l'évolution du module d'élasticité et du facteur de perte d'un polymère en fonction de la température. Les différents états sont notés sur la figure. La température de transition vitreuse,  $T_g$ , est définie au maximum du facteur de perte.

– de l'ordre du MPa – ainsi que par un facteur de perte relativement élevé.

### 1.2.6 Équivalence temps-température

**Williams - Landel - Ferry** La notion d'équivalence temps-température est introduite par Williams, Landel et Ferry [12]. Celle-ci assure qu'il existe une relation entre température et temps – ou fréquence – de sollicitation. L'augmentation de la température est équivalente à augmenter le temps de l'essai – ou réduire la fréquence de sollicitation – et inversement. Cette notion permet donc d'établir une courbe maîtresse à partir du facteur de translation  $a_T$ , défini tel que [12] :

$$\log(a_T) = \frac{C_1(T - T_s)}{C_2 + T - T_s} \quad (1.20)$$

Avec  $C_1$  et  $C_2$  des constantes dépendant du polymère étudié,  $T_s$ , la température de référence choisie et  $T$ , la température de l'essai.

**Loi d'Arrhénius** L'équation d'Arrhénius présente la dépendance de la vitesse d'une réaction – ou procédé – en fonction de la température. Celle-ci permet notamment de calculer l'énergie d'activation du phénomène étudié, notée  $E_a$ . Elle peut s'appliquer dans de nombreux cas, allant de la caractérisation des vitesses de réactions chimiques à la modélisation des phénomènes de relaxation et de fluage – qui sont l'objet de notre étude.

Cette équation s'écrit telle que :

$$a_T = A \exp\left(-\frac{E_a}{RT}\right) \quad (1.21)$$

Avec  $A$  une constante,  $E_a$  l'énergie d'activation,  $R$ , la constante des gaz parfaits et  $T$ , la température

absolue. L'énergie d'activation peut alors se calculer en traçant l'évolution du logarithme népérien du décalage temporel  $a_T$  en fonction de l'inverse de la température absolue, tel que :

$$E_a = -R \frac{d \ln(a_T)}{d(1/T)} \quad (1.22)$$

### 1.3 Plasticité et viscoplasticité : application aux métaux

La plasticité se définit par l'apparition d'une déformation irréversible au sein du matériau. Nous entendons le mot *irréversible* tel qu'il peut être défini au sens de Reiner [4], à savoir un nombre de Deborah très grand et un niveau de déformation important – voir figure 1.4. Le comportement plastique peut se définir au travers d'un élément rhéologique simple appelé patin – voir figure 1.6 – pour lequel nous considérerons un seuil de contrainte – limite d'élasticité  $\sigma_y$  – au delà duquel le comportement du matériau sera considéré comme plastique.

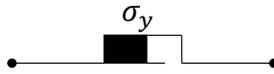


FIGURE 1.6 – Patin, défini par une limite d'élasticité  $\sigma_y$ .

La limite d'élasticité est classiquement déterminée par deux critères, à savoir celui de Von Mises et celui de Tresca. Dans cette section, nous présenterons les notions de plasticité et de viscoplasticité au travers de modèles rhéologiques simples. Nous introduirons également l'origine physique de ces comportements.

#### 1.3.1 Modèles rhéologiques

Le patin est affilié aux déformations irréversibles et donc à la plasticité du matériau. Cet élément est indéformable tant que  $|\sigma| < \sigma_y$  et se déforme indéfiniment pour  $|\sigma| \geq \sigma_y$ . Celui-ci dissipe de l'énergie au delà de la contrainte seuil – ou limite d'élasticité  $\sigma_y$ .

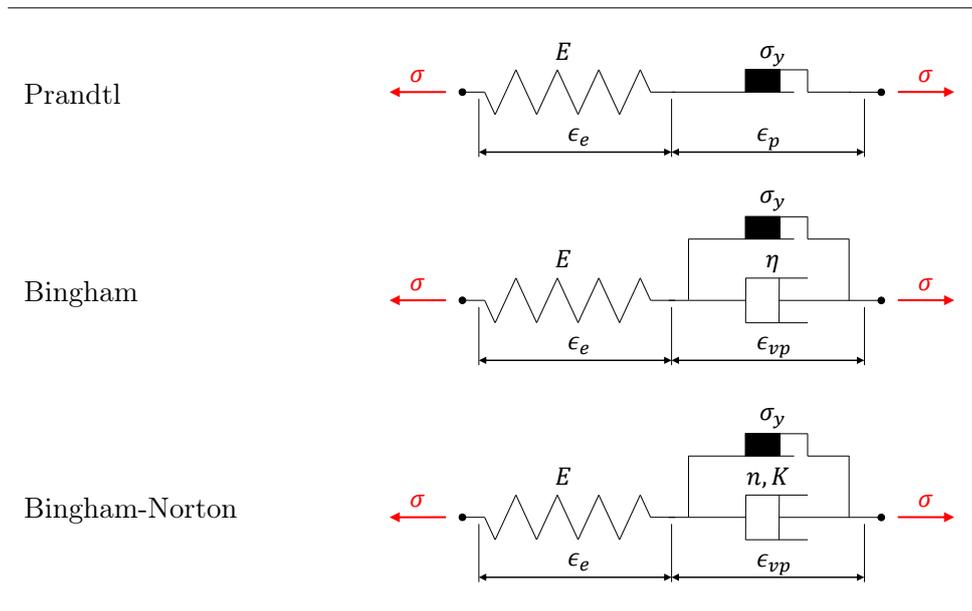
**Modèle de Prandtl** Le modèle de Prandtl est l'assemblage d'un ressort et d'un patin en série – voir table 1.3. Il représente un comportement élastoplastique sans écrouissage.

**Modèle de Bingham** Le modèle de Bingham introduit, quant à lui, la notion de viscoplasticité au travers de l'amortisseur placé en parallèle du patin – voir table 1.3. Lorsque la contrainte  $|\sigma|$  dépasse la limite d'élasticité, le modèle est équivalent à celui de Maxwell.

**Modèle de Bingham-Norton** Ce modèle est identique à celui de Bingham avec deux paramètres sur l'amortisseur : une constante  $K$  et l'indice de viscoplasticité  $n$  – voir table 1.3. Sa loi constitutive s'écrit [2] :

$$\sigma = \sigma_y + K(\dot{\epsilon}_p)^{\frac{1}{n}} \quad (1.23)$$

TABLE 1.3 – Assemblages d'éléments rhéologiques simples. Modèle de Prandtl : ressort et patin en série, avec  $\epsilon_e$ , la déformation élastique,  $\epsilon_p$ , la déformation plastique et  $\sigma$ , la contrainte appliquée au montage ; modèle de Bingham : ressort en série avec un patin et un amortisseur montés en parallèle ; modèle de Bingham-Norton : équivalent à Bingham avec deux paramètres pour l'amortisseur.



En pratique, ce modèle est le plus utilisé car il permet une bonne interprétation du comportement des métaux à haute température, où des phénomènes de fluage apparaissent.

### 1.3.2 Origine physique de la plasticité des métaux

**Notion de dislocation** Une dislocation est un défaut – ou discontinuité locale – du réseau cristallin. Elle est définie par la direction de sa ligne  $\vec{t}$  et par son vecteur de Burgers  $\vec{b}$  – dont la norme est égale à la déformation plastique engendrée en cisaillement. Il existe deux principaux types de dislocation : les dislocations coin – illustrées figure 1.7.a et b – et les dislocations vis – figure 1.7.c. Le schéma de principe du déplacement d'une dislocation coin dans un monocristal est donné figure 1.7.a ; le défaut se déplace de proche en proche à l'intérieur du cristal jusqu'à atteindre une extrémité et engendrer une déformation plastique d'amplitude  $|\vec{b}|$ .

Nous nous intéresserons plus en détail aux mouvements des dislocations et à leurs effets sur le comportement mécanique du matériau dans le chapitre 5.

### 1.3.3 Origine physique de la viscoplasticité des métaux

**Notion de diffusion** La diffusion est un mécanisme thermiquement activé qui prend sa source aux joints de grains et dans le réseau cristallin – voir figure 1.8.a et b. Elle est définie par le mouvement d'atomes de leur espace initial vers une lacune située à proximité. L'énergie d'activation de la diffusion au joints de grains est plus faible que celle dans le réseau, c'est pourquoi nous considérons une température limite au delà de laquelle la diffusion dans le réseau devient prépondérante par rapport à la diffusion aux joints de grains. Les deux sources de diffusion sont néanmoins présentes

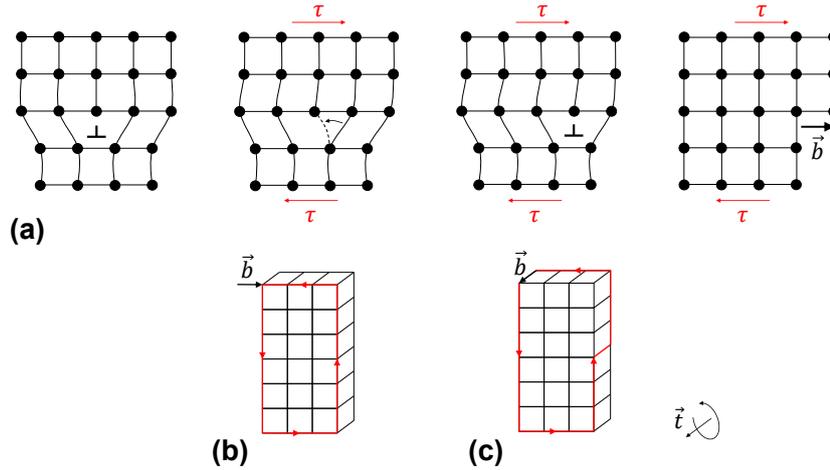


FIGURE 1.7 – (a) Déplacement d’une dislocation coin dans un réseau cristallin sous sollicitation en cisaillement  $\tau$ .  $\vec{b}$  est le vecteur de Burgers et  $\vec{t}$  est la direction de la ligne de dislocation. (b) Circuit ouvert dans le cristal parfait autour d’une dislocation coin ; (c) circuit autour d’une dislocation vis.

au delà de cette température. Nous pouvons également mentionner ici l’existence de diffusion le long des dislocations<sup>2</sup>. Les atomes diffusent alors à l’intérieur du défaut, comme illustré dans le schéma de la figure 1.8.c. Nous exprimerons les caractéristiques de ce mécanisme dans le cas de l’aluminium dans le chapitre 3.

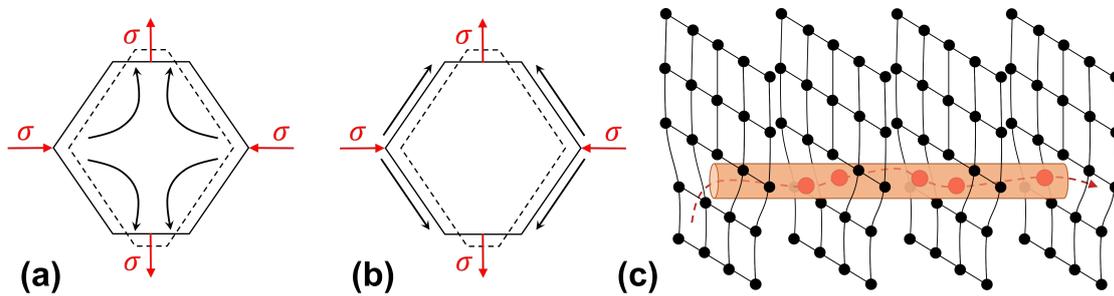


FIGURE 1.8 – Schéma explicatif de la diffusion : Dans le réseau (a) ; aux joints de grains (b) et le long d’une dislocation (c). Le défaut – en 3 dimensions – est équivalent à un tube où les atomes peuvent circuler plus facilement. Les atomes en cours de diffusion sont représentés en rouge sur le schéma (c). Pour les représentations (a) et (b), les polygones représentent un grain : non déformé en trait plein et déformé en trait pointillé.

**Notion de fluage** Le fluage des métaux définit leur caractère viscoplastique – déformation irréversible dépendante du temps – sous une contrainte constante. Ce type de comportement apparaît aux alentours de  $0,5 T_m$ ,  $T_m$  étant la température de fusion. Westbrook montre que la dureté varie peu pour  $T < 0,5 T_m$  et diminue fortement à des températures plus élevées où les phénomènes de diffusion s’activent [13, 14, 15]. De la même manière que pour la viscoélasticité, Frost et Ashby [16] réalisent des cartographies des origines physiques du comportement en fluage des métaux. Ils

2. Ce type de diffusion est couramment appelée en anglais : "dislocation pipe diffusion", en référence à la forme de tuyau des dislocations

expriment ces cartes en fonction de la température normalisée  $T/T_m$  – avec  $T$  et  $T_m$  en Kelvin –, et de la contrainte de cisaillement normalisée  $\tau/\mu$ .

Un exemple de cartographie est présenté figure 1.9. Ce type de schéma ne représente pas le comportement exact du matériau en fonction des paramètres étudiés mais permet d'obtenir les ordres de grandeur des conditions d'apparition des phénomènes.

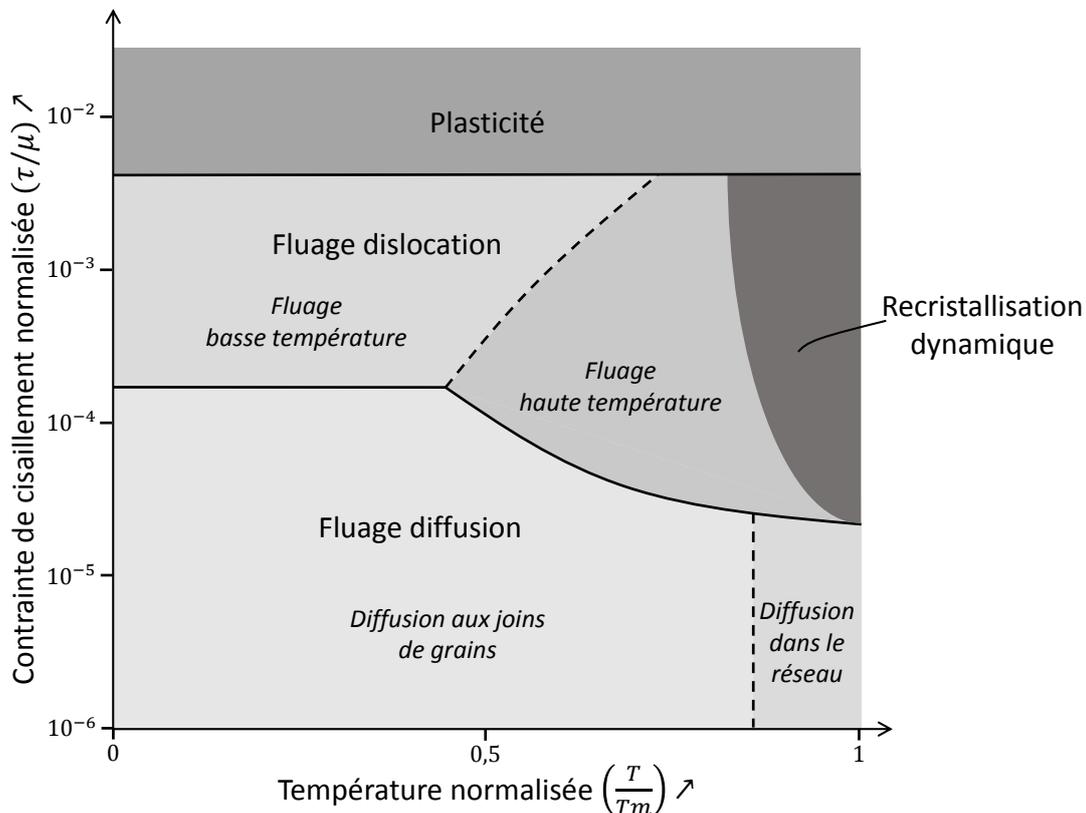


FIGURE 1.9 – Cartographie du comportement en fluage en fonction de la température normalisée  $T/T_m$  et de la contrainte de cisaillement normalisée  $\tau/\mu$ , inspirée des travaux réalisés par Frost et Ashby pour de l'aluminium pur – grain de diamètre  $10 \mu m$  – [16].

Nous retrouvons le fluage par diffusion – prépondérant pour des sollicitations en cisaillement faibles – et le fluage dislocation – qui s'active pour des sollicitations plus importantes.

La courbe de fluage classique est représentée sur la figure 1.10. L'évolution de la déformation plastique  $\epsilon_p$  présente trois phases : la première, appelée fluage primaire, correspond à une forte augmentation de la déformation plastique ; la seconde, appelée fluage stationnaire, décrit la partie où le taux de déformation plastique  $\dot{\epsilon}_p$  est constant ; enfin, la troisième phase correspond à un endommagement du matériau, faisant croître le taux de déformation plastique apparent et menant à sa rupture.

**Sensibilité à la vitesse de déformation et énergie d'activation** Dans le cadre du fluage stationnaire, la loi de Norton-Hoff peut être utilisée afin d'extraire les paramètres physiques du comportement viscoplastique du matériau. En reprenant l'équation 1.23, nous pouvons réécrire les

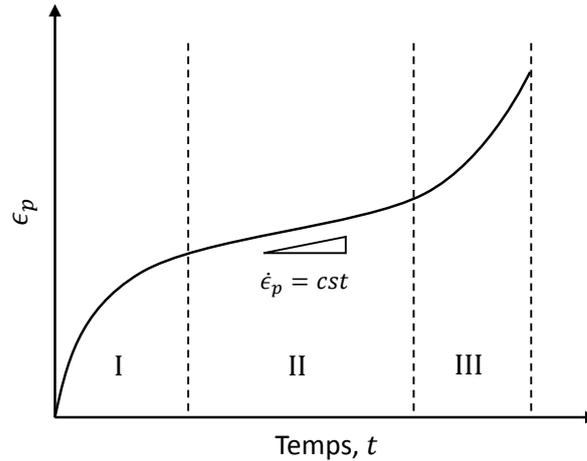


FIGURE 1.10 – Comportement classique d'un matériau soumis à une contrainte constante – fluage. Évolution de la déformation plastique,  $\epsilon_p$ , en fonction du temps [17].

constantes  $K$  et  $n$ , tel que :

$$\dot{\epsilon}_p = C\sigma^n \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (1.24)$$

Avec  $C$  une constante,  $Q$  l'énergie d'activation apparente du fluage,  $n$  l'indice de viscoplasticité,  $R$  la constante des gaz parfaits et  $T$  la température absolue. L'indice de viscoplasticité peut donc être obtenu par l'équation 1.25 :

$$n = \frac{d \ln(\dot{\epsilon}_p)}{d \ln(\sigma)} \quad (1.25)$$

## 2 L'essai de nanoindentation

### 2.1 Un peu d'histoire

La mesure de dureté par indentation a débuté dans les années 1920 avec les travaux de Brinell sur les métaux [15]. Le principe de son essai est de presser une sphère – supposée indéformable – sur le métal à étudier. La dureté Brinell – notée HB – est alors calculée par le ratio de la force appliquée sur la taille de l'empreinte rémanente.

D'autres méthodes se sont ensuite développées, telles que la dureté Rockwell – HRC pour une pointe conique et HRB pour une pointe sphérique –, la dureté Vickers avec une pointe pyramidale à base carrée – notée HV – ou encore la dureté Knoop avec une pointe pyramidale à base losange. Ces différents essais et leur unités sont recensés dans la norme ISO [18].

Les mesures présentées ci-dessus nécessitent cependant d'évaluer la taille de l'empreinte après l'application de la charge<sup>3</sup>. Cette caractérisation s'effectue de manière optique, ce qui limite l'utilisation de ce type d'essais à des caractérisations macroscopiques – de la dizaine de micromètres au millimètre. De plus, dans le cas de matériaux hyper-élastiques – tels que les élastomères – le retour élastique de la surface après l'application de la charge est quasiment total. Ainsi, selon la définition utilisée classiquement, ces matériaux auraient une dureté infinie...

---

3. Sauf dans le cas de l'essai Rockwell où la dureté est évaluée à partir de la pénétration résiduelle.

Tabor [15] propose alors en 1970 de définir la dureté comme le rapport de la force sur l'aire de contact sous charge. Nous reprendrons cette définition dans la section suivante. Suite à ses raisonnements, le principe de l'indentation instrumentée s'est développé. Avec l'amélioration constante de la précision des capteurs et des instrumentations, l'essai d'indentation s'est progressivement dirigé vers des mesures nanométriques. Des auteurs tels que Doerner et Nix [19] ou encore Loubet *et al.* [20] ont participé à ces développements dans les années 80.

Dans la suite de cette section, nous nous intéresserons à l'interprétation des mesures de nanoindentation instrumentée au travers des principes fondamentaux et des différents modèles développés. Nous détaillerons également avec plus de précision les récents développements effectués sur la nanoindentation à haute température.

## 2.2 Mesure des propriétés mécaniques

### 2.2.1 Principe de similarité géométrique

Le principe de similarité géométrique s'énonce comme suit : *Quelle que soit la taille de l'indentation, les champs de contraintes et de déformations au sein du solide indenté sont géométriquement similaires.* Ce principe est valide dans le cas de l'indentation d'un solide élastique ou élastoplastique homogène [15]. De plus, la géométrie de la pointe doit être auto-similaire : elle ne doit pas comporter de longueur caractéristique. Les pointes coniques, pyramidales ou diédriques possèdent cette caractéristique, en revanche les pointes sphériques ou cylindriques à fond plat, non. Pour simplifier la notation, l'expression "principe de similarité géométrique" sera remplacée par le terme PGS<sup>4</sup> dans la suite de ce manuscrit.

Les études expérimentales présentées dans ce document sont réalisées avec des pointes de type Berkovich. Pour des raisons de simplification, les prochains développements analytiques se fondent sur l'étude d'une pointe conique équivalente en terme de fonction d'aire. Pour une pointe Berkovich, l'angle entre la face inclinée du cône équivalent et la surface – noté  $\beta$  – est de  $19,68^\circ$ .

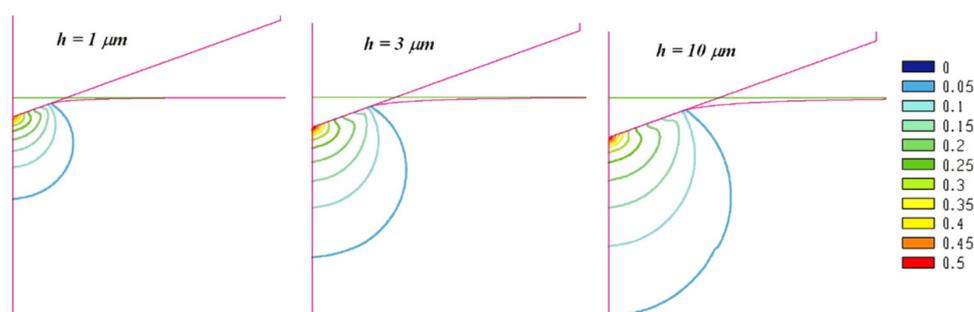


FIGURE 1.11 – Exemple d'isocontours de déformation plastique cumulée obtenus lors de l'indentation d'un solide élastoplastique par une pointe conique d'angle au sommet équivalent à une pointe Berkovich [21].

La figure 1.11 illustre le PGS. Le gradient de déformation plastique au sein du solide reste géométriquement similaire, quelle que soit la profondeur d'indentation. Ainsi, une normalisation

4. PGS est une abréviation de "Principle of Geometric Similarity" [15].

géométrique par le rayon de contact  $a$  à l'instant  $t$  de l'indentation semble adéquate. Nous pouvons donc introduire les coordonnées réduites  $\rho = r/a(t)$  et  $\zeta = z/a(t)$ . Le champ des déplacements s'écrit alors :

$$u_{ij}(r, z, t) = a(t) \cdot U_{ij}(\rho, \zeta) \quad (1.26)$$

Nous pouvons définir la profondeur de pénétration telle que  $h(t) = a(t) \cdot U_{ij}(0, 0)$ . Le rapport  $(h/a)$  est donc constant. Love et Sneddon calculent ce rapport dans le cas de l'indentation conique d'un solide élastique et trouvent [22, 23] :

$$\frac{h}{a} = \frac{\pi}{2} \tan(\beta) \quad (1.27)$$

Avec l'hypothèse des petites déformations, le champ de déformation s'écrit :

$$\begin{aligned} \epsilon_{ij}(r, z, t) &= \frac{1}{2} \left( \frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) \\ &= \frac{1}{2} \left( \frac{\partial U_i}{\partial X_j} + \frac{\partial U_j}{\partial X_i} \right) \\ &= E_{ij}(\rho, \zeta) \end{aligned} \quad (1.28)$$

De la même façon, le champ des contraintes s'écrit en fonction des coordonnées réduites tel que :

$$\sigma_{ij}(r, z, t) = \Sigma_{ij}(\rho, \zeta) \quad (1.29)$$

### 2.2.2 Expression de la dureté et du module d'élasticité

**Dureté** La dureté d'un matériau est souvent définie comme un critère de plasticité qui exprime la contrainte – ou pression de contact – nécessaire à le déformer de manière irréversible [15]. Cette définition est valable dans le cas des métaux. Cependant, pour des matériaux polymères par exemple, nous parlerons plutôt de résistance à la pénétration étant donné que la déformation appliquée lors de l'indentation peut se trouver réversible. La dureté  $H$ , respectivement résistance à la pénétration  $p_m$ , est donc équivalente à une pression exprimée par le rapport de la force appliquée  $F$  sur l'aire de contact projetée  $A_c$  induite lors du chargement. Elle est définie par l'équation suivante [15] :

$$H = \frac{F}{A_c} \quad (1.30)$$

Il est important de noter que la dureté ainsi définie n'est pas une propriété intrinsèque du matériau car elle dépend de la forme de la pointe utilisée ainsi que de la vitesse de déformation lors du chargement.

**Module d'élasticité** Le module d'élasticité est quant à lui défini, en indentation instrumentée, par la pente de l'asymptote à la courbe de décharge calculée au chargement maximum  $F_{max}$ . En effet, les tous premiers déplacements de la pointe lors de son retrait sont dominés par le comportement élastique du matériau. Le module réduit de contact  $E_c^{I*}$  peut donc être calculé à partir de l'expression suivante [19] :

$$E_c^{I*} = \frac{S}{2} \sqrt{\frac{\pi}{A_c}} \quad (1.31)$$

Cette expression est dérivée des équations de Sneddon qui a étudié le comportement d'un corps élastique semi-infini indenté par des pointes indéformables de forme conique, sphérique ou encore cylindrique [23, 24]. L'expression 1.31 est utilisable pour toute pointe axisymétrique [25]. Cependant les pointes Berkovich ou Vickers couramment utilisées en indentation ne sont pas axisymétriques. King [26] montre par une étude éléments finis que le module d'élasticité réduit de contact est proportionnel à l'expression 1.31 pour ces types de pointe. Pour la géométrie Berkovich, le rapport est de 1,034 et pour Vickers, le rapport est de 1,012. Au vue des sources d'erreurs possibles en indentation, nous n'utiliserons pas cette correction dans les prochains développements.

Le module réduit de contact contient la contribution de l'élasticité du matériau à caractériser et de la pointe. Le module d'élasticité réduit du matériau  $E'^*$  est défini par la relation suivante :

$$\frac{1}{E'^*} = \frac{1}{E'_c} - \frac{1 - \nu_p^2}{E'_p} \quad (1.32)$$

Où  $\nu_p$  et  $E'_p$  sont le coefficient de Poisson et le module d'élasticité de la pointe, respectivement. Le module d'élasticité est ensuite accessible sous réserve de connaître le coefficient de Poisson du matériau. Son expression est donnée ci-dessous :

$$E' = E'^*(1 - \nu^2) \quad (1.33)$$

L'obtention de ces propriétés ne peut se faire qu'à condition d'évaluer avec suffisamment de précision la force d'indentation  $F$ , la raideur de contact  $S$ , l'aire de contact projetée  $A_c$  et les propriétés mécaniques de la pointe,  $E'_p$  et  $\nu_p$ .

Or, la force est mesurée et les propriétés mécaniques de la pointe sont connues dans les conditions d'essais. Restent la raideur de contact et l'aire de contact projetée qui sont des grandeurs non accessibles directement [27]. Une modélisation de l'interaction mécanique entre la pointe et le matériau est donc nécessaire pour extraire ces données. Nous détaillerons dans les sections suivantes les modèles et calculs permettant d'évaluer ces grandeurs.

### 2.2.3 Raideur de contact

La raideur de contact peut être calculée par deux méthodes. La première étant la méthode statique qui consiste à mesurer la raideur en un point, à savoir : la charge maximum lors de l'essai,  $F_{max}$  ; la seconde étant la méthode dynamique, permettant d'accéder à la mesure de la raideur en fonction de la pénétration en superposant une excitation sinusoïdale à la cinétique de chargement classique.

**Méthode statique** C'est la première méthode à avoir été développée pour extraire la raideur de contact d'un essai d'indentation instrumentée. Elle se fonde sur l'interprétation de la courbe de décharge – comme précédemment expliqué. L'hypothèse de base est de supposer que l'aire de contact entre la pointe et le matériau ne varie pas au début de la décharge [19]. Dans ce cas, le contact peut être considéré, selon l'analyse de Sneddon, comme l'indentation d'un solide élastique semi-infini par un poinçon cylindrique plat. Le début de la courbe de décharge est donc assimilé à

une droite de pente,  $S = dF/dh$ . La force appliquée dans le cas d'un poinçon cylindrique plat est donné par Sneddon :

$$F = 2E_c'^* a(h - h_r') \quad (1.34)$$

Dans cette équation, la force varie linéairement avec la profondeur de pénétration car le rayon de contact  $a$  est supposé constant. Nous pouvons donc calculer la pente,  $S = dF/dh$  en dérivant l'équation 1.34 par rapport à la pénétration  $h$ . La raideur de contact s'exprime alors ainsi :

$$S = 2E_c'^* a \quad (1.35)$$

Nous retrouvons bien la relation liant module d'élasticité et raideur de contact exprimée dans l'équation 1.31.

Il est tout fois à noter que dans le cas des indenteurs pyramidaux que sont les pointes Vickers et Berkovich, la courbe de décharge ne peut pas être assimilée à une droite. Celle-ci prend plutôt la forme d'une loi puissance d'expression :

$$F = B(h_e)^q \quad (1.36)$$

Avec  $h_e$  le déplacement élastique de la pointe dans le matériau et  $B$  et  $q$  des constantes. Le coefficient  $q$  dépend de la forme de la pointe. Celui-ci est compris entre  $q = 1$  dans le cas du poinçon cylindrique plat, et  $q = 2$  dans le cas du cône. En dérivant l'équation 1.36 par le déplacement, nous obtenons l'expression de la raideur telle que :

$$S = Bq(h_e)^{q-1} \quad (1.37)$$

En déterminant les paramètres  $B$  et  $q$  sur la courbe de décharge expérimentale, la raideur de contact peut être ainsi calculée. Loubet et al. ainsi qu'Oliver et Pharr obtiennent des mesures correctes de module d'élasticité, via cette méthode, sur différents matériaux [28, 29].

Néanmoins, l'application de cette méthode présente certaines limites :

- La mesure de la raideur ne s'effectue qu'à une seule profondeur d'indentation, correspondant à la charge maximum atteinte. L'investigation de la variation de raideur de contact avec la profondeur d'indentation requiert donc une grande quantité d'essais réalisés à des enfoncements différents.
- Le modèle utilisé est valable dans le cadre de l'indentation de matériaux élastiques ou élastoplastiques. En revanche, son application à des matériaux visqueux – viscoélastiques ou viscoplastiques – est difficile car le maximum de la force appliquée ne correspond pas nécessairement au maximum de déplacement [30]. L'interprétation du modèle entraîne donc une raideur négative.

C'est pourquoi l'utilisation de la seconde méthode, à savoir la méthode dynamique, se révèle intéressante, tant sur le point de l'acquisition de données en fonction de la profondeur d'indentation que sur la fiabilité de la caractérisation de la raideur. Cette méthode est présentée dans le paragraphe suivant.

**Méthode dynamique** La méthode dynamique, appelée également méthode CSM<sup>5</sup>, consiste à superposer une oscillation d'une certaine fréquence  $\omega$  et d'amplitude  $F_1$  ou  $-h_1$  – dans le cas d'un contrôle en force – ou déplacement. Dans le cas d'un indenteur à force imposée, l'expression de cette oscillation  $F_{osc}$  est donnée par :

$$F_{osc}(t) = F_1 \exp(j\omega t) \quad (1.38)$$

Toujours dans le cas d'un système à force imposée, le déplacement résultant de cette sollicitation est exprimé tel que :

$$h_{osc}(t) = h_1 \exp(j(\omega t - \delta)) \quad (1.39)$$

Avec  $h_{osc}$  le déplacement harmonique,  $h_1$  l'amplitude du déplacement et  $\delta$  l'angle de déphasage. Connaissant la réponse en mouvement de l'indenteur, décrite de manière simplifiée par l'équation suivante [28] :

$$m_{col}\ddot{h}(t) + C_{equ}\dot{h}(t) + K_{equ}h(t) = F_1 \exp(j\omega t) \quad (1.40)$$

Avec  $m_{col}$  la masse de la colonne d'indentation,  $K_{equ}$  la raideur équivalente, comprenant la souplesse du bâti, la raideur des lames support et la raideur du contact, et  $C_{equ}$  l'amortissement du système. En insérant l'équation 1.39 dans l'expression 1.40, la fonction de transfert du système peut s'écrire :

$$\frac{F_1}{h_1} \exp(-j\delta) = K_{equ} - \omega^2 m_{col} + jC_{equ}\omega \quad (1.41)$$

$$\tan(\delta) = \frac{C_{equ}\omega}{K_{equ} - \omega^2 m_{col}} \quad (1.42)$$

L'étude du mouvement de la colonne "hors contact" pour différentes fréquences de sollicitation permet de calibrer les raideurs et amortissements intrinsèques au système de mesure. Une fois le comportement dynamique du système d'indentation connu, la raideur et l'amortissement du contact peuvent être calculés par les équations 1.41 et 1.42. L'amplitude en déplacement de l'oscillation  $h_1$  doit rester négligeable par rapport à la profondeur de contact pour satisfaire l'hypothèse des petites déformations en élasticité.

Cette méthode a pour avantage de permettre l'acquisition de la raideur de contact au cours de l'indentation, à la fréquence de sollicitation utilisée. De plus, la mesure de la raideur est très peu sensible à la dérive des capteurs de déplacement car chaque oscillation s'effectue en une fraction de seconde. Cette méthode permet également d'obtenir une notion de viscoélasticité en mesurant le déphasage caractérisé par  $\tan(\delta)$ , ce que la méthode statique ne permet pas.

Néanmoins, une attention particulière doit être portée aux conditions d'application de celle-ci. Pharr *et al.* [31] ont étudié l'influence de l'amplitude d'oscillation du module CSM sur les mesures de force, de déplacement et de raideur, lors du chargement. Leur conclusions concernent principalement l'instrumentation et sont listées ici :

- Des erreurs de mesures de la charge, du déplacement et de la raideur peuvent subvenir lors de l'utilisation du mode CSM. Ces erreurs concernent surtout les matériaux ayant un rapport

---

5. Abréviation de Continuous Stiffness Measurement.

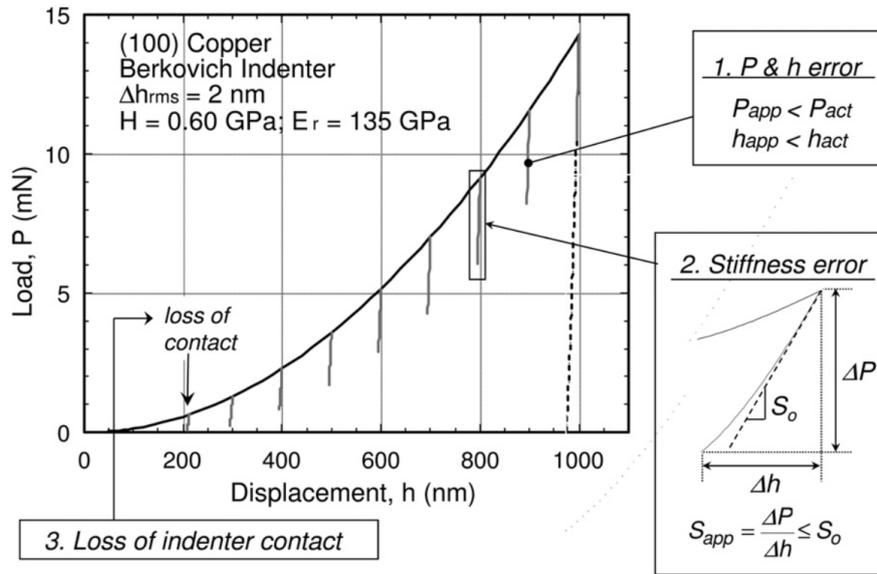


FIGURE 1.12 – Schéma des sources d'erreurs possibles lors de l'utilisation du mode CSM selon Pharr *et al.* [31]

module d'élasticité réduit sur dureté ( $E^*/H$ ) élevé. En effet, dans ce cas, le contact est à la fois raide et très plastique. L'application d'une faible oscillation en déplacement peut ainsi produire une baisse d'effort importante au niveau du contact – voir figure 1.12. Or, certains nanoindenteurs, comme ceux utilisés dans ces travaux, calculent la force de chargement comme étant la moyenne entre les efforts maximum et minimum appliqués lors d'un cycle d'oscillation. De plus, la raideur est calculée à partir des valeurs crête à crête des signaux de force et de déplacement, l'hypothèse étant que la courbe de décharge sur un cycle d'oscillation est linéaire, or ce n'est pas exactement le cas, surtout pour des amplitudes de force élevées – voir figure 1.12. Pharr *et al.* [31] ont étudié ce phénomène sur un monocristal de Cuivre d'orientation (100) avec un rapport module sur dureté tel que :  $E^*/H = 225$ . Ils proposent une méthode de correction des données de force, de déplacement et de raideur, lié à ce problème ;

- aux faibles enfoncements, l'amplitude d'oscillation de la charge peut dépasser l'effort appliqué sur le matériau. Dans ce cas, la pointe perd le contact avec l'échantillon, rendant les mesures de force, de déplacement et de raideur aberrantes – voir figure 1.12.

D'autres études soulignent une modification des propriétés mécaniques à faible enfoncement due à la sur-sollicitation imposée par le mode CSM. Siu *et al.* [32] ainsi que Cordill *et al.* [33] notent une baisse de dureté mesurée avec le mode CSM pour des faibles enfoncements – inférieurs à 200 nm – lors d'indentations effectuées sur de l'aluminium, du nickel et du sel (NaCl). Cette baisse de dureté pourrait être attribuée à l'annihilation des dislocations, présentes sous la pointe, déclenchée par la sollicitation dynamique. La réduction de la contrainte d'écoulement serait alors directement due à l'évolution de la densité de dislocation locale.

Un équilibre doit être trouvé entre la réduction du rapport bruit sur signal, rendu possible par l'augmentation de l'amplitude d'oscillation du système CSM, et les erreurs induites par cette sur-sollicitation.

Dans le cas des polymères, le fréquence de sollicitation du matériau peut changer sensiblement son module d'élasticité. La raideur du contact est donc une fonction de la fréquence d'excitation, ce qui est à inclure dans l'interprétation des résultats et notamment dans leur comparaison aux essais quasi-statiques. Hochstetter *et al.* [34] remarquent que l'aire de contact calculée par la méthode CSM peut être supérieure à l'aire de contact estimée par la méthode quasi-statique – pour des matériaux viscoélastiques comme les polymères – car la raideur de contact mesurée en mode CSM est supérieure à celle mesurée de manière quasi-statique.

#### 2.2.4 Aire de contact

Contrairement à la raideur de contact, l'aire de contact ne peut pas être mesurée directement. La conformation de la surface du matériau indenté autour de la pointe ne peut pas être connue *a priori* – voir figure 1.13 – et des modèles sont nécessaires pour déduire de la mesure de déplacement la hauteur réelle de contact et par extension l'aire de contact. Nous détaillons ici l'expression de deux modèles destinés à calculer l'aire de contact à une profondeur de pénétration donnée, dans le cas d'une pointe conique. Ceux-ci ont pour principales hypothèses : un contact non adhésif et sans frottement.

**Modèle d'Oliver et Pharr** Le modèle d'Oliver et Pharr [28] est le modèle le plus communément utilisé dans la littérature. La profondeur d'indentation totale, notée  $h$ , peut être décomposée en une inflexion élastique  $h_e$  et une profondeur de contact  $h_c$  – voir figure 1.14 –, tel que :

$$h = h_c + h_e \quad (1.43)$$

En utilisant les équations de Sneddon, l'amplitude de l'inflexion élastique au niveau du contact peut être estimée. Ainsi, la profondeur de contact s'exprime de telle manière :

$$h_c = h - \epsilon \frac{F}{S} \quad (1.44)$$

La constante  $\epsilon$  dépend de la géométrie de la pointe. Dans le cas d'une pointe conique  $\epsilon = 0,727$  – pour un poinçon cylindrique plat,  $\epsilon = 1$  et pour une paraboloïde de révolution,  $\epsilon = 0.75$ . Le calcul de l'aire de contact passe ensuite par l'approximation d'une fonction d'aire réelle de la pointe calculée par :

$$A_c = C_0 h_c^2 + C_1 h_c + C_2 h_c^{1/2} + \dots + C_8 h_c^{1/128} \quad (1.45)$$

Ce modèle permet l'interprétation de mesures effectuées sur des matériaux présentant une déformation élastique prépondérante à la périphérie du contact. En revanche, ce modèle engendre des erreurs d'interprétation pour des matériaux présentant des bourrelets autour de la pointe.

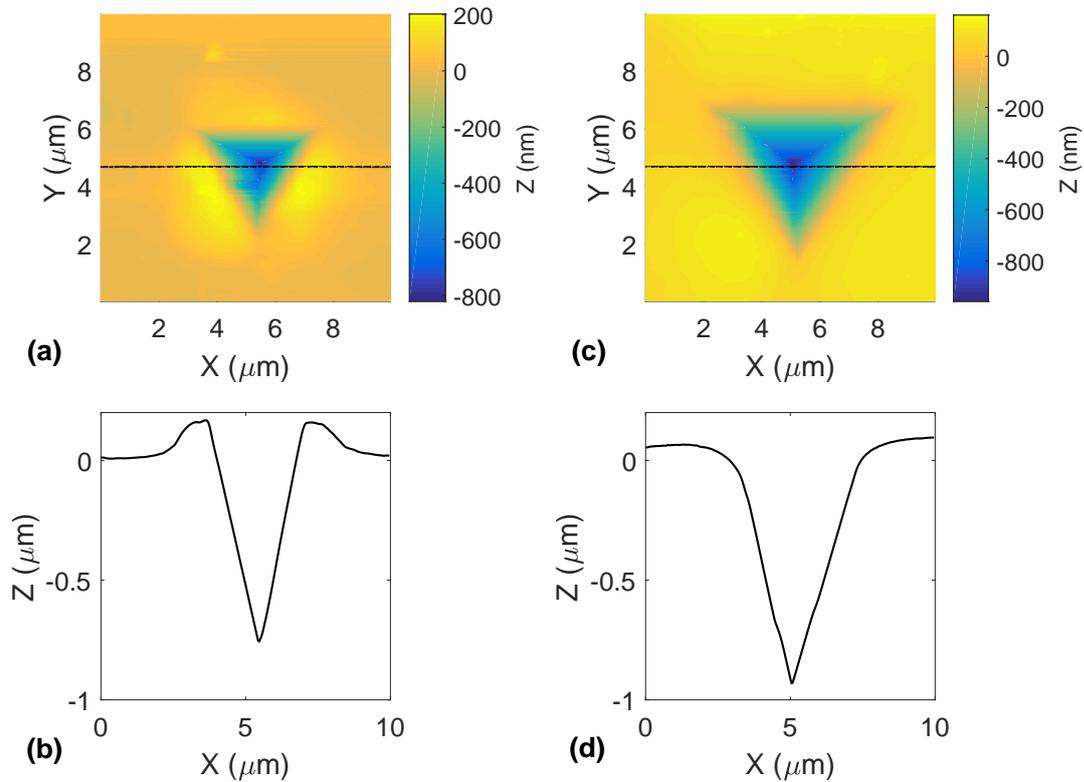


FIGURE 1.13 – Topographies et profils d’indents effectués par le module d’imagerie – "Scanning Probe Microscopy" – du nanoindenteur Hysitron Ti950. (a) Topographie d’une indentation Berkovich sur un alliage d’aluminium corroyé AA1050. (b) Profil mesuré au niveau de la ligne noire sur (a); nous notons la présence de bourrelets à la périphérie du contact. (c) Indentation Berkovich sur un alliage d’aluminium corroyé puis recuit pendant 2h45 à 300 °C. (d) Profil mesuré au niveau de la ligne noire sur (c); nous notons la présence d’un affaissement à la périphérie du contact.

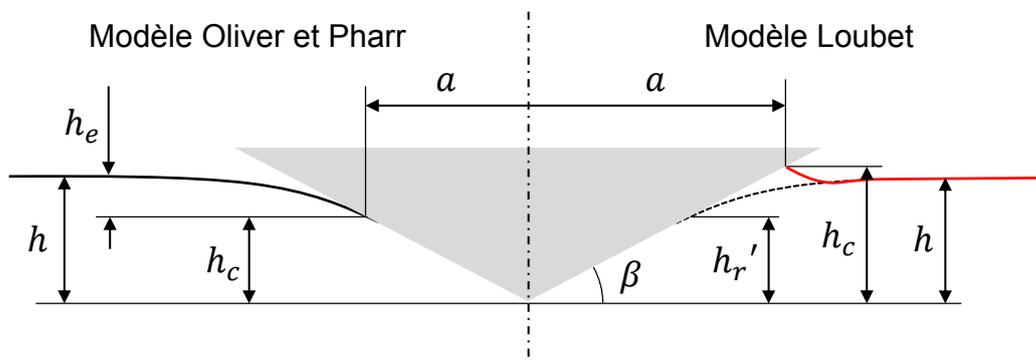


FIGURE 1.14 – Schéma de la géométrie de contact entre une pointe conique et un matériau, définie par Oliver et Pharr [28] – à gauche – et Loubet – à droite.

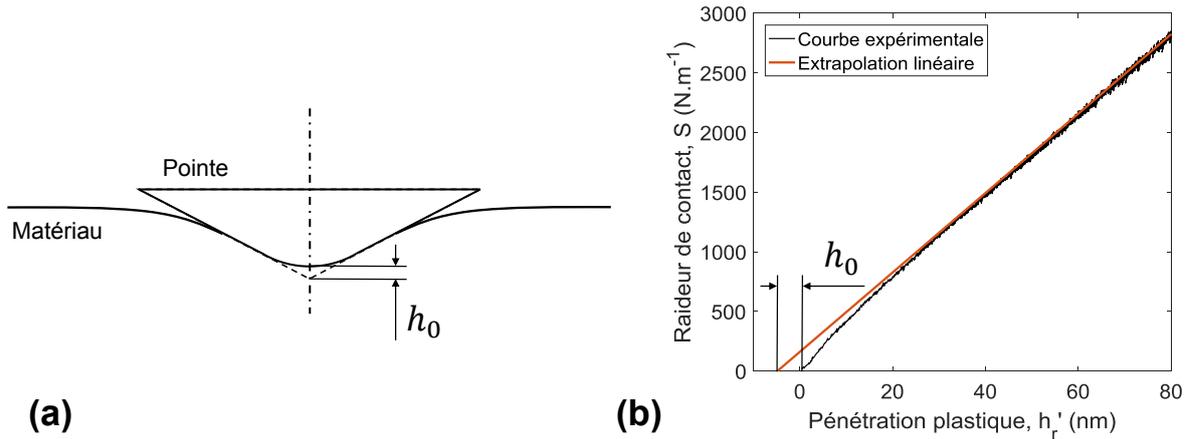


FIGURE 1.15 – Illustration du défaut de pointe,  $h_0$ ; (a) schéma du défaut sur une pointe axisymétrique; (b) estimation du défaut de pointe par la méthode de Loubet [35] sur un échantillon de Polyméthacrylate de méthyle – PMMA – à température ambiante.

**Modèle de Loubet *et al.*** Le modèle de Loubet *et al.* est basé sur l'indentation d'un solide élastique parfaitement plastique par une pointe conique [35]. La relation entre hauteur de contact,  $h_c$ , et profondeur plastique d'indentation  $h_r'$ , est définie par Loubet *et al.*, voir figure 1.14, tel que :

$$h_c = \alpha_L h_r' \quad (1.46)$$

Avec  $h_r'$  donné par l'expression :

$$h_r' = h - \frac{F}{S} \quad (1.47)$$

Le coefficient  $\alpha_L$  de l'équation 1.46 est déterminé expérimentalement sur différents matériaux. Pour une pointe Berkovich,  $\alpha_L = 1,2$ . Cette valeur a été confirmée à l'aide de simulations, sur un modèle éléments finis axisymétrique 2-D, de l'indentation d'un solide élastique parfaitement plastique par une pointe conique de demi angle au sommet équivalent à une pointe Berkovich [27]. Les résultats de cette simulation donne  $\alpha_L = 1,24$ , ce qui est en bon accord avec l'estimation expérimentale de Loubet *et al.* [35]. La profondeur de contact s'exprime donc à partir des équations 1.46 et 1.47 telle que :

$$h_c = \alpha_L \left( h - \frac{F}{S} + h_0 \right) \quad (1.48)$$

Avec  $h_0$  la hauteur du défaut de pointe définie par Loubet *et al.* [35] comme étant l'écart entre l'extrémité réelle, potentiellement arrondie, et la géométrie théorique de la pointe – voir figure 1.15.a. L'estimation de ce défaut de pointe se fait en traçant l'évolution de la raideur de contact en fonction de la profondeur de pénétration plastique,  $h_r'$ , comme représenté sur la figure 1.15.b.

L'aire de contact est finalement définie telle que :

$$A_c = \pi \left( \frac{h_c}{\tan(\beta)} \right)^2 \quad (1.49)$$

## 2.3 Mesure des propriétés dépendantes du temps par nanoindentation instrumentée

Après avoir présenté les mesures classiques d'indentation nous allons aborder les applications de cette méthode à la caractérisation des propriétés mécaniques dépendantes du temps.

Dans un premier temps, nous introduisons la notion de vitesse de déformation, indispensable à l'interprétation des phénomènes visqueux ; ensuite, nous présenterons les différents essais permettant d'extraire les paramètres dépendants du temps ou de la vitesse de sollicitation. Ainsi, les notions de sensibilité à la vitesse de déformation, sollicitation dynamique, fluage et relaxation seront abordées dans les sections suivantes.

### 2.3.1 Notion de vitesse de déformation représentative

**Vitesse de déformation en indentation** La notion de vitesse de déformation est particulièrement importante pour des solides ayant des propriétés mécaniques dépendantes du temps. Dans ce cas, le PGS défini en section 2.2.1 (p. 17), est satisfait si le champ de taux de déformation peut s'écrire dans l'espace réduit  $(\rho, \zeta)$ , tel que :

$$\dot{\epsilon}_{ij}(r, z, t) = \Gamma_{ij}(\rho, \zeta) \quad (1.50)$$

En reprenant l'équation 1.28 nous pouvons écrire le champ de taux de déformation tel que [36] :

$$\dot{\epsilon}_{ij}(r, z, t) = \frac{d}{dt} E_{ij}(\rho, \zeta) = -\frac{\dot{a}(t)}{a(t)} \left( \rho \frac{\partial E_{ij}}{\partial \rho} + \zeta \frac{\partial E_{ij}}{\partial \zeta} \right) \quad (1.51)$$

Pour satisfaire l'équation 1.50, le terme  $\dot{a}(t)/a(t)$  doit être indépendant du temps. La vitesse de déformation en indentation est donc proportionnelle à ce terme. Le rapport  $(h/a)$  étant constant la vitesse de déformation est souvent définie [37] telle que :

$$\alpha = \frac{\dot{h}}{h} \quad (1.52)$$

Le type de chargement permettant d'établir ce rapport est de forme exponentielle, tel que  $h(t) = h_{ini} \cdot \exp(\alpha t)$ . La figure 1.16 illustre l'évolution de la vitesse de déformation définie par l'équation 1.51 – en élasticité linéaire – en un point fixe de l'espace réduit  $(\rho, \zeta)$  pour deux types de chargement. Cet exemple souligne bien l'importance d'effectuer des chargements exponentiels pour respecter le PGS. Nous pouvons néanmoins ajouter que le PGS peut être satisfait par morceau, lors d'un chargement, en effectuant des segments à différentes vitesses de déformation  $\alpha$ .

D'un point de vue expérimental, les nanoindenteurs que nous utilisons dans ce travail sont pilotés en force, et non en déplacement. Lucas *et al.* [37] proposent d'utiliser un chargement exponentiel en force –  $F(t) = F_{ini} \cdot \exp(2\alpha t)$ . Cette procédure est valable dès que l'écoulement plastique atteint un niveau stationnaire – la dureté devient constante. Ils obtiennent alors l'expression :

$$\alpha = \frac{\dot{h}}{h} = \frac{1}{2} \frac{\dot{F}}{F} \quad (1.53)$$

**Vitesse de déformation représentative** Après avoir défini la vitesse de déformation en indentation,  $\alpha$ , la notion de vitesse de déformation représentative doit être abordée. En effet, pour beaucoup d'auteurs [38, 37], la vitesse de déformation représentative est égale à  $\alpha$ , or, même si ces deux expressions sont fortement liées, cela n'entraîne pas une équivalence directe. Une notation plus appropriée pourrait s'écrire telle que :

$$\dot{\epsilon} = k \cdot \alpha \quad (1.54)$$

Kermouche *et al.* [21] montrent par exemple que le coefficient  $k$  est dépendant de la sensibilité à la vitesse de déformation  $m$  et de l'angle du cône  $\beta$  dans le cas de l'indentation de solides élasto-viscoplastiques. Nous étudierons plus précisément l'influence des propriétés mécaniques du matériau indenté sur la vitesse de déformation représentative dans le chapitre 2.

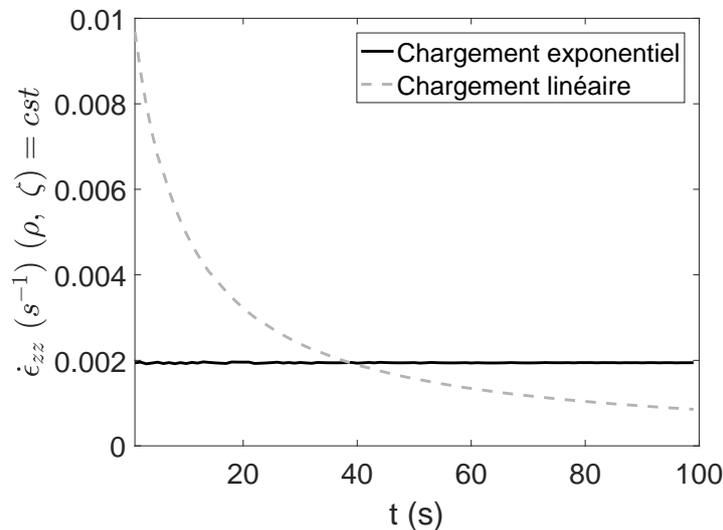


FIGURE 1.16 – Evolution de la vitesse de déformation aux coordonnées réduites  $\rho = r/a$  et  $\zeta = z/a$ , lors de l'indentation d'un solide élastique semi-infini par un cône rigide d'angle au sommet équivalent à une pointe Berkovich. Deux types de chargement en déplacement sont représentés.

### 2.3.2 Sensibilité à la vitesse de déformation

Nous avons vu qu'il était possible d'effectuer des procédures d'indentation garantissant une vitesse de déformation constante lors du chargement. L'obtention de paramètres viscoplastiques, tel que la sensibilité à la vitesse de déformation  $m = 1/n$  peut donc se faire en faisant varier  $\alpha$  et en mesurant la dureté à chaque essai.

**Cas des solides viscoplastiques** Pour un solide purement viscoplastique, l'évolution de la vitesse de déformation avec la contrainte peut s'exprimer par l'expression 1.24 définie en section 1.3.3 (p. 15).

La sensibilité à la vitesse de déformation pour l'indentation de solide viscoplastique  $m_v$  est

définie par [37, 39] :

$$m_v = \frac{d \ln(H)}{d \ln(\dot{\epsilon})} \quad (1.55)$$

La variation de la dureté est donc directement reliée à la variation de vitesse de déformation et, dans ce cas,  $m_v \approx m$ . L'utilisation de cette expression est valable pour des matériaux ayant un comportement mécanique de type Norton-Hoff que nous avons exprimé en section 1.3.3 (p. 15).

**Cas des solides élasto-viscoplastiques** Dans le cas des matériaux élasto-viscoplastiques – de type Bingham-Norton –, l'interprétation de la sensibilité à la vitesse de déformation en indentation n'est pas si directe. En effet, en fonction de la vitesse de sollicitation du matériau, une transition de comportement apparaît – de purement élastique, lorsque la vitesse de déformation tend vers l'infini à purement élastoplastique, lorsqu'elle tend vers 0 [39]. Kermouche *et al.* [39] proposent d'établir un nouveau terme, appelée sensibilité élastique-viscoplastique,  $m_{ev}$ , tel que :

$$m_{ev} = \frac{d \ln(\sigma_r)}{d \ln(\dot{\epsilon})} \quad (1.56)$$

Avec  $\sigma_r$  définie dans le cas de l'indentation d'un solide élastoplastique par un cône équivalent à une pointe Berkovich, tel que [39] :

$$\sigma_r = \frac{0.087H}{0.243 - 0.783H/E'} \quad (1.57)$$

En injectant l'équation 1.57 dans l'expression 1.56, nous avons  $m_v < m_{ev}$ . De plus, Kermouche *et al.* [39] montrent que la sensibilité élastique-viscoplastique ne peut pas être supérieure à  $m$ . Nous obtenons donc le classement suivant :

$$m > m_{ev} > m_v \quad (1.58)$$

Nécessairement, le paramètre  $m_{ev}$  est plus représentatif de la sensibilité à la vitesse de déformation  $m$  que le paramètre  $m_v$  dans le cas de l'indentation de solides élasto-viscoplastique. Nous préférons l'utilisation de ce paramètre dans le cas de l'indentation de polymères à l'état vitreux.

**Procédures expérimentales** L'obtention de la sensibilité à la vitesse de déformation  $m$  peut être réalisée en faisant varier la vitesse de déformation appliquée lors du chargement et en mesurant la dureté résultante. Ce type de procédure est couramment utilisé en indentation. Lucas *et al.* [37] trouvent une sensibilité à la vitesse de déformation, pour l'indium, très proche des valeurs obtenues par des essais de fluage uniaxiaux.

Plus récemment, des procédures de chargement incluant plusieurs segments à vitesses de déformation différentes appelés "strain rate jump" ont été développées par Maier *et al.* [40, 41]. Le principal avantage de cette méthode est de pouvoir acquérir trois valeurs de dureté en un seul chargement – voir figure 1.17.

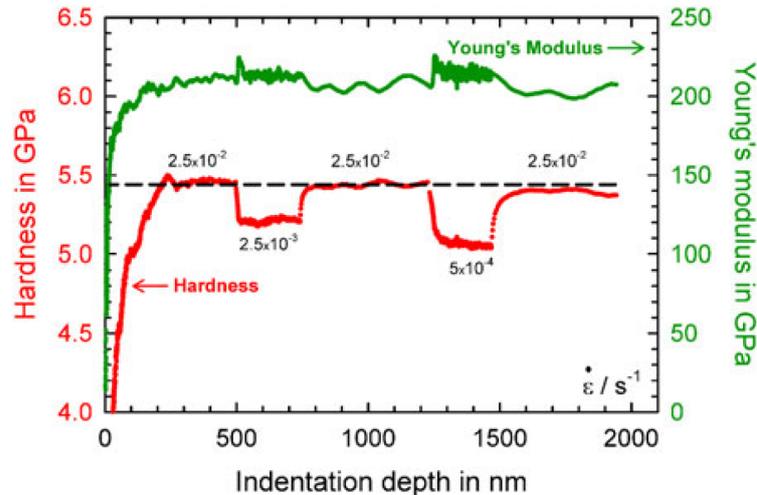


FIGURE 1.17 – Evolution de la dureté et du module d'élasticité lors d'un essai de nanoindentation de type "strain rate jump" [40].

### 2.3.3 Analyse dynamique (DMA)

L'analyse dynamique, appliquée à la caractérisation du comportement viscoélastique de matériaux, en indentation a été développée au travers du module CSM présenté section 2.2.3 (p. 21). Les premiers travaux sont réalisés par Loubet *et al.* [42] en 1995 et montrent qu'il est possible d'obtenir les paramètres viscoélastiques de polymères grâce à cette méthode. Par la suite, de nombreux travaux ont été réalisés, notamment par Herbert *et al.* [43, 44] qui s'attellent à définir les conditions de bonne exécution de la méthode [45]. Nous ne développerons pas davantage son application dans ce manuscrit.

### 2.3.4 Fluage

La première publication de ce type d'essai en indentation remonte à 1990 et a été réalisée par Mayo *et al.* [46] sur des nanophases de dioxyde de titane. Il a ensuite été repris par de nombreux auteurs, faisant de cette procédure la référence des essais de caractérisation de phénomènes visqueux [47, 48]. Ce succès est notamment dû à la facilité d'implémentation de la méthode sur les nanoindenteurs, qui sont – pour majorité – contrôlés en force et par conséquent permettent un asservissement plus précis de la charge appliquée sur la pointe.

Plus récemment, Phani *et al.* [49] ont appliqué cette méthode à haute température – jusqu'à 550 °C – de manière à caractériser l'énergie d'activation du fluage sur une plus grande plage de température.

**Cas des solides viscoplastiques** Dans le cas du fluage stationnaire défini par l'équation 1.24, il est possible de lier l'évolution de la contrainte d'écoulement – dureté – à la vitesse de déformation au travers de l'indice de viscoplasticité  $n$  et de l'énergie d'activation apparente  $Q$ . Lors d'un essai de fluage en indentation, la dureté diminue avec l'augmentation du temps de maintien de la force et par conséquent avec l'augmentation de la profondeur d'indentation – voir figure 1.18.b. Cet

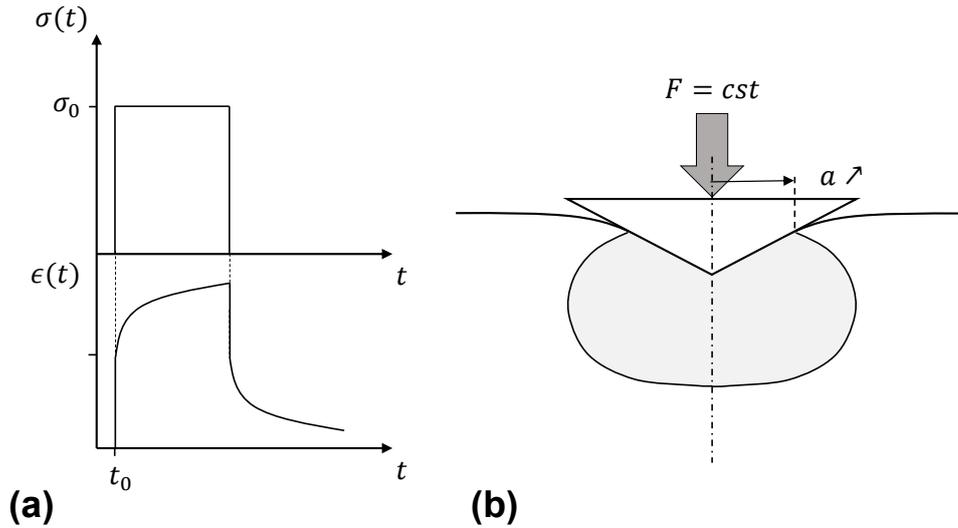


FIGURE 1.18 – Essai de fluage. (a) principe de l'essai uniaxial, la contrainte est maintenue constante et la déformation mesurée augmente. (b) principe de l'essai en indentation : la force est maintenue constante et l'augmentation du déplacement est mesurée.

essai permet donc d'obtenir la variation de contrainte en fonction de la variation de vitesse de déformation et de calculer le coefficient  $m = 1/n$  par l'équation 1.55.

Cependant, la principale hypothèse de cette interprétation concerne le caractère stationnaire du fluage en indentation. Or, les essais de fluage en indentation sont limités à des temps de maintien assez faibles – de l'ordre de quelques dizaines à quelques centaines de secondes – comparés aux essais de fluage uniaxiaux classiques, figure 1.18.a – temps de maintien de l'ordre de la centaine d'heures. Il est donc difficile dans le cas de l'indentation, où les gradients de déformation et de contrainte sont importants autour de la pointe, de considérer l'évolution de dureté comme stationnaire pour ces temps de maintien.

De plus, le fait que la pointe pénètre sans discontinuer dans le matériau entraîne la sollicitation d'un volume équivalent toujours plus important. Goodall *et al.* [50] font état de ces problèmes et conseillent la limitation de ce type d'essai à la caractérisation de matériaux ayant un taux de fluage primaire relativement faible par rapport au secondaire, à température ambiante. Ceci est par exemple le cas pour le plomb, l'étain ou l'indium.

Dans le cas des essais effectués à hautes températures –  $T > 0,5T_m$  –, le taux de déformation plastique lors de la phase de fluage stationnaire devient important par rapport à la phase primaire. En conséquence, les résultats obtenus à ces températures sont cohérents avec ceux provenant d'essais uniaxiaux [49].

**Cas des solides viscoélastiques linéaires** Findley [6] définit le fluage sous sollicitation uniaxiale d'un matériau viscoélastique linéaire par l'expression suivante :

$$\epsilon(t) = \int_{-\infty}^t J(t-t') \frac{\partial \sigma(t')}{\partial t'} dt' \quad (1.59)$$

Avec  $J(t)$  le module de fluage,  $\sigma(t)$  et  $\epsilon(t)$  la contrainte et la déformation uniaxiales, respectivement. La réponse du système pour un échelon de contrainte de type  $\sigma(t) = \Upsilon(t) \cdot \sigma_0$  avec  $\Upsilon(t)$  l'échelon unité, s'écrit alors simplement :

$$J(t) = \frac{\epsilon(t)}{\sigma_0} \quad (1.60)$$

Dans le cadre de l'indentation conique et pour un rayon de contact augmentant de façon monotone, l'évolution du déplacement s'écrit [51, 52] :

$$a^2(t) = \frac{1}{\pi \tan(\beta)} \int_{-\infty}^t \phi(t-t') \frac{\partial F(t')}{\partial t'} dt' \quad (1.61)$$

En supposant l'application d'un échelon de force  $-F(t) = \Upsilon(t) \cdot F_0$ , la fonction de fluage,  $\phi(t)$ , a pour expression [51, 53, 54] :

$$\phi(t) = \tan(\beta) \frac{A_c(t)}{F_0} \quad (1.62)$$

Nous remarquons qu'il n'y a pas d'équivalence directe entre l'équation 1.60 – définie de manière uniaxiale – et 1.62 – définie en indentation. En effet, durant la période de maintien à force constante, la pointe ne cesse de pénétrer dans le matériau. Ceci entraîne une augmentation de l'aire de contact et par conséquent une baisse de la pression moyenne. L'hypothèse de contrainte constante utilisée dans la formulation uniaxiale n'est donc pas respectée en indentation.

Pour ces raisons, dans la littérature, Tweedie *et al.* [54] ainsi que Yang *et al.* [55] proposent de définir la grandeur obtenue par l'équation 1.62 comme le module de fluage de contact.

### 2.3.5 Relaxation

La première étude portant sur l'essai de relaxation en indentation a été réalisée par LaFontaine *et al.* [56] en 1990. L'essai consiste à maintenir un rayon de contact constant entre la pointe et le solide indenté – voir figure 1.19.b. Pour ce faire, la méthode la plus classique est de maintenir constante la profondeur de pénétration,  $h$ , en considérant le rapport  $h/a$  défini par l'équation 1.27. Étant donné que ce rapport est exprimé dans le cadre de l'indentation d'un solide élastique, celui-ci devra être vérifié *a posteriori*.

L'utilisation de ce type d'essai ne s'est pas répandue, bien qu'un certain nombre d'auteurs y aient fait référence [57, 58, 59]. En effet, la majorité des nanoindenteurs sont contrôlés en force, ce qui facilite la mise en place d'essais de fluage au détriment des essais de relaxation.

Pourtant, nous démontrons analytiquement que l'essai de relaxation en indentation semble être une bonne alternative à l'essai de fluage dans la détermination des paramètres viscoélastiques.

**Cas des solides viscoélastiques linéaires** De la même manière que pour l'essai de fluage, la contrainte uniaxiale peut être exprimée en fonction du module de relaxation [6] :

$$\sigma(t) = \int_{-\infty}^t E(t-t') \frac{\partial \epsilon(t')}{\partial t'} dt' \quad (1.63)$$

Ainsi, pour un échelon de déformation  $\epsilon(t) = \Upsilon(t) \cdot \epsilon_0$  – le module de relaxation uniaxial,  $E(t)$

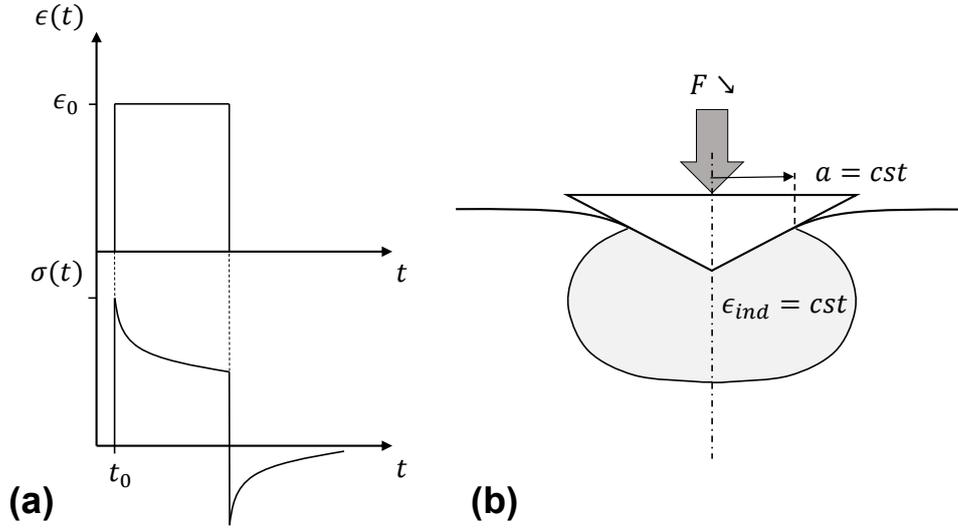


FIGURE 1.19 – Essai de relaxation. (a) principe de l'essai uniaxial, la déformation est maintenue constante et la contrainte mesurée diminue. (b) principe de l'essai en indentation : le rayon de contact est maintenu constant et la baisse d'effort est mesurée.

peut être calculé, tel que :

$$\sigma(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^t E(t-t')\delta(t') dt' \implies E(t) = \frac{\sigma(t)}{\epsilon_0} \quad (1.64)$$

Pour des raisons d'homogénéité avec les prochains développements, le module de relaxation en cisaillement,  $G = E/2(1 + \nu)$  défini par l'équation 1.6b, sera utilisé.

Dans le cadre de l'indentation conique, Ting [51] définit l'évolution de la force en fonction de la fonction de relaxation,  $\psi(t)$ , pour un rayon de contact augmentant de façon monotone :

$$F(t) = \pi \tan(\beta) \int_{-\infty}^t \psi(t-t') \frac{\partial a^2(t')}{\partial t'} dt' \quad (1.65)$$

L'application d'un échelon de déplacement  $-a(t) = \Upsilon(t).a_1$  nous permet alors d'écrire l'expression 1.65, telle que :

$$\frac{F(t)}{\pi a_1^2} = \tan(\beta) \int_{-\infty}^t \psi(t-t')\delta(t') dt' \quad (1.66)$$

Avec  $\delta(t)$  l'impulsion de Dirac.

Il est intéressant de noter que l'équation 1.66 est équivalente à l'expression 1.64 dans le cas d'un chargement échelon. La fonction de relaxation  $\psi(t)$  et, par extension, le module de relaxation en cisaillement  $G(t)$  sont donc équivalents et s'écrivent [51] :

$$G(t) = (1 - \nu(t)).\psi(t) = \frac{(1 - \nu) F(t)}{\tan(\beta) \pi a_1^2} \quad (1.67)$$

Ce résultat a également été développé par d'autres auteurs par la suite [60, 59, 61].

La déformation équivalente appliquée au solide est seulement dépendante de la géométrie de la pointe, dans le cas de pointes autosimilaires. Ainsi, l'essai de relaxation en indentation est équivalent à la relaxation uniaxiale – voir figure 1.19.a – pour la caractérisation de solides viscoélastiques linéaires [51]. De plus, nous avons vu en section 2.3.1 (p. 26) que le PGS est respecté, même lors d'un chargement contenant plusieurs segments à vitesses de déformation  $\alpha$  différentes – comme le cas des essais "strain rate jump" détaillés en section 2.3.2 (p. 28). Ainsi, l'essai de relaxation en indentation devrait respecter le PGS par morceau car, dans le cas d'un chargement échelon, nous passons de  $\alpha \rightarrow +\infty$  à  $\alpha = 0$ .

C'est pourquoi nous étudierons plus précisément ce type d'essais dans le chapitre 2.

## 2.4 Nanoindentation à très hautes températures

### 2.4.1 La course à la haute température

Les essais de nanoindentation à très hautes températures se sont développés à partir de 1995 au travers des études menées par Lucas *et al.* [62]. Leur système permettait d'effectuer des essais de  $-100$  °C à  $75$  °C. En 2000, le système de nanoindentation à pendule horizontal construit par MicroMaterials<sup>®</sup> fut équipé de systèmes de chauffage de la pointe et de l'échantillon indépendants permettant d'atteindre des températures de l'ordre de  $400$  à  $500$  °C [63]. En 2011, ce même système a permis d'atteindre  $750$  °C.

Plus récemment, un nouveau dispositif développé par Nanomechanics<sup>®</sup> permet d'accéder à des températures de l'ambiante jusqu'à  $800$  °C [49]. Enfin, les derniers développements de MicroMaterials<sup>®</sup> en 2017 ouvre la possibilité de réaliser des essais jusqu'à  $1000$  °C [64].

### 2.4.2 Systèmes de chauffage et dérive thermique

**Importance du contact isotherme** Comme nous le verrons par la suite, la problématique de la dérive thermique en nanoindentation est une des principales source d'erreur et celle-ci dépend essentiellement des gradients de température au sein du contact pointe - échantillon [65]. Le choix du système de chauffage est donc une étape très importante du fait de l'augmentation de la température et de la difficulté grandissante de maintenir un contact isotherme. Nous présentons ici les solutions apportées par les principaux acteurs de la nanoindentation à haute température.

**Chauffage de l'échantillon uniquement** L'utilisation d'une seule source de chaleur a été privilégiée par plusieurs fabricants de nanoindenteurs. Dans ce cas, seul l'échantillon est chauffé directement. Le principal avantage de cette technologie est sa simplicité d'utilisation car aucun système de chauffage n'est fixé à la pointe. Cependant comme nous l'avons fait remarquer plus haut, l'établissement d'un contact isotherme est primordial pour la bonne conduite des essais – d'autant plus à ceux effectués à hautes températures. Pour réaliser des essais fiables, deux fabricants ont proposés des technologies spécifiques.

CSM Instruments<sup>®</sup> – maintenant connu sous le nom de Anton Paar<sup>®</sup> – propose d'utiliser un système de référencement actif de la surface de l'échantillon fondé sur l'utilisation de deux pointes.

Une pointe sphérique vient en contact avec l'échantillon pour servir de référence et une pointe d'indentation permet d'effectuer les mesures. La boucle mécanique est alors grandement réduite ce qui limite la dérive en déplacement et augmente la raideur globale du système. Huang *et al.* [66] montrent que la dérive thermique est limitée pour des essais à 110 °C. Cependant, ce type d'essais ne permet pas de garantir un gradient homogène de température dans la zone du contact. La température de la pointe sera toujours inférieure à celle de l'échantillon même chauffée par conduction et convection.

Hysitron<sup>®</sup> – maintenant Bruker<sup>®</sup> – avait également développé un nanoindenteur avec un chauffage résistif unique, sous l'échantillon [67]. Dans ce cas, la gestion de la dérive était effectuée de manière passive en maintenant la pointe en contact avec l'échantillon pendant un certain temps – qui dépend de la température de réalisation de l'essai. Malgré ces efforts, la dérive est comprise entre 0,1 et 1  $nm.s^{-1}$  ce qui est relativement élevé pour la caractérisation de phénomène dépendant du temps comme le fluage ou la relaxation [67]. Un nouveau système de chauffage a alors été développé pour garantir une meilleure stabilité thermique au niveau de la zone d'indentation [68]. Ce système est présenté sur la figure 1.20.

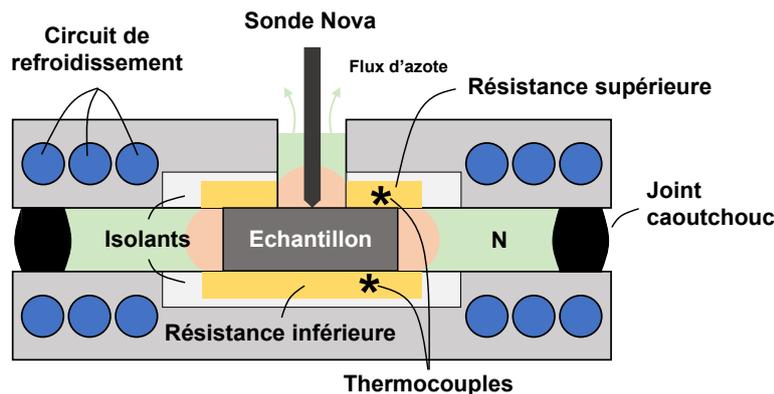


FIGURE 1.20 – Schéma de principe du nanoindenteur Ti950<sup>®</sup> développé par Bruker<sup>®</sup> – d'après [68].

L'échantillon est placé entre deux plaques résistives en céramique qui jouent le rôle de maintien et de chauffage. La plaque supérieure est percée d'un trou de diamètre 10 mm, de manière à laisser entrer la pointe du nanoindenteur au niveau de la surface supérieure de l'échantillon. Cette ouverture réduite joue le rôle de micro-four autour de la pointe ce qui permet de la chauffer par convection. La température de l'échantillon est contrôlée sur ses faces supérieure et inférieure mais la température de la pointe n'est pas mesurée. Ce système peut atteindre des températures jusqu'à 800 °C. L'homogénéité de la température autour de la zone d'indentation est améliorée mais la température d'équilibre au niveau du contact ne peut être connue [65].

**Chauffage de la pointe et de l'échantillon indépendamment** L'utilisation de deux systèmes de chauffage indépendants est préconisé par Everitt *et al.* [65]. Ici encore, plusieurs fabricants

ont proposés des technologies pour mettre en œuvre ce principe. La grande majorité repose sur des systèmes de chauffage résistifs couplés à un refroidissement à l'eau. Les systèmes équipés de cette technologie sont développés par MicroMaterials<sup>®</sup> [63], Nanomechanics<sup>®</sup> – maintenant KLA Tencor<sup>®</sup> – [49] et Alemnis<sup>®</sup> [69].

Anton Paar<sup>®</sup> et Bruker<sup>®</sup> ont récemment modifié leur nanoindenteur pour insérer des systèmes de chauffage indépendants mais ceux-ci n'ont pas encore fait l'objet de publications.

La technique développée par Anton Paar<sup>®</sup> – contrairement aux autres constructeurs – se fonde sur le chauffage par infrarouge. Ce système est ingénieux car aucun contact n'existe entre la source de chaleur et le système de nanoindentation : deux lampes à quartz éclairent les pointes et une troisième éclaire l'échantillon par le dessous. Leur système étant confiné, un bain infrarouge relativement homogène est réalisé autour de la zone d'indentation, ce qui promet une bonne stabilité thermique de l'ensemble.

Ce type de montage permet de modifier la température de chaque partie pour atteindre un équilibre thermique au niveau du contact [70, 65, 49]. Deux méthodes existent pour effectuer ce réglage. La première se fonde sur la mesure de la dérive thermique : la température de l'échantillon est fixée pendant que celle de la pointe est modifiée, l'équilibre thermique au niveau du contact est considéré atteint lorsque la dérive est minimale.

La seconde technique se fonde sur la mesure de la température au niveau de la pointe. Sa taille étant très inférieure à celle de l'échantillon, son inertie thermique est faible et la température mesurée à l'arrière de la pointe aura tendance à changer en fonction de l'écart relatif de température des deux solides en contact. La méthode consiste donc à appliquer une puissance de chauffage constante à la pointe et d'observer pour quels couples de températures, la température de la pointe ne varie pas au moment du contact avec l'échantillon.

Dans tous les cas, la température au niveau du contact est considérée comme égale à celle mesurée par le thermocouple positionné sur la surface de l'échantillon et non celui à l'arrière de la pointe.

### 2.4.3 L'échantillon

**Oxydation** L'oxydation de l'échantillon est une problématique importante dans le cadre de la caractérisation des propriétés mécaniques proche de la surface d'un matériau. Ce phénomène est d'autant plus présent à haute température et doit être considéré. Pour garantir l'intégrité de la surface du matériau à hautes températures, plusieurs solutions existent. La première solution est d'effectuer les essais dans un environnement inerte – composé d'argon ou d'azote hautement pur. Cette solution est assez pratique d'utilisation car il suffit d'appliquer une source de gaz au niveau de la zone d'indentation de manière à éliminer un maximum d'oxygène. Celle-ci peut suffire dans le cas de matériaux peu réactifs à l'oxygène et pour des températures n'excédant pas 400 °C mais montre ses limites pour des températures très élevées et des matériaux fortement réactifs. Wheeler *et al.* [71] montrent que dans le cas du tungsten, un maintien de 1 h à 700 °C sous atmosphère d'argon, une forte oxydation de la surface intervient.

La seconde solution pour limiter la dégradation de l'état de surface est alors d'effectuer les

essais sous vide à  $10^{-6}$  mbar. Dans ce cas, des résultats très probants ont été observés sur différents matériaux – tungsten à 700 °C pendant environ 100 h [71] et super alliage de nickel à 630 °C pendant 48 h [72].

Le système Bruker Ti950<sup>®</sup> que nous utilisons ne possède pas de chambre à vide. Une circulation d'azote hautement pur est effectuée dans la zone d'indentation, le flux de gaz est expulsé au niveau du micro-four – comme indiqué sur la figure 1.20.

**Maintien en position** Le positionnement et le maintien de l'échantillon à température ambiante est souvent réalisé par simple collage à la colle cyano-acrylate, cependant, avec l'augmentation de la température cette solution n'est pas toujours adaptée ou, du moins, requiert une attention particulière. Le système MicroMaterials<sup>®</sup> préconise de coller les échantillons à l'aide d'un ciment céramique permettant d'atteindre des températures jusqu'à 1000 °C [73]. Les systèmes Nanomechanics<sup>®</sup>, Anton Paar<sup>®</sup> et Bruker<sup>®</sup> quant à eux maintiennent l'échantillon mécaniquement à l'aide d'une bride [71, 68]. L'utilisation d'une bride se révèle plus pratique d'utilisation mais nécessite de garantir une pression constante sur l'échantillon – même à température élevée. Dans le cas du système Bruker, la pression est maintenue à l'aide de brides flexibles s'appuyant sur la plaque supérieure.

#### 2.4.4 Les matériaux de la pointe

**Propriétés mécaniques** La connaissance de la dureté ainsi que du module d'élasticité du matériau qui constitue la pointe est primordiale pour la bonne réalisation des essais d'indentation. Cette question est d'autant plus importante à hautes températures où les propriétés mécaniques du matériau peuvent être considérablement réduites.

Dans le cas de l'indentation, le principal critère réside dans le rapport de dureté de la pointe sur celle du matériau à caractériser. Il est préconisé que ce rapport soit supérieur à 2 – voire 10 – pour limiter tout effet d'endommagement mécanique de la pointe [74]. En ce sens, le tableau 1.4 présente l'évolution de la dureté Vickers en fonction de la température, de différents matériaux susceptibles d'être utilisés en tant que pointe. Le diamant est, de loin, la meilleure option jusqu'aux alentours de 1000 °C – en terme de dureté. Le nitrure de bore cubique (cBN) est le second matériau le plus dur après le diamant, viennent ensuite le carbure de tungstène (WC) et le saphir ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ). Dans tous les cas, la dureté des matériaux présentés diminue grandement avec la température – cette baisse pouvant aller jusqu'à plus de 50 % pour le nitrure de bore cubique ou le saphir entre l'ambiante et 700 °C.

Néanmoins, les propriétés mécaniques de la pointe ne sont pas les seuls paramètres à étudier dans le choix du matériau. L'oxydation ainsi que la réactivité chimique de la pointe avec le matériau indenté sont des paramètres tout aussi importants.

TABLE 1.4 – Ordre de grandeur des duretés des matériaux potentiellement utilisés pour la fabrication des pointes d'indentation, à différentes températures [74].

Dureté Vickers (GPa)	diamant	cBN	WC	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
25 °C	100	50	25	20
300 °C	92	38	17	16
700 °C	75	20	13	8

**Oxydation** L'oxydation est un phénomène chimique très significatif dans la durée de vie des pointes d'indentation. En effet, la couche d'oxyde créée en surface est nettement moins dure que le matériau originel et a tendance à s'émousser rapidement en condition de contacts répétés. Or, la géométrie de la pointe est un critère déterminant dans l'obtention fiable des propriétés mécaniques du matériau indenté, il est donc très important de préserver cette géométrie intacte au cours des essais.

Le tableau 1.5 reprend les températures auxquelles ont lieu les transformations chimiques, à l'air libre, des matériaux présentés dans le paragraphe précédent. Le diamant, en présence d'oxygène, est donc très vite inutilisable – à partir de 400 °C – malgré ses qualités mécaniques. Le carbure de tungstène s'oxyde à une température un peu plus élevée mais il reste inutilisable à des températures supérieures à 500 °C. Le nitrure de bore cubique, quant à lui, s'oxyde à 700 °C en présence d'oxygène. Il reste un bon candidat pour la caractérisation des matériaux à des températures inférieures. Enfin le saphir est inerte, il est donc parfaitement adapté à l'indentation à très haute température, en dépit de sa dureté plus faible.

Effectuer les indentations sous vide peut néanmoins limiter l'oxydation de la pointe, quel que soit le matériau utilisé.

TABLE 1.5 – Température au delà de laquelle une oxydation se produit à l'air [74].

Matériaux	Comportement en présence d'oxygène
diamant	Forme du CO et du CO <sub>2</sub> > 400 °C
cBN	Forme une couche de B <sub>2</sub> O <sub>3</sub> > 700 °C
WC	Forme une couche de WO <sub>3</sub> > 500 °C
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Inerte

**Réactivité chimique** Finalement, le dernier risque lié à l'indentation en température réside dans la réactivité chimique du matériau de la pointe avec l'échantillon. L'indentation d'un acier par une pointe en diamant en est un très bon exemple. Dans ce cas, le carbone de la pointe diffuse dans l'acier pour former des carbures de fer Fe<sub>3</sub>C – voir figure 1.21 où la pointe en diamant a totalement diffusé dans l'échantillon indenté. D'autres exemples de réactivités sont données par Wheeler *et al.* [74], il est donc important de vérifier la compatibilité des couples de matériaux avant d'effectuer un essai en température.

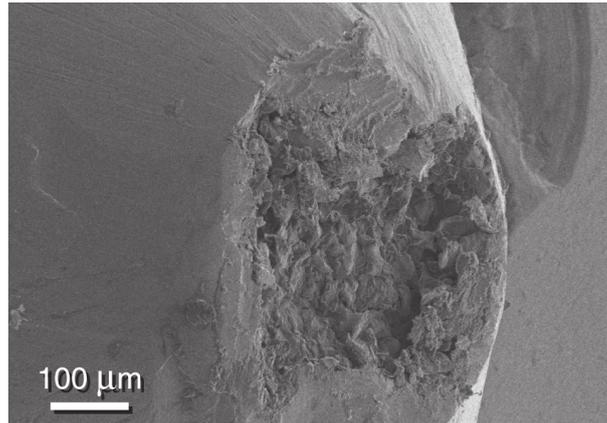


FIGURE 1.21 – Image MEB d'une pointe en diamant après une indentation effectuée sur un acier à 500 °C [74].

### 3 Orientations de recherche

Le but de ce travail est d'améliorer la compréhension des résultats d'essais de nanoindentation effectués sur des matériaux ayant des propriétés dépendantes du temps. Après avoir défini les différents paramètres viscoélastiques et viscoplastiques des lois de comportement uniaxiales ainsi que les différents types d'essais réalisables en indentation, nous avons pu mettre en lumière, analytiquement, l'intérêt de l'**essai de relaxation**.

Nous étudierons plus en détail ce type d'essai dans les chapitres 2 et 4 de façon analytique via un modèle viscoélastique linéaire et expérimentale via l'indentation de différents polymères. Les principales questions qui seront posées porteront sur :

- les limites expérimentales – notamment sur l'asservissement et l'estimation de l'aire de contact réelle ;
- l'influence de la cinétique de chargement sur les propriétés en relaxation mesurées ;
- la comparaison des résultats de nanoindentation et d'essais macroscopiques ;
- la possibilité de réaliser des essais de relaxation en température ;
- le choix de la méthode permettant de garantir une aire de contact constante.

Dans le cas des métaux, nous avons rapidement défini les notions de plasticité et de viscoplasticité ainsi que leurs origines physiques. De plus, nous avons effectué une revue récente des applications et limites de la nanoindentation instrumentée à chaud, qui nous a permis de cerner ses domaines d'utilisation. Il est clair que les phénomènes viscoplastiques deviennent prépondérants au-delà de  $0,5 T_m$ , c'est pourquoi nous élargirons l'utilisation de l'essai de relaxation à l'indentation d'un alliage d'aluminium à haute température dans le chapitre 3.

Comme nous l'avons exprimé en section 1.3.3 (p. 13), les mécanismes de fluage ne sont pas les seuls à apparaître à ces températures : des changements microstructuraux – notamment la **recristallisation statique** – peuvent s'activer. Nous étudierons plus en détail au chapitre 5 la recristallisation statique d'un alliage d'aluminium à haute température via l'essai de nanoindentation instrumentée.

## Chapitre 2

# L'essai de relaxation en indentation : Études théorique et expérimentale

### 1 Modèle analytique viscoélastique linéaire – VEL –

Suite à la revue des différents essais mécaniques permettant d'obtenir les propriétés dépendantes du temps en nanoindentation instrumentée, nous avons pu mettre en valeur l'intérêt de l'essai de relaxation. Les expressions analytiques reprises de la littérature et développées en section 2.3.5 du chapitre 1 (p. 31) concernent un chargement échelon, ce qui n'est pas représentatif des conditions expérimentales. Dans cette partie nous nous intéressons à l'influence de la cinétique de chargement sur la mesure effectuée en relaxation – de manière analytique – au travers d'un modèle de Maxwell généralisé. Nous étudierons le cas du chargement à vitesse de déplacement constant et celui à vitesse de déformation constante.

#### 1.1 Cas d'un chargement à vitesse de déplacement constante

##### 1.1.1 Calcul analytique

Nous pouvons définir le cas d'un chargement à vitesse de déplacement constante suivi d'une période de maintien à déplacement constant tel que :

$$h(t) = r_1 t + r_1(t_1 - t)\Upsilon(t - t_1) \quad (2.1)$$

Avec  $r_1 = h_1/t_1$ , la vitesse de déplacement.  $t_1$  correspond au temps à partir duquel le maintien du déplacement à une valeur  $h_1$  commence.

Nous écrivons l'expression 2.1 en fonction du rayon de contact  $a(t)$  en utilisant l'équation 1.27. Nous pouvons alors exprimer l'évolution de la force au travers de l'équation 1.65 :

$$F(t) = \pi \tan(\beta) \left(\frac{a}{h}\right)^2 \int_{-\infty}^t \psi(t-t') \frac{\partial}{\partial t'} \left( r_1 t' + r_1(t_1 - t')\Upsilon(t' - t_1) \right)^2 dt' \quad (2.2)$$

La fonction de relaxation,  $\psi(t)$  est équivalente au module de relaxation,  $G(t)$ , selon l'équation 1.67. Nous pouvons alors écrire l'expression 2.2 dans le cas de l'indentation d'un solide viscoélastique

linéaire de type Maxwell généralisé – défini par l'équation 1.9 :

$$F(t) = \frac{\pi \tan(\beta)}{1 - \nu} \left(\frac{a}{h}\right)^2 \times \left[ G_0 h_1^2 + 2 \sum_{i=1}^n G_i r_1^2 \lambda_i \exp\left(-\frac{t-t_1}{\lambda_i}\right) \left[ \frac{h_1}{r_1} + \lambda_i \left( \exp\left(-\frac{h_1}{r_1 \lambda_i}\right) - 1 \right) \right] \right] \quad (2.3)$$

### 1.1.2 Mise en évidence d'un faux effet d'échelle

L'équation 2.3 nous indique que le module de relaxation mesuré lors du maintien à déplacement constant – suite à un chargement à une vitesse de déplacement constante  $r_1$  – est dépendant de la profondeur d'indentation  $h_1$ . En effet, le terme entre crochets dans la somme est dépendant du terme  $h_1/r_1$ . Afin d'illustrer ce phénomène nous avons effectué un calcul analytique à partir de l'expression 2.3 et d'un modèle de Maxwell généralisé à trois branches détaillé dans le tableau 2.1. La figure 2.1.b représente le module de relaxation  $G(t)$  mesuré au travers des équations 2.3 et 1.67 sous un chargement illustré figure 2.1.a. La durée de chargement  $t_{1i}$  y sont notés pour chaque profondeur de pénétration. Dans la suite du développement nous introduisons la notion de temps de maintien tel que  $t' = t - t_1$  – voir figure 2.1.b.

TABLE 2.1 – Paramètres du modèle de Maxwell généralisé à deux temps de relaxation utilisé en exemple dans les sections 1.1 et 1.2 (p. 39 et 41).

i	0	1	2
$G_i$ (GPa)	0,40	0,16	0,10
$\lambda_i$ (s)	/	1	100

Nous pouvons noter la diminution du module de relaxation – particulièrement aux temps courts – avec l'augmentation de la profondeur de pénétration. Ce phénomène est appelé **faux effet d'échelle**, car la variation du module de relaxation mesuré n'est due qu'à l'utilisation d'un type de chargement inadapté. Il est donc déconseillé d'utiliser une vitesse de déplacement constante lors du chargement pour caractériser un potentiel effet d'échelle en relaxation.

Cependant, nous pouvons réécrire l'équation 2.3 avec  $t_1 = h_1/r_1$  telle que :

$$F(t) = \frac{\pi \tan(\beta)}{1 - \nu} \left(\frac{a}{h}\right)^2 h_1^2 \times \left[ G_0 + 2 \sum_{i=1}^n G_i \left(\frac{1}{t_1}\right)^2 \lambda_i \exp\left(-\frac{t-t_1}{\lambda_i}\right) \left[ t_1 + \lambda_i \left( \exp\left(-\frac{t_1}{\lambda_i}\right) - 1 \right) \right] \right] \quad (2.4)$$

L'expression 2.4 est définie pour  $t \in [t_1, +\infty)$ . Le terme entre crochets de l'équation 2.4 n'est alors plus dépendant que du temps de chargement,  $t_1$ . Afin de garantir une réponse en relaxation indépendante de la profondeur de pénétration, la durée de chargement doit rester constante entre les différents essais. De plus, le module de relaxation **mesuré** est d'autant plus proche du comportement **intrinsèque** au matériau que la durée de chargement est court – pour  $t_1 \rightarrow 0$  nous retrouvons l'expression 1.67 (p. 32).

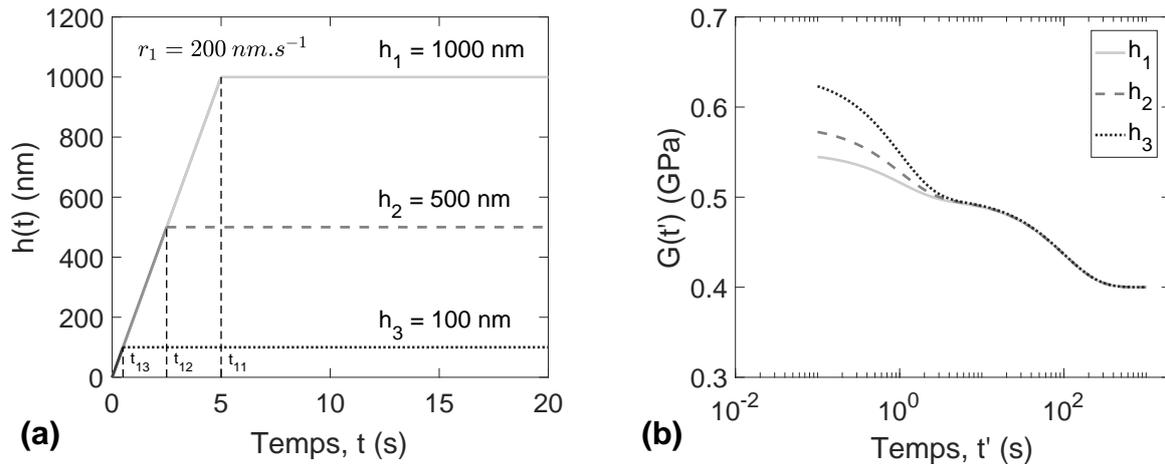


FIGURE 2.1 – Module de relaxation obtenu via les équations 2.3 et 1.67 pour des chargements à une vitesse de déplacement constante et différentes profondeur de pénétration. (a) Cinétiques de chargement utilisées ; (b) modules de relaxation obtenus.

Nous pouvons également interpréter l'équation 2.4 en terme de vitesse de déformation  $-\dot{h}/h = 1/t_1$ . Un chargement à temps constant est donc équivalent à une vitesse de déformation en fin de chargement identique pour chaque essai. Nous retrouvons ici l'importance de la vitesse de déformation dans la caractérisation mécanique de solides viscoélastiques. Ce type de chargement est donc valide dans le cadre de l'indentation de solides viscoélastiques linéaires si nous respectons la condition énoncée précédemment.

En revanche, nous avons vu en section 2.3.1 du chapitre 1 (p. 26) que le chargement à vitesse de déplacement constante entraîne une vitesse de déformation non constante sur l'intégralité de la pénétration – voir figure 1.16 (p. 27). Dans le cas de l'étude de matériaux viscoélastiques linéaires, l'histoire de chargement n'a pas d'influence sur le comportement en relaxation mesuré – seule la vitesse de déformation en fin de chargement est significative. Cependant, une attention particulière doit être portée à l'utilisation de ce type de méthode dans le cas de comportements mécaniques affectés par l'histoire de chargement. C'est pourquoi nous étudierons par la suite le chargement à vitesse de déformation constante qui présente l'avantage de solliciter le matériau avec un temps caractéristique constant lors du chargement.

## 1.2 Cas d'un chargement à vitesse de déformation constante

### 1.2.1 Calcul analytique

En reprenant l'expression 1.52, nous pouvons écrire – comme dans la section 2.3.1 du chapitre 1 (p. 26) – l'évolution de la profondeur de pénétration avec le temps tel que  $h(t) = h_{ini} \exp(\alpha t)$ . Nous utilisons la relation 1.27 pour l'introduire dans l'équation 1.65 de la même manière que dans la section 1.1 (p. 39) et obtenir l'évolution de la force lors d'un chargement exponentiel :

$$F(t) = \frac{\pi \tan(\beta)}{1 - \nu} \left(\frac{a}{h}\right)^2 \left[ (h^2(t) - h_{ini}^2) G_0 + \sum_{i=1}^n \frac{2\alpha\lambda_i}{2\alpha\lambda_i + 1} G_i \left( h^2(t) - h_{ini}^2 \exp\left(\frac{-t}{\lambda_i}\right) \right) \right] \quad (2.5)$$

Nous faisons l'hypothèse que  $h_{ini}$  est très petit devant  $h(t)$  et pouvons écrire l'équation proposée par Kermouche *et al.* [36] :

$$F(t) = \frac{\pi \tan(\beta)}{1 - \nu} \left(\frac{a}{h}\right)^2 h^2(t) \left(G_0 + \sum_{i=1}^n \frac{2\alpha\lambda_i}{2\alpha\lambda_i + 1} G_i\right) \quad (2.6)$$

Le cas du chargement exponentiel suivi d'un maintien à profondeur de pénétration constante est, quant à lui, exprimé par l'expression du déplacement :

$$h(t) = h_{ini} \exp(\alpha t) + \Upsilon(t - t_1)[h_{ini} \exp(\alpha t_1) - h_{ini} \exp(\alpha t)] \quad (2.7)$$

En insérant l'équation 2.7 dans l'équation 1.65, nous obtenons :

$$F(t) = \frac{\pi \tan(\beta)}{1 - \nu} \left(\frac{a}{h}\right)^2 h_1^2 \left(G_0 + \sum_{i=1}^n \frac{2\alpha\lambda_i}{2\alpha\lambda_i + 1} G_i \exp\left(-\frac{t - t_1}{\lambda_i}\right)\right) \quad (2.8)$$

Là encore, l'expression 2.8 est définie pour  $t \in [t_1, +\infty)$ . Aucun des termes entre parenthèses de l'équation 2.8 ne dépend de la profondeur de pénétration, ce qui signifie que la mesure du comportement en relaxation suite à un chargement à vitesse de déformation constante est indépendante de la profondeur d'indentation. La figure 2.2 illustre ce propos. Les modules de relaxation mesurés – voir figure 2.2.b – sont obtenus à partir du modèle détaillé dans le tableau 2.1 et des équations 2.8 et 1.67.

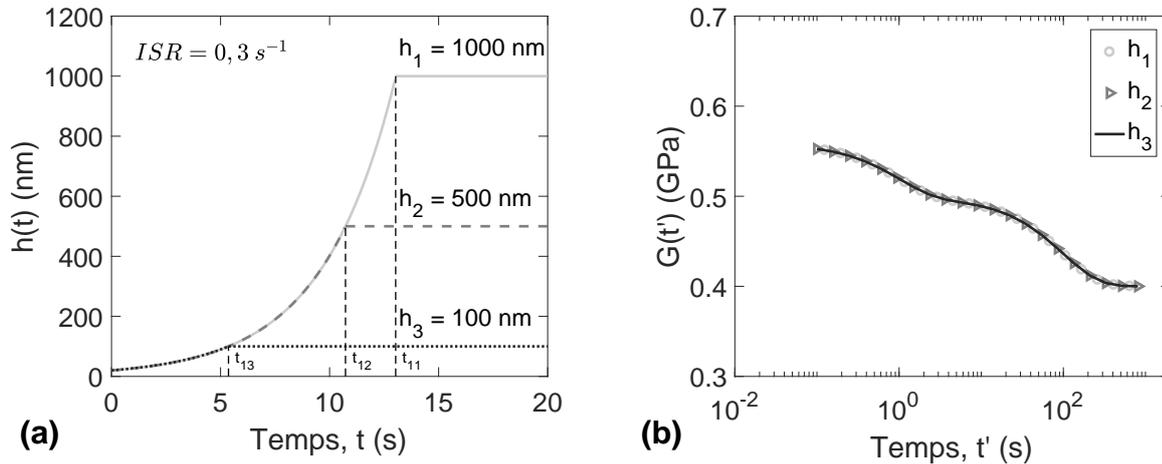


FIGURE 2.2 – Module de relaxation obtenu via les équations 2.8 et 1.67 pour des chargements à une vitesse de déformation constante et différentes profondeur de pénétration. (a) Cinétiques de chargement utilisées; (b) modules de relaxation obtenus.

### 1.2.2 Fonction d'atténuation

La vitesse de déformation lors du chargement joue un rôle dans l'atténuation de la mesure en relaxation. Nous pouvons caractériser cette atténuation telle que :

$$f_a(\alpha, \lambda_i) = \frac{2\alpha\lambda_i}{2\alpha\lambda_i + 1} \quad (2.9)$$

De la même manière que pour un chargement à déplacement constant, le module de relaxation mesuré est d'autant plus proche du comportement intrinsèque du matériau que la vitesse de déformation est rapide –  $f_a(\alpha, \lambda_i) \xrightarrow{\alpha \rightarrow +\infty} 1$  et nous retrouvons l'expression 1.67 [36].

La figure 2.3 illustre l'effet de la vitesse de déformation sur la caractérisation du spectre de relaxation – ou contribution viscoélastique – défini en section 1.2.3 du chapitre 1 (p. 9). Les approximations du premier ordre des spectres de relaxation sont représentés pour deux vitesses de déformation,  $\alpha_1$  et  $\alpha_2$ , et comparés au spectre nominal, obtenus en considérant un chargement échelon – voir figure 2.3.b. La fonction d'atténuation est décrite selon le paramètre adimensionné  $\alpha.t'$  qui correspond au produit de la vitesse de déformation avec le temps de relaxation considéré – voir figure 2.3. Nous obtenons une transition entre une atténuation maximum pour  $\alpha.t' \rightarrow 0$  et minimum pour  $\alpha.t' \rightarrow +\infty$ . Les symboles losanges et carrés représentent les temps de relaxation,  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$  définis dans le tableau 2.1, respectivement.

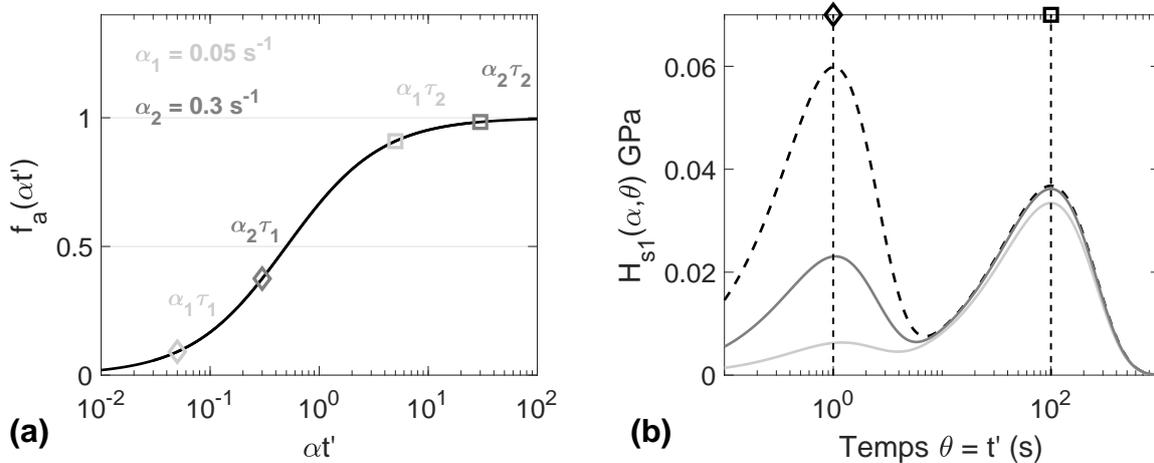


FIGURE 2.3 – Calculs analytiques de l'effet de la vitesse de déformation lors du chargement sur la mesure du module de relaxation : (a) fonction d'atténuation  $f_a$  en fonction du paramètre adimensionné  $\alpha.t'$  – calculé à partir de l'expression 2.9 –; (b) approximation du premier ordre du spectre de relaxation – calculé par l'équation 1.13 – du modèle défini dans le tableau 2.1. La courbe noire en pointillé représente le spectre de relaxation nominal, les courbes pleines représentent les spectres obtenus pour des vitesses de déformation  $\alpha_1 = 0,05 \text{ s}^{-1}$  – gris clair – et  $\alpha_2 = 0,3 \text{ s}^{-1}$  – gris foncé. Les symboles  $\diamond$  et  $\square$  représentent les temps de relaxation  $\lambda_1$  et  $\lambda_2$ , respectivement.

Nous pouvons donc conclure que la caractérisation des temps de relaxation courts requiert une vitesse de déformation lors du chargement importante. De ce fait, nous pouvons mettre en évidence un seuil limite en-deçà duquel la contribution viscoélastique intrinsèque du matériau ne sera pas

correctement quantifiée :  $\alpha\lambda_i > 10$  pour obtenir 95% de la contribution viscoélastique au temps  $\lambda_i$ .

## 2 Méthodes expérimentales

Après avoir défini analytiquement les paramètres importants pour la réalisation d'essais de relaxation représentatifs du comportement des matériaux étudiés, nous présentons dans cette section le développement des méthodes utilisées lors de notre étude expérimentale.

### 2.1 Dispositif expérimental

#### 2.1.1 SA2<sup>®</sup>

Nous disposons au sein du LTDS d'un nanoindenteur SA2<sup>®</sup> de la société MTS – maintenant KLA Tencor, Milpitas, Californie – permettant d'effectuer des essais d'indentation, à température ambiante, avec une très bonne résolution. Celui-ci est équipé d'une tête DCM<sup>1</sup> qui permet de réaliser des mesures de raideur en continu grâce au mode CSM. Le système est contrôlé en force, avec une charge maximum de 10 mN et une résolution de 1 nN. Le déplacement maximum est de l'ordre de 8 à 10  $\mu\text{m}$ , mesuré avec une résolution de 0,2 pm.

### 2.2 Matériaux

#### 2.2.1 Polyméthacrylate de méthyle – PMMA –

Le PMMA est un polymère thermoplastique transparent à l'état vitreux à température ambiante. Sa température de transition vitreuse a été estimée à 143 °C à 30 Hz par mesure DMA. Son module d'élasticité à température ambiante est  $E' = 3,8$  GPa à 30 Hz et son coefficient de Poisson,  $\nu = 0,37$  [75]. Les échantillons sont découpés dans une plaque d'épaisseur 4 mm provenant du commerce – Altuglass<sup>®</sup>.

Les états de surface pour chacun des échantillons sont de qualité optique. Une mesure de topographie a été effectuée avec le mode d'imagerie de l'indenteur Ti950<sup>®</sup> – SPM<sup>2</sup> – sur un échantillon de PMMA. L'écart moyen arithmétique mesuré,  $R_a$ , est de 1,3 nm.

#### 2.2.2 Élastomère

L'élastomère étudié a été fourni par Clémence Fradet, en thèse au Lamé et au CERMEL. C'est un élastomère chargé en noir de carbone et en nanoparticules de silice dans une matrice fluoroélastomère. Ce dernier est vulcanisé au peroxyde. Sa matrice fluorocarbonée lui offre une très bonne résistance à la température et aux produits chimiques. La figure 2.4 est une image de microscopie en transmission de l'élastomère : la matrice est en nuance de gris clair, les agrégats de noir de carbone sont les particules circulaires de taille comprise entre 300 et 800 nm et les nanoparticules de silice forment un réseau relativement homogène autour de ces agrégats.

---

1. DCM pour "Dynamic Contact Module" – Module dynamique de contact –

2. SPM pour "Scanning Probe Microscopy" – Imagerie par contact pointe-échantillon –

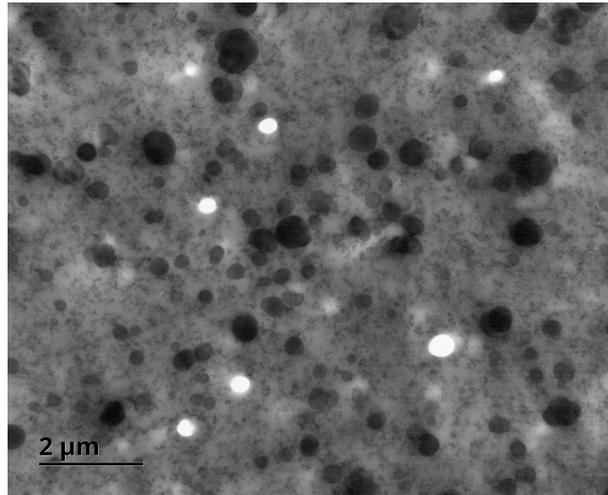


FIGURE 2.4 – Image par microscopie électronique en transmission de l'élastomère étudié.

Sa température de transition vitreuse – mesurée par calorimétrie différentielle à balayage, DSC<sup>3</sup> – est de  $-17\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Son module de conservation  $E'$  à température ambiante est de 15 MPa mesuré par DMA à 1 Hz et 0,01 % de déformation. Nous considérons l'élastomère comme un solide incompressible avec un coefficient de Poisson,  $\nu = 0,5$ .

## 2.3 Procédures expérimentales

Les procédures expérimentales ont été développées pour servir deux buts :

- Le premier est d'attester les observations faites au travers du modèle analytique détaillé dans les sections 1.1 (p. 39) et 1.2 (p. 41), à savoir la mise en évidence d'un faux effet d'échelle dans le cas d'un chargement à vitesse de déplacement constante et l'établissement d'une fonction d'atténuation dans le cas d'un chargement à vitesse de déformation constante. Ces essais seront réalisés sur du PMMA car il présente l'intérêt d'être homogène à l'échelle étudiée ainsi que d'avoir un comportement mécanique dépendant du temps à température ambiante.
- Le second est de prouver la capacité de l'essai d'indentation à caractériser des propriétés mécaniques cohérentes avec celles déterminées à l'échelle macroscopique. Ces essais seront réalisés sur PMMA et élastomère à température ambiante. Une comparaison systématique des résultats obtenus avec la littérature est réalisée.

### 2.3.1 Types de chargement

Les différents types de chargement utilisés sont recensés dans le tableau 2.2. Dans le cas des essais effectués avec le SA2<sup>®</sup>, la vitesse de déformation est imposée en effort, telle que  $\dot{F}/F$ . Cependant, pour des raisons d'homogénéisation toutes les valeurs de vitesse de déformation sont notées avec le formalisme  $\dot{h}/h$ . Pour tous nos essais, nous retrouvons bien la relation 1.53 – définie par Lucas *et al.* [37].

3. DSC pour "Differential Scanning Calorimetry"

TABLE 2.2 – Procédures expérimentales développées pour les essais d'indentation à température ambiante.  $h_1$  correspond à la profondeur de maintien.

Temp. 22 °C		Linéaire ( $r_1 = cst$ )		Exponentiel ( $\alpha = cst$ )	
Indenteurs	Matériaux	Cinétiques (mN.s <sup>-1</sup> )	$h_1$ (nm)	Cinétiques (s <sup>-1</sup> )	$h_1$ (nm)
SA2 <sup>®</sup>	PMMA	0,45	1000	0,0025 / 0,005	1000
			500	0,01 / 0,025 0,05 / 0,15	500
SA2 <sup>®</sup>	Élastomère	×	×	0,002 / 0,006 0,015 / 0,09 0,36	2000

La figure 2.5 représente un exemple de procédure de chargement à vitesse de déformation constante suivi d'un maintien à déplacement constant pendant 600 s.

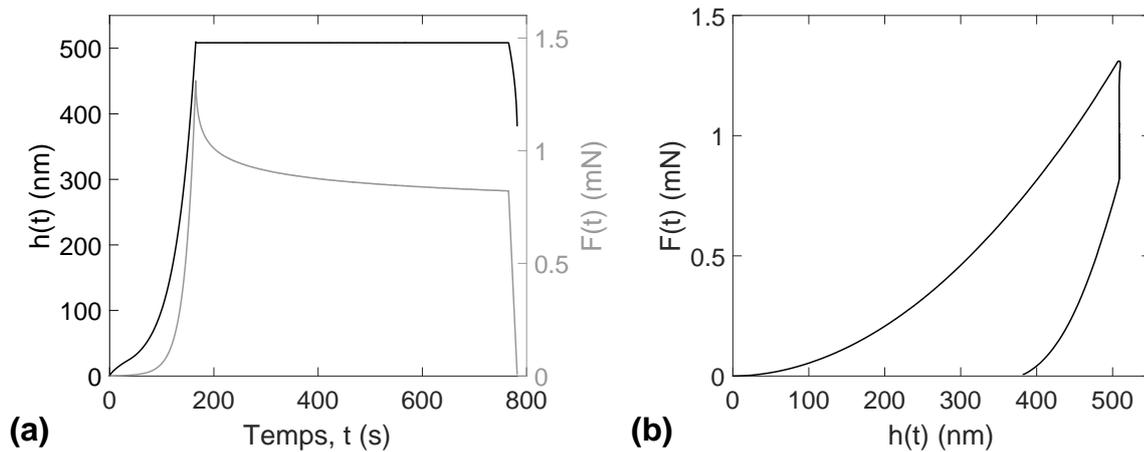


FIGURE 2.5 – Exemple de procédure de chargement sur du PMMA avec une vitesse de déformation  $\dot{h}/h = 0,025 \text{ s}^{-1}$  : Courbe de force et de déplacement en fonction du temps (a) et courbe classique force-déplacement (b).

**Vitesse de déformation constante** Les essais à vitesse de déformation constante sont techniquement plus difficiles à réaliser en raison de la fonction à asservir –  $F(t) = F_{ini} \exp(2\alpha.t)$ . En effet, la vitesse d'approche – lorsque la pointe n'est pas entrée en contact avec l'échantillon – ainsi que la sensibilité de détection de la surface sont des paramètres très importants pour minimiser la constante  $F_{ini}$  de l'expression donnée ci-dessus. La figure 2.6 illustre l'évolution de la vitesse de déformation, en fonction de la profondeur de pénétration, pour différentes consignes, sur le PMMA.

Nous remarquons clairement une profondeur critique en deçà de laquelle la vitesse de déformation n'est plus constante [76]. Il faudra toujours vérifier *a posteriori* l'hypothèse de vitesse de déformation constante lors de l'analyse des résultats.

Dans le cas du PMMA, avec les paramètres d'approche décrits en figure 2.6, pour  $\dot{h}/h = 0,0025 \text{ s}^{-1}$ , la consigne est atteinte après 100 nm de pénétration. Pour les essais réalisés à 500 nm

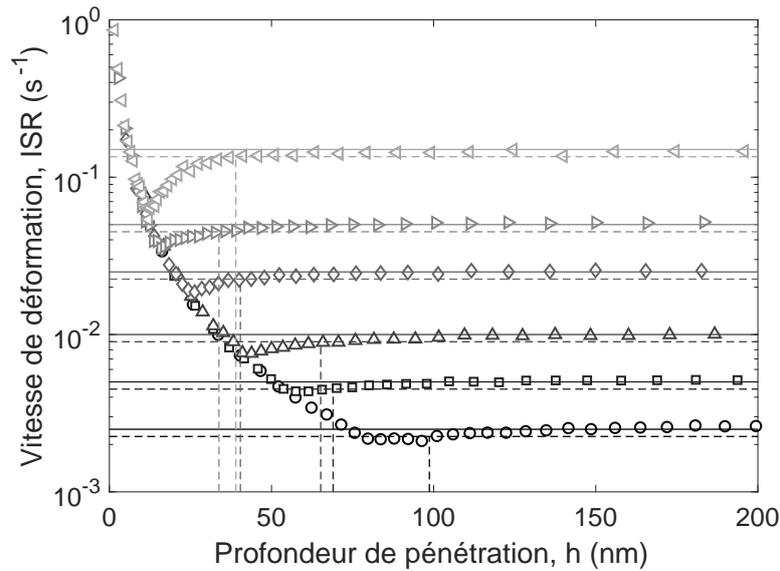


FIGURE 2.6 – Vitesses de déformation  $-\dot{h}/h$  – obtenues expérimentalement en indentant du PMMA à température ambiante sur le nanoindenteur SA2<sup>®</sup>. Les droites pleines représentent les valeurs cibles et les droites en pointillés représente 90 % de cette valeur. La vitesse d’approche est de 2 nm.s<sup>-1</sup> et la sensibilité de détection sur la raideur de contact est de 5 %.

et 1000 nm cela représente entre 10 et 20 % du chargement total, l’hypothèse est donc satisfaite dans ces conditions.

En revanche, – dans le cas de l’élastomère – la stabilisation de l’asservissement sur la valeur cible de vitesse de déformation est beaucoup plus lente – voir figure 2.7. Les profondeurs de pénétration atteintes à 90 % de la consigne sont comprises entre 1250 et 1600 nm ce qui représente entre 60 et 80 % de l’enfoncement maximum.

Dans ces conditions, l’hypothèse de vitesse de déformation constante lors du chargement est remise en cause et son effet sur les mesures en relaxation devra être discuté. Nous adresserons la question en section 4.2.1 (p. 61).

**Mesure de la raideur de contact** La raideur de contact est mesurée pour tous les essais par le mode CSM. Les paramètres d’utilisation sont données dans le tableau 2.3.

TABLE 2.3 – Paramètres du mode CSM utilisés dans les différentes configurations.

Échantillons	PMMA	Élastomère
Indenteurs	SA2 <sup>®</sup>	SA2 <sup>®</sup>
Fréquence (Hz)	75	75
Amplitude (nm)	1	4

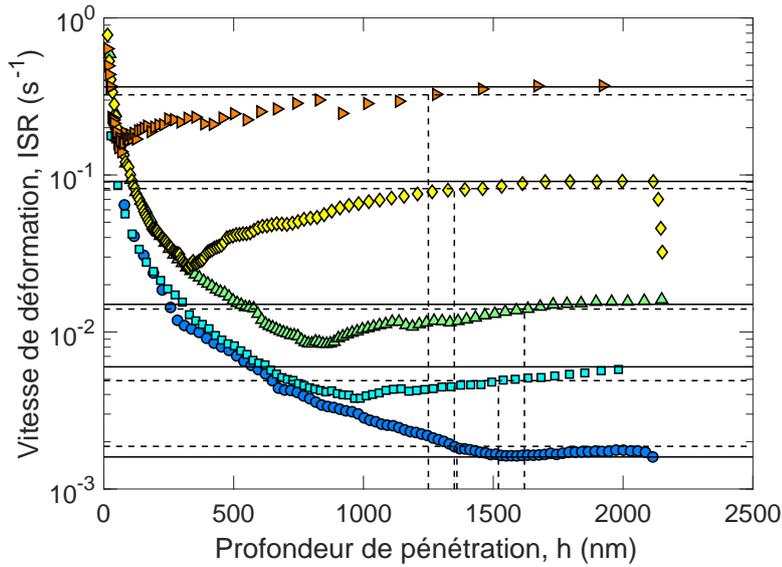


FIGURE 2.7 – Vitesses de déformation  $-\dot{h}/h$  – obtenues expérimentalement en indentant l'élastomère à température ambiante sur le nanoindenteur SA2<sup>®</sup>. Les droites pleines représentent les valeurs cibles et les droites en pointillés représente 90 % de cette valeur. La vitesse d'approche est de  $5 \text{ nm}\cdot\text{s}^{-1}$  et la sensibilité de détection sur la raideur de contact est de 2 %.

### 2.3.2 Asservissement du maintien à déplacement constant

Le principe d'un asservissement PID est de corriger l'erreur de positionnement d'un système par rapport à la consigne qui peut être en effort, en vitesse, en angle ou autres.

Dans le but de minimiser le dépassement en déplacement, un réglage des paramètres PID est effectué. La méthode du point critique est utilisée pour estimer les paramètres optimaux. Cette méthode consiste à régler dans un premier temps le correcteur proportionnel  $K_p$  jusqu'à obtenir une réponse instable du système : oscillation autour de la consigne. Une fois ce stade atteint, on note  $K_p = K_{crit}$  et  $T_{crit}$  la période d'oscillation. Le réglage des autres paramètres se fait ensuite en utilisant le tableau 2.4. Les paramètres PID utilisés pour chacun des matériaux sont donnés en annexe A.

TABLE 2.4 – Estimation des paramètres PID optimaux par la méthode du point critique.

Param.	$K_p$	$T_i$	$T_d$
Valeurs	$0,6 K_{crit}$	$0,5 T_{crit}$	$0,125 T_{crit}$

L'effet de l'asservissement en déplacement sur la mesure de la charge est illustré par la figure 2.8. Dans un premier temps, nous pouvons noter que la valeur stabilisée de profondeur de pénétration est légèrement supérieure à la consigne. Pour l'essai à  $\alpha = 0,15 \text{ s}^{-1}$  : la consigne est  $h_{stab} = 506 \text{ nm}$  – voir annexe A (p. 131) – et sur la figure 2.8,  $h_{stab} \approx 512 \text{ nm}$ . Ceci est dû au critère de détection du contact lors de l'essai. En effet, le système de nanoindentation a tendance à détecter automatiquement la surface après être entré en contact de quelques nanomètres de profondeur. Lorsque les courbes sont recalées par le "vrai" point de contact, *a posteriori*, le déplacement de la

pointe en contact avec le matériau est souvent supérieur à la consigne. Le problème de détection du contact est sensiblement le même pour tous les essais réalisés sur le PMMA et n'engendre qu'une erreur de l'ordre de 1 % sur la profondeur totale atteinte, ce qui est négligeable.

De plus, nous pouvons observer la présence d'un dépassement de la consigne lors de la transition entre chargement à vitesse de déformation constante et maintien à déplacement constant – voir figure 2.8.a.

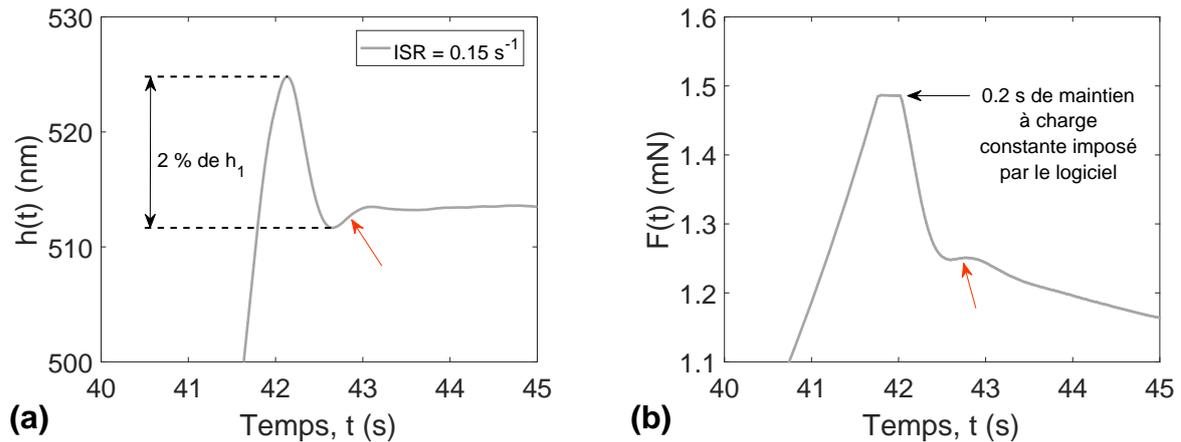


FIGURE 2.8 – Transition entre chargement à vitesse de déformation constante et maintien à déplacement constant sur du PMMA : (a) Dépassement de la consigne en déplacement en fin de chargement ; (b) évolution de la charge lors de la transition d'asservissement.

Ce dépassement est dû à la transition, au sein du logiciel de nanoindentation, d'un asservissement en force à un asservissement en déplacement. En effet, lors de cette transition la charge est maintenue 0,2 s ce qui conduit à une augmentation de la profondeur d'indentation par fluage.

Une fois l'asservissement en déplacement actif, la consigne est atteinte en moins d'une seconde. Même si le dépassement ne dépasse pas 2 % pour tous les essais réalisés sur le PMMA, la baisse de force durant cette transition est significative – voir figure 2.8.b. Il est donc important de noter que les valeurs mesurées en relaxation ne sont représentatives que lorsque l'asservissement du déplacement est stabilisé.

Malgré la présence d'un dépassement, ces résultats restent tout à fait acceptables au regard des travaux de Vanlandingham *et al.* [57] sur la relaxation du PMMA en indentation. Ceux-ci obtiennent un temps de stabilisation du déplacement compris entre 6 et 8 s contre 1 s dans notre cas.

Nous verrons dans la section suivante que le temps de stabilisation pour l'élastomère est de l'ordre de 2 s avec un dépassement en déplacement n'excédant pas 2,2 % pour tous les essais. Nous introduirons également comment est déterminé le début du segment de relaxation sur les courbes charge - déplacement.

### 2.3.3 Détermination du segment de relaxation

Lors de l'essai de relaxation, le temps "zéro" doit être déterminé de manière à obtenir avec précision le comportement du matériau lors des premiers instants du segment de maintien. Pour tous les essais effectués avec le nanoindenteur SA2<sup>®</sup>, le même critère de détermination est utilisé. Ainsi, le début du segment de relaxation est caractérisé par la mise en fonctionnement de la boucle d'asservissement PID. Nous détaillons plus précisément dans les paragraphes suivants l'application de cette méthode aux deux matériaux de cette étude.

**PMMA** La figure 2.9 représente un exemple d'évolution du déplacement et de la charge – en fonction du temps – pour le PMMA. Nous retrouvons sur la figure 2.9.b le plateau de maintien de force, pendant 0,2 s, ainsi que le point rouge représentant le début du segment de maintien. La zone grisée, quant à elle, représente la phase de stabilisation du signal de déplacement – comme nous l'avons vu dans la section précédente, celle-ci est d'environ 1 s.

Nous pouvons également remarquer que le début du segment de relaxation comporte une phase de maintien de la force constante – de l'ordre de 0,1 s. Étant donné que nous ne considérons que le comportement après 1 s de maintien, cet *artefact* n'a pas d'influence sur l'interprétation des données que nous ferons par la suite.

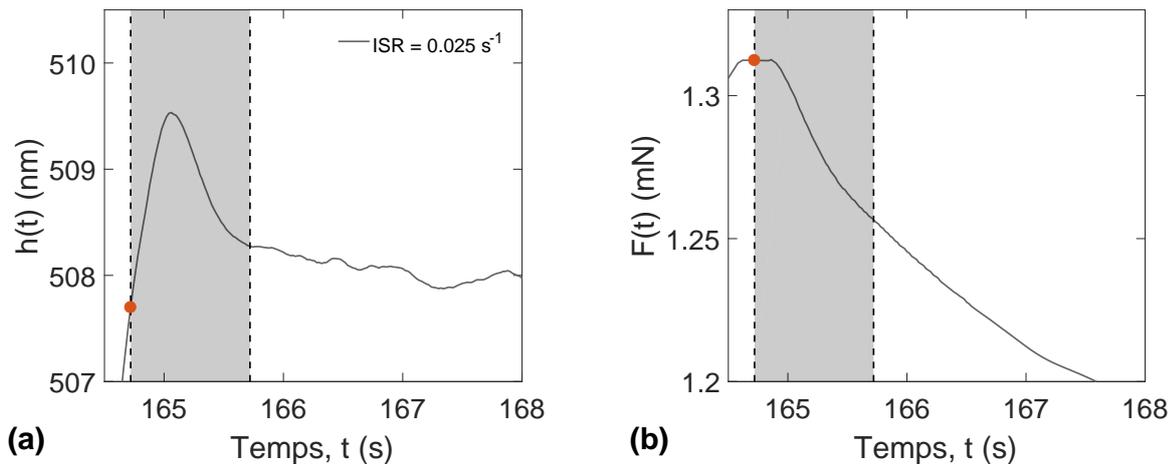


FIGURE 2.9 – Exemple d'un asservissement à déplacement constant sur le PMMA à température ambiante : Profondeur de pénétration (a) et charge (b) – en fonction du temps. Le symbole ● marque la localisation du début du segment de relaxation. Les zones grisées représentent la période de stabilisation de l'asservissement – environ 1 s.

**Élastomère** Dans le cas de l'élastomère, nous représentons les mêmes courbes que pour le PMMA sur la figure 2.10. Là encore, nous représentons le début de la zone de relaxation par un point rouge et le temps de stabilisation par la zone grisée. Sur la figure 2.10.b, le signal d'effort ne reste pas constant durant la phase de transition d'asservissement mais un *artefact* persiste néanmoins lors du premier dixième de seconde du segment de relaxation.

De la même manière que pour les courbes du PMMA, les 2 secondes de stabilisation de l'asservissement ne sont pas prises en compte dans le calcul de propriétés mécaniques en relaxation.

Il est intéressant de noter que, dans le cas de l'élastomère, la détection du premier point de contact est plus difficile à automatiser. Il est donc nécessaire que la pointe parcourt une plus grande distance en contact avec le matériau avant de détecter une augmentation de la raideur.

Nous pouvons voir sur la figure 2.10.a que la valeur  $h_{stab} \approx 2080$  nm, pour une consigne à  $h_{stab} = 2000$  nm – voir annexe A (p. 131). Cela représente environ 4 % d'erreur sur la profondeur d'indentation totale, ce qui reste négligeable pour un matériau aussi souple.

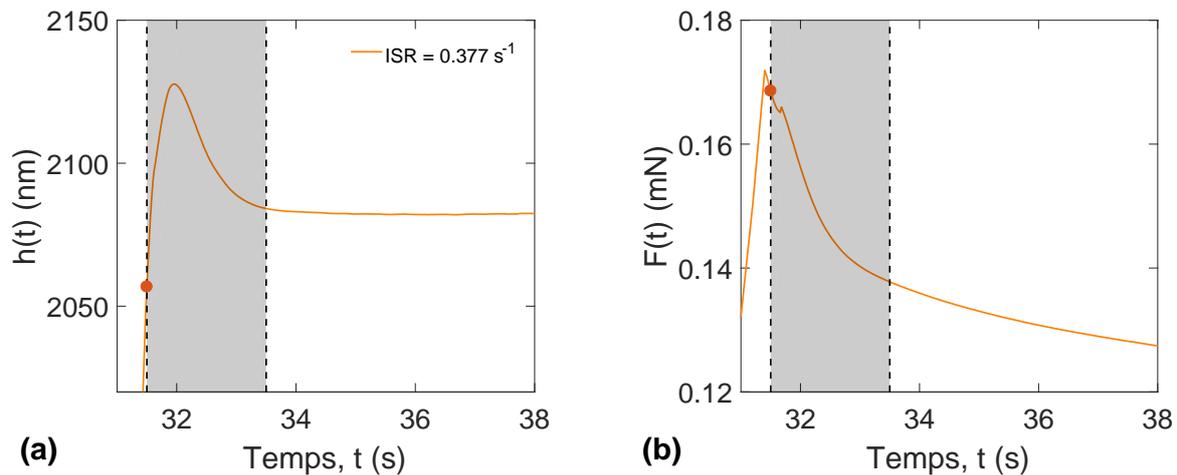


FIGURE 2.10 – Exemple d'un asservissement à déplacement constant sur l'élastomère à température ambiante : Profondeur de pénétration (a) et charge (b) – en fonction du temps. Le symbole ● marque la localisation du début du segment de relaxation. Les zones grisées représentent la période de stabilisation de l'asservissement – environ 2 s.

### 2.3.4 Dérive thermique

La dérive thermique est un des points les plus limitants des essais effectués dans le temps – comme le fluage et la relaxation. L'essai de relaxation en indentation a un intérêt seulement si les données recueillies sont fiables sur une durée suffisamment longue pour caractériser le comportement visqueux du matériau étudié. Nous détaillons dans cette section la procédure suivie pour garantir une dérive minimale au cours des différents essais.

Dans un premier temps, une charge de  $2 \mu\text{N}$  est appliquée à la surface de l'échantillon. La dérive est mesurée pour un maintien de l'ordre de 60 s. Les dérives mesurées lors de ce maintien, pour les essais à température ambiante sur le PMMA, ne dépassent pas  $0,015 \text{ nm}\cdot\text{s}^{-1}$  – en valeur absolue. Pour les essais réalisés sur l'élastomère nous obtenons un dérive inférieure à  $0,028 \text{ nm}\cdot\text{s}^{-1}$ .

De plus, la dérive est estimée par la mesure de la raideur de contact lors du maintien à déplacement constant. En effet, l'aire de contact et par conséquent la profondeur de pénétration peut être calculée à partir de la raideur de contact par l'équation 1.35 – en considérant le module d'élasticité constant. La figure 2.11.a illustre l'évolution de la raideur de contact lors du maintien. Nous effectuons une régression linéaire de la portion 100 s - 600 s pour s'affranchir des potentiels effets de l'asservissement. Nous prenons la valeur de  $E_c^*$  en fin de chargement pour chaque essai afin d'estimer le rayon de contact. Nous connaissons alors le rapport de Sneddon –  $h/a$  – en fin de char-

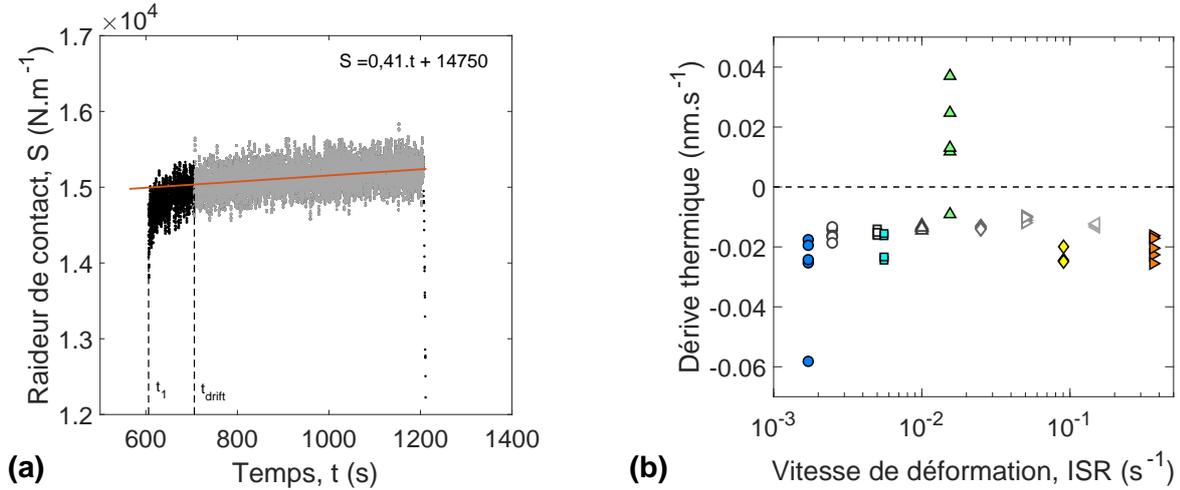


FIGURE 2.11 – Dérives thermiques estimées par la mesure en continu de la raideur de contact : (a) Évolution de la raideur de contact pendant la phase de maintien à déplacement constant sur du PMMA – en gris la zone de fit et en rouge la droite affine correspondant à l’expression dans la figure ; (b) dérives thermiques estimées pour les essais réalisés à 500 nm sur le PMMA – en nuance de gris – et pour les essais sur l’élastomère à 2000 nm – en couleur – à température ambiante.

gement. En considérant celui-ci comme constant nous pouvons estimer la variation de déplacement via l’ajustement de la raideur.

Les dérives obtenues pour les essais de relaxation à température ambiante sur le PMMA et sur l’élastomère sont données figure 2.11.b. Nous remarquons que les niveaux de dérive mesurés sont relativement constants et très proches des valeurs mesurées avant l’essai.

### 2.3.5 Calcul des propriétés mécaniques

**Module de relaxation** Le calcul du module de relaxation nécessite la connaissance de l’aire de contact effective. Nous utilisons, dans le cas du PMMA et de l’élastomère, le modèle d’Oliver et Pharr qui rend compte de l’affaissement du matériau autour de la pointe [77]. L’équation 1.44 est légèrement modifiée pour prendre en compte le défaut de pointe établi par Loubet *et al.* [35], tel que :

$$h_c = h - 0,75 \frac{F}{S} + h_0 \quad (2.10)$$

Le défaut de pointe  $h_0$  est estimé à 6 nm par la méthode de Loubet *et al.* [35] présentée en section 2.2.4 du chapitre 1 (p. 25). Le rayon de contact équivalent est calculé pour chaque essai au début de la phase de maintien à déplacement constant à partir de l’équation 1.35. Le module d’élasticité réduit,  $E_c^*$ , est calculé en fin de chargement via le mode CSM. Le PMMA et l’élastomère étant considérés comme homogènes à cette échelle, nous considérons  $E_c^*$  constant à la fréquence de sollicitation appliquée. Nous pouvons alors calculer le rapport de Sneddon,  $h/a$ , expérimentalement. Nous trouvons un ratio de  $0,41 \pm 2 \%$  pour les deux matériaux, ce qui est plus faible que le ratio défini par l’équation 1.27. Ceci est logique étant donné que nous utilisons le modèle d’Oliver et Pharr qui prend en compte une déformation plastique en plus de la définition purement élastique proposée par Sneddon.

Les modules de relaxation sont calculés pour le PMMA et l'élastomère à partir de l'équation 1.67. Étant donné que la mesure est effectuée en déplacement et non en rayon de contact, nous adaptons l'expression avec le rapport  $h/a$  calculé précédemment :

$$G(t) = \frac{(1 - \nu) F(t)}{\tan(\beta) \pi h_1^2} \left(\frac{h}{a}\right)^2 \quad (2.11)$$

Afin de simplifier les calculs, le coefficient de Poisson est considéré constant. Nous prenons  $\nu = 0,37$  pour le PMMA [75] et  $\nu = 0,5$  pour l'élastomère [78].

**Spectre de relaxation** Les spectres de relaxation sont calculés à partir de l'équation 1.13 qui correspond à l'approximation du premier ordre donnée par Schwarzl [7]. Cette expression requiert la dérivée première du module de relaxation calculé par l'équation 2.11. Afin de réaliser une dérivation numérique de notre courbe expérimentale, un ré-échantillonnage sur un intervalle de temps logarithmique constant de 0,05 est effectué. Ce traitement permet d'éviter la création de bruit numérique sur les données acquises après 10 s [59]. Le détail de ce traitement est donné en annexe B (p. 135).

## 3 Résultats

### 3.1 PMMA

#### 3.1.1 Comparaison des cinétiques de chargement

Afin de valider les observations faites à partir des modèles analytiques, comme il a été précisé dans la section 2.3 (p. 45), nous allons traiter dans un premier temps l'effet des cinétiques de chargement sur la réponse en relaxation.

**Faux effet d'échelle** La figure 2.12 illustre le comportement du PMMA en relaxation après différents types de chargement, à savoir vitesse de déformation constante et vitesse de chargement constant. Les courbes de couleur rouge représentent les essais effectués à 500 nm de profondeur et les courbes en pointillés jaune ceux à 1000 nm.

Comme il a été montré dans les sections 1.1.2 (p. 40) et 1.2.1 (p. 41), le module de relaxation mesuré après un chargement exponentiel est indépendant de la profondeur d'indentation pour les profondeurs étudiées – voir figure 2.12.a –, alors que celui-ci est significativement modifié dans le cas d'un chargement de type linéaire – voir figure 2.12.b. Nous retrouvons bien les mêmes tendances que celle observées sur les figures 2.1 et 2.2.

Dans ce cas précis, l'influence de la cinétique de chargement sur la mesure en relaxation est limitée à la première seconde de maintien, ce qui est compris dans la zone de stabilisation de l'asservissement. Par conséquent, même si le chargement à vitesse de déformation constante est plus adapté, le chargement de type linéaire n'engendre pas de modifications significatives sur la période de mesure exploitable. Néanmoins, il est préférable d'utiliser une vitesse de déformation

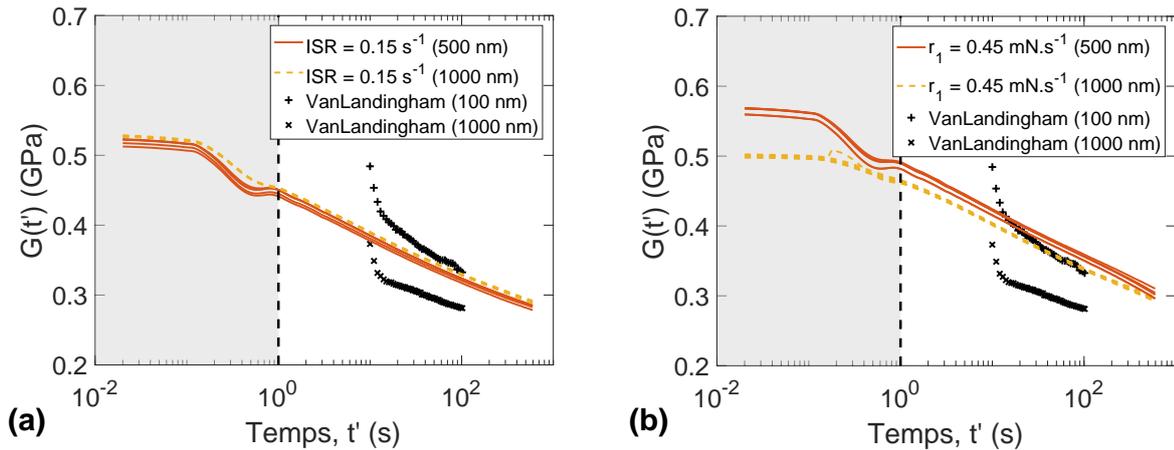


FIGURE 2.12 – Modules de relaxation du PMMA pour : (a) une vitesse de déformation de  $0,15 \text{ s}^{-1}$  ; (b) une vitesse de chargement à  $0,45 \text{ mN.s}^{-1}$  et pour deux profondeurs de pénétration. Les symboles + et × correspondent aux données de Vanlandingham *et al.* [57] pour une procédure de type vitesse de chargement constante puis maintien à déplacement constant.

constante lors d'essais effectués sur des matériaux fortement visqueux pour lesquels un potentiel **faux effet d'échelle** est accentué.

Les données de Vanlandingham *et al.* [57] obtenues par essai de relaxation en indentation sont comparées aux nôtres. Nos résultats sont bien compris entre leur essais effectués à 100 nm et 1000 nm de profondeur. Néanmoins, nous obtenons un module de relaxation 15 à 20 % plus élevé dans le cas des essais effectués à 1000 nm. De plus, l'évolution du module dans le temps est quelque peu différente durant les dix premières secondes. Ceci pourrait être expliqué par la différence d'asservissement entre les deux études – voir section 2.3.2 (p. 48).

**Effet de la vitesse de déformation** La figure 2.13 représente l'évolution du module – figure 2.13.a – et du spectre de relaxation – figure 2.13.b – pour différentes sollicitations lors du chargement. Les zones grisées représentent le temps de stabilisation de l'asservissement à déplacement constant.

Le module de relaxation a bien tendance à augmenter aux temps courts avec l'augmentation de la vitesse de déformation. Autrement dit, la contribution visqueuse en relaxation est plus importante après un chargement à vitesse de déformation élevée. Nous pouvons distinguer trois zones sur la figure 2.13.b :

- Les temps de relaxation inférieurs à la seconde : le pic sur les spectres correspond à un *artefact* de l'asservissement – voir figure 2.8. Nous ne nous intéresserons pas à cette zone par la suite.
- Les temps de relaxation supérieurs à 100 s : les spectres de relaxation sont confondus.
- La région intermédiaire : la valeur du spectre dépend du temps de relaxation et de la vitesse de déformation appliquée pendant le chargement.

En considérant les deux dernières zones, nous obtenons une tendance identique à celle de la théorie viscoélastique linéaire. En effet, plus le rapport  $\alpha.t'$  augmente plus la contribution visqueuse mesurée se rapproche des propriétés intrinsèques du matériau.

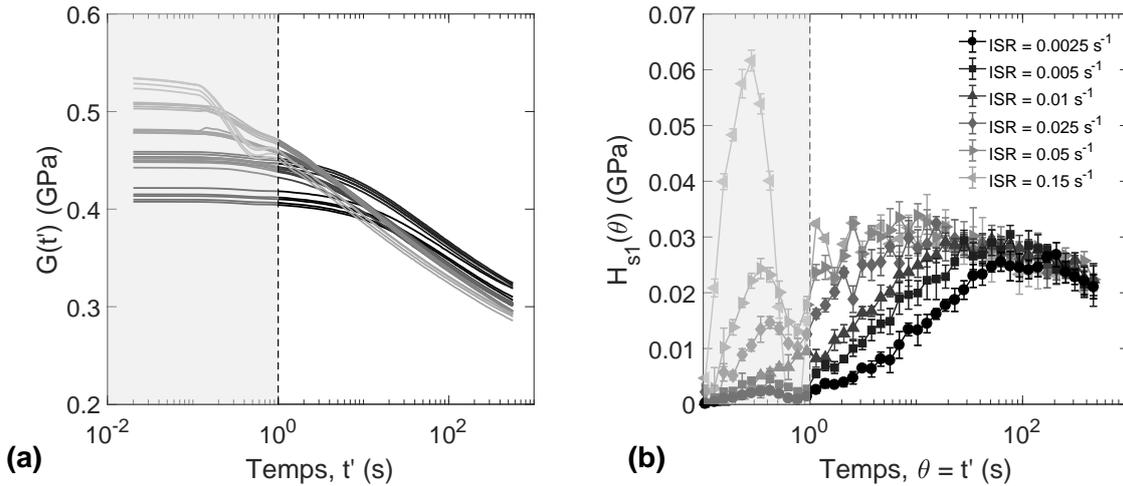


FIGURE 2.13 – Résultats des essais de relaxation en indentation sur du PMMA pour une profondeur de pénétration de 500 nm : (a) Modules de relaxation pour différentes vitesses de déformation – notée en (b) – et (b) approximations du premier ordre des spectres de relaxation obtenus pour différentes vitesses de déformation.

De plus, cette tendance est indépendante de la profondeur d'indentation, pour les conditions testées, ce qui confirme l'intérêt de l'utilisation d'un chargement à vitesse de déformation constante pour l'obtention de paramètres matériaux représentatifs – voir figure 2.14.

### 3.1.2 Résultats de la littérature à température ambiante

Dans le but de prouver que l'essai de relaxation en indentation permet l'identification du comportement visqueux au même titre que les essais macroscopiques, nous comparons ici nos résultats à ceux de Vanlandingham *et al.* [57] obtenus en traction sous très faible niveau de déformation, Fernández *et al.* [79] obtenus par relaxation en flexion trois points, Lu *et al.* [80], Cizmecioglu *et al.* [81] et Hernández-Jiménez *et al.* [82], obtenus en traction uniaxiale. Leurs résultats ont été récupérés via un logiciel de numérisation d'image – permettant d'extraire les points expérimentaux d'un graphique. Cette opération étant manuelle, les courbes extraites servent de tendance et d'ordre de grandeur mais ne peuvent pas être prises comme résultats à part entière.

Les données de la littérature ont été transformées en module de cisaillement,  $G(t)$ , via l'équation 1.6b en considérant un coefficient de Poisson de 0,37. L'approximation du premier ordre du spectre de relaxation a également été calculée. Ceux-ci sont respectivement représentés sur les figures 2.15.a et 2.15.b.

Le module de relaxation du PMMA est très dépendant du niveau de déformation appliquée comme nous pouvons le voir sur la figure 2.15.a – où les niveaux de déformation sont indiqués. Dans le cas de l'indentation Berkovich, la déformation équivalente induite est de l'ordre de 10 % [21]. Ceci est une bonne illustration du comportement non-linéaire du PMMA [83]. En effet, Vanlandingham *et al.* [57] montrent, eux aussi, que l'augmentation du niveau de déformation appliqué conduit à une baisse significative du module de relaxation en cisaillement.

En indentation, le niveau de déformation équivalent appliqué au matériau est principalement

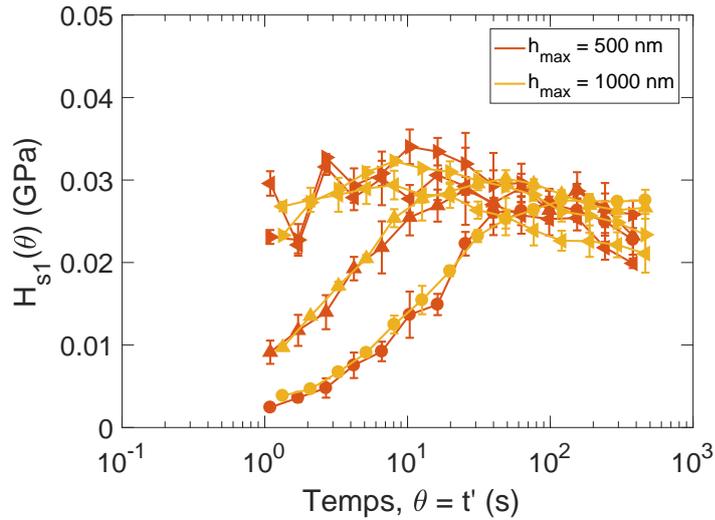


FIGURE 2.14 – Approximation du premier ordre des spectres de relaxation du PMMA pour des indentations effectuées à 500 et 1000 nm de profondeur. Pour des raisons de lisibilité, seul quatre vitesses de déformations sont représentées. Les symboles sur les courbes correspondent aux vitesses de déformation définies dans la figure 2.13.

dépendant de la géométrie de la pointe. Or, il est difficile d'obtenir des géométries induisant moins de 10 % de déformation. La plage de déformation accessible en indentation est par conséquent réduite par rapport au essais macroscopiques de type traction uniaxiale ou flexion trois points.

Il est intéressant de noter que le spectre de relaxation reste très similaire indépendamment du niveau de déformation appliqué – voir figure 2.15.b. La contribution visqueuse semble donc être indépendante du niveau de déformation dans le cas du PMMA.

## 3.2 Élastomère

### 3.2.1 Module et spectre de relaxation

De la même manière que pour les essais réalisés sur le PMMA, nous étudions l'effet de la vitesse de déformation lors du chargement sur la mesure du comportement en relaxation de l'élastomère. La figure 2.16 représente l'évolution du module de relaxation (a) et de l'approximation du premier ordre du spectre de relaxation (b) après différentes sollicitations lors du chargement. Nous pouvons remarquer une dispersion assez importante des niveaux de module de relaxation même à une profondeur d'indentation de 2  $\mu\text{m}$ .

Ceci est certainement dû à la répartition in-homogène des charges à l'échelle du contact – comme nous pouvons le voir sur la figure 2.4, une empreinte d'indentation effectuée à une profondeur de 2  $\mu\text{m}$  couvrirait seulement une quarantaine de particules en surface. En revanche, les spectres de relaxation calculés sont très répétables. Il semblerait donc que la contribution viscoélastique en relaxation de l'élastomère ne soit pas affectée par la répartition des agrégats à l'échelle étudiée.

Nous pouvons noter – comme dans le cas du PMMA – la signature de l'asservissement lors de la première seconde de maintien – exprimée par le pic d'intensité croissante avec la vitesse de déformation, sur la figure 2.16.b.

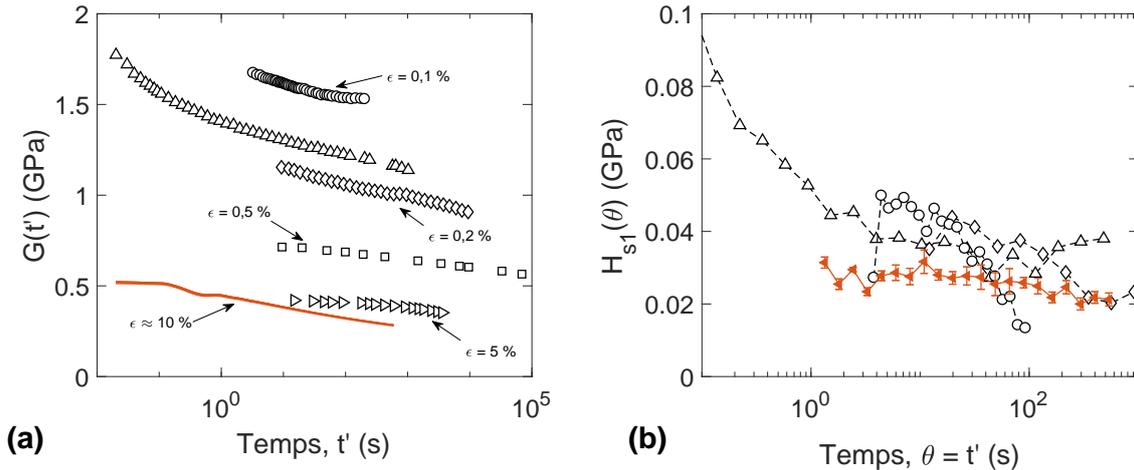


FIGURE 2.15 – Comparaison des données d’indentation avec la littérature pour le PMMA : (a) En rouge, module de relaxation obtenu à 500 nm de pénétration et pour une vitesse de déformation de  $0,15 \text{ s}^{-1}$  ; les symboles  $\circ$  représentent les données de Vanlandingham *et al.* [57] ; les symboles  $\triangle$  représentent les données de Fernández *et al.* [79] ; les symboles  $\diamond$ ,  $\square$  et  $\triangleright$  représentent les données de Lu *et al.* [80], Cizmecioglu *et al.* [81] et Hernández-Jiménez *et al.* [82], respectivement. Les niveaux de déformation appliqués sont indiqués sur les courbes. (b) Les approximations du premier ordre des spectres de relaxation calculés pour les trois premières courbes de la littérature et les essais d’indentation.

### 3.2.2 Comparaison avec des essais macroscopiques

Nous n’avons pas accès à une grande quantité de résultats mécaniques sur cet élastomère en raison de sa provenance industrielle. Des essais sont actuellement en cours mais nous ne pouvons fournir les résultats. Nous connaissons son module de conservation à température ambiante qui est de 15 MPa à 1 Hz et sous 0,01 % de déformation. En comparaison, les résultats obtenus via le mode CSM du nanoindenteur à 75 Hz nous donne un module d’élasticité  $E' = 30 \text{ MPa} \pm 13 \%$ . L’obtention d’un module d’élasticité plus élevé par nanoindentation est cohérent avec l’augmentation d’une décade de la fréquence de sollicitation. Néanmoins, il faudrait des résultats de la littérature à plus haute fréquence pour statuer sur la justesse des mesures de nanoindentation à cette échelle.

## 4 Discussion

### 4.1 Comportement viscoélastique-viscoplastique du PMMA ?

#### 4.1.1 Caractérisation de la fonction d’atténuation expérimentale

Comme nous l’avons vu en section 3.1.1 (p. 53), le niveau du spectre de relaxation du PMMA est bien dépendant de la vitesse de déformation lors du chargement. Nous avons pu mettre en évidence – de manière analytique – la fonction d’atténuation définie par l’équation 2.9 –  $f_a(\alpha, \lambda_i) = \frac{2\alpha\lambda_i}{2\alpha\lambda_i+1}$ . Dans cette section, nous nous intéressons à la forme de cette fonction dans le cas du PMMA. Son calcul n’est pas immédiat car elle se trouve dans la somme de l’équation 2.8. Dans le cas d’un système discret, tel que le modèle de Maxwell généralisé, nous pouvons remonter au niveau

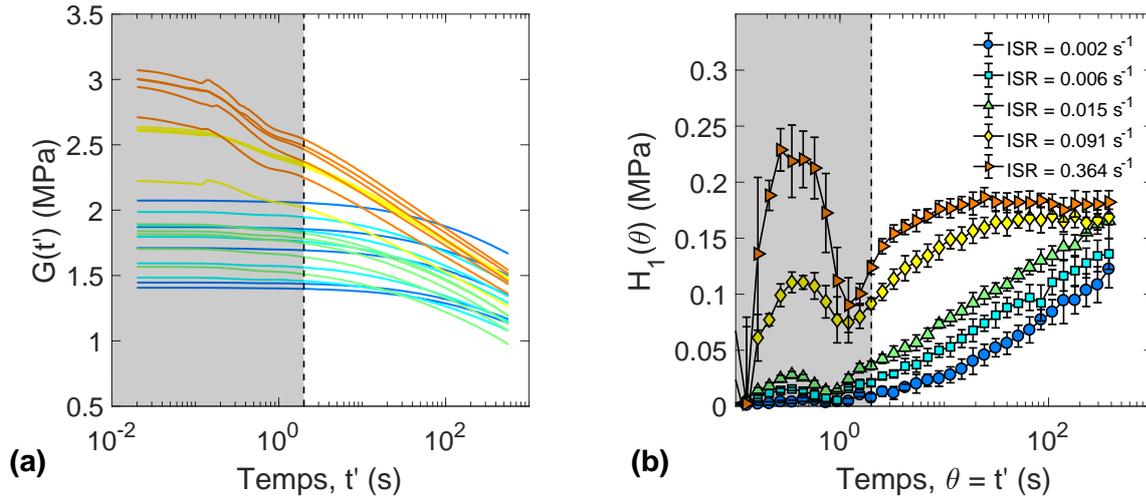


FIGURE 2.16 – Résultats des essais de relaxation en indentation sur l'élastomère pour une profondeur de pénétration de 2000 nm : (a) Modules de relaxation pour différentes vitesses de déformation – notée en (b) – et (b) approximations du premier ordre des spectre de relaxation obtenus pour différentes vitesses de déformation.

d'atténuation au temps de relaxation  $\lambda_i$  en effectuant le ratio du module  $G_i$  apparent sur le module  $G_i$  nominal.

Dans le cas du PMMA, le spectre de relaxation est continu et nous ne connaissons pas *a priori* les temps de relaxation représentatifs du matériau. Nous proposons alors d'ajuster la courbe du spectre expérimental par un modèle de Maxwell généralisé à trois temps de relaxation d'équation :

$$H_{s1}(t') = t' \cdot \sum_{i=1}^3 \frac{G_i}{\lambda_i} \exp\left(-\frac{t'}{\lambda_i}\right) \quad (2.12)$$

Nous choisissons trois temps de relaxation pour couvrir avec assez de précision le domaine temporel étudié tout en limitant l'interdépendance des termes. En effet, l'utilisation d'un nombre trop élevé de paramètres nuit à l'unicité de la solution pour chaque temps de relaxation à caractériser. Il faut noter que ce modèle est utilisé uniquement pour obtenir l'intensité des contributions visqueuses à des temps discrets – ceci permettant une évaluation de la fonction d'atténuation 2.9.

Afin de normaliser la méthode d'ajustement, les temps de relaxation  $\lambda_i$  sont fixés à 2 s, 30 s et 300 s. Nous avons choisi ces temps afin de respecter une répartition homogène en échelle logarithmique. De plus, le premier temps de relaxation est supérieur à 1 s pour que l'analyse soit moins sensible à l'effet de l'asservissement – comme discuté en section 2.3.2 (p. 48). Les paramètres ajustables sont alors les composants  $G_i$  de l'équation 2.12. Deux exemples d'ajustements sont illustrés figure 2.17. La contribution visqueuse de chaque temps de relaxation est représentée en nuance de gris et le spectre total du modèle est affiché en rouge pointillé. Le modèle est ajusté sur chaque essai, nous obtenons ensuite une moyenne et un écart-type pour chacune des vitesses de déformation.

Le rapport des paramètres élastiques  $G_i$  sont notés tels que  $G_{i\,norm} = G_i(\alpha)/G_i(\alpha_{max})$  et sont représentés figure 2.18.  $G_i(\alpha_{max})$  correspond au spectre obtenu avec la vitesse de déformation la plus élevée pendant le chargement –  $\alpha = 0,15 \text{ s}^{-1}$ . Nous considérons que sur la plage de temps

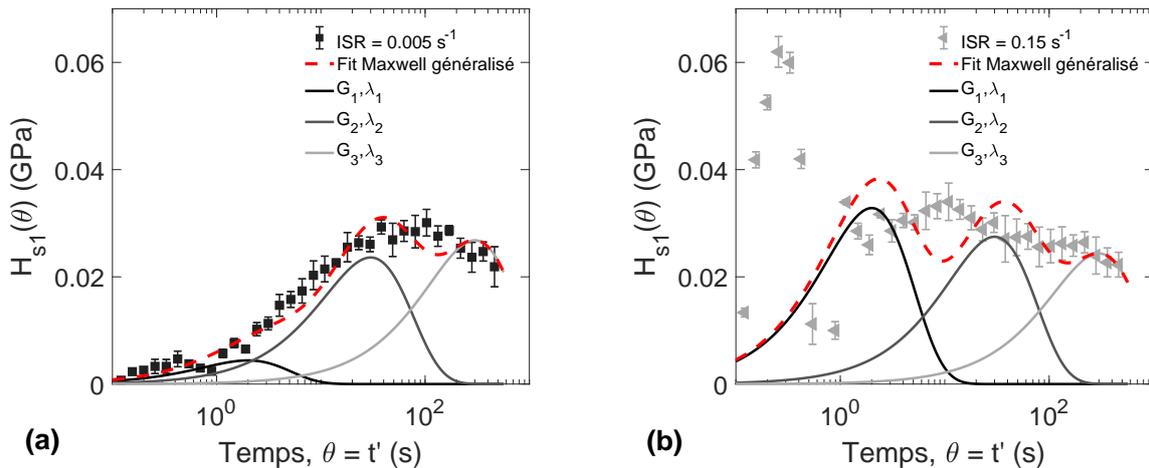


FIGURE 2.17 – Spectres de relaxation du PMMA ajustés par un modèle de Maxwell généralisé à trois temps de relaxation. (a)  $ISR = 0,005 \text{ s}^{-1}$  et (b)  $ISR = 0,15 \text{ s}^{-1}$ .

de relaxation discrets étudiée, la contribution visqueuse obtenue sous cette sollicitation a atteint sa valeur nominale – équivalente au comportement intrinsèque du matériau. En effet, le spectre obtenu pour la seconde vitesse de déformation la plus élevée est confondu avec le premier sur la plage [1 - 600 s] – voir figure 2.13.b.

Un calcul de propagation d'erreur est effectué – à partir des écart-types calculés précédemment – de telle manière :

$$\sigma_{G_i \text{ norm}} = G_i \text{ norm} \sqrt{\left(\frac{\sigma_{G_i(\alpha)}}{\langle G_i(\alpha) \rangle}\right)^2 + \left(\frac{\sigma_{G_i(\alpha_{max})}}{\langle G_i(\alpha_{max}) \rangle}\right)^2} \quad (2.13)$$

Les écart-types calculés sur 5 essais sont inférieurs à 1 % et sont représentés sur la figure 2.18. La courbe rouge correspond à la fonction d'atténuation définie par l'équation 2.9.

#### 4.1.2 Une atténuation moindre

La figure 2.18 représente donc la fonction d'atténuation obtenue pour le PMMA. Celle-ci présente un décalage avec la théorie viscoélastique linéaire. En effet, l'atténuation de la contribution visqueuse lors de la relaxation peut être considérée comme négligeable pour environ  $\alpha \cdot \tau_i > 1$  – au lieu de 10, dans le cas théorique.

La mesure du comportement en relaxation du PMMA semble donc moins sensible à la vitesse de déformation que ce que prédit le modèle VEL – voir figure 2.18. Cet écart avec la théorie VEL est compréhensible car le comportement du PMMA est souvent décrit comme élasto-viscoplastique dans la littérature [21, 76].

Nous pouvons néanmoins remarquer que la fonction d'atténuation expérimentale du PMMA suit la même tendance que celle analytique. Nous introduisons alors un facteur  $k$  dans l'équation 2.9, telle que  $f_{ak}$  s'écrit :

$$f_{ak}(\alpha, \lambda_i) = \frac{2 \cdot k \alpha \lambda_i}{2 \cdot k \alpha \lambda_i + 1} \quad (2.14)$$

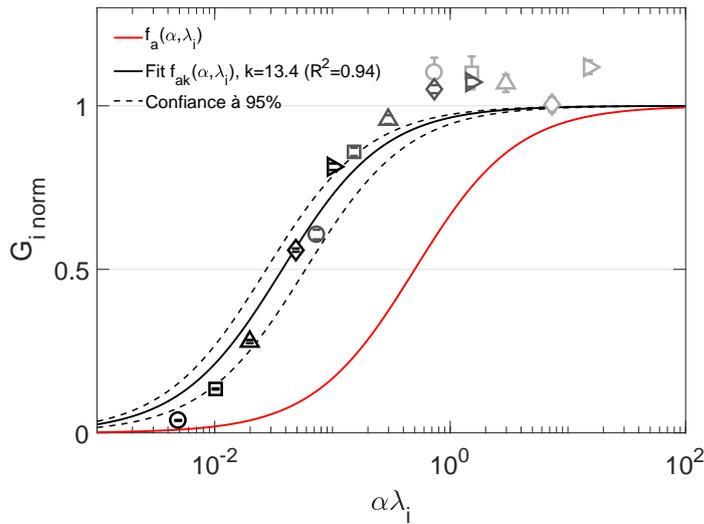


FIGURE 2.18 – Fonction d’atténuation expérimentale, évaluée sur les spectres de relaxation du PMMA.

Sur la figure 2.18, la courbe noire représente la fonction  $f_{ak}$  ajustée par un facteur  $k = 13,4 \pm 37\%$ .

Nous ne sommes pas encore en capacité d’expliquer ce facteur de "décalage" mais nous supposons qu’il soit intrinsèquement lié à la sensibilité à la vitesse de déformation  $m$ . Une étude de simulation numérique par éléments finis de l’essai de relaxation en indentation pour un solide de type Bingham-Norton nous aiderait à comprendre les paramètres matériaux influençant ce facteur.

### 4.1.3 Correction des spectres de relaxation

En reprenant la fonction d’atténuation déterminée expérimentalement au travers de l’équation 2.14, nous pouvons corriger l’approximation des spectres de relaxation. Ainsi, si nous connaissons la fonction d’atténuation d’un matériau et la vitesse de déformation appliquée lors du chargement, nous pouvons accéder à la contribution visqueuse **intrinsèque** du matériau.

La figure 2.19 représente l’approximation du premier ordre des spectres corrigés par la fonction 2.14, tel que  $H_{s1\text{ correc}} = H_{s1}(\alpha, \theta) / f_{ak}(\alpha, \theta)$ , avec  $\theta \equiv \lambda$  – en considérant la fonction  $f_{ak}$  continue sur le temps de relaxation.

Nous pouvons remarquer la très bonne superposition des données corrigées sur presque trois décades de temps – une comparaison peut être effectuée avec la figure 2.13.b (p. 55). De plus, la tendance obtenue au temps courts est très proche des données de Fernández *et al.* [79] obtenues en relaxation par flexion trois points. L’intérêt de ce type de correction serait de s’affranchir d’effectuer des vitesses de chargement rapides afin de limiter les problèmes d’asservissements.

Ainsi, en connaissant les paramètres matériaux influençant le facteur  $k$  ainsi que la cinétique de chargement utilisée, il sera possible d’accéder à la caractérisation des temps de relaxation courts, soit inférieurs à 10 s.

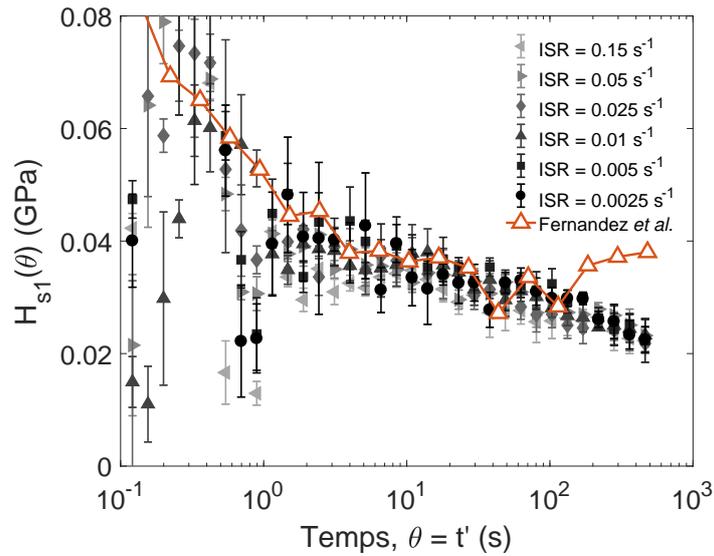


FIGURE 2.19 – Correction de la contribution visqueuse du PMMA par la fonction d'atténuation – déterminée par l'équation 2.14. Les symboles  $\triangle$  représentent les données de Fernández *et al.* [79].

## 4.2 Comportement viscoélastique de l'élastomère ?

### 4.2.1 Caractérisation de la fonction d'atténuation expérimentale

De la même manière que pour le PMMA, nous nous intéressons à la quantification de l'atténuation du spectre de relaxation avec la diminution de la vitesse de déformation lors du chargement – voir section 4.1.1 (p. 57). La figure 2.20 représente deux exemples de l'ajustement des spectres de relaxation par l'équation 2.12. Les mêmes temps de relaxation que pour le PMMA sont fixés. La

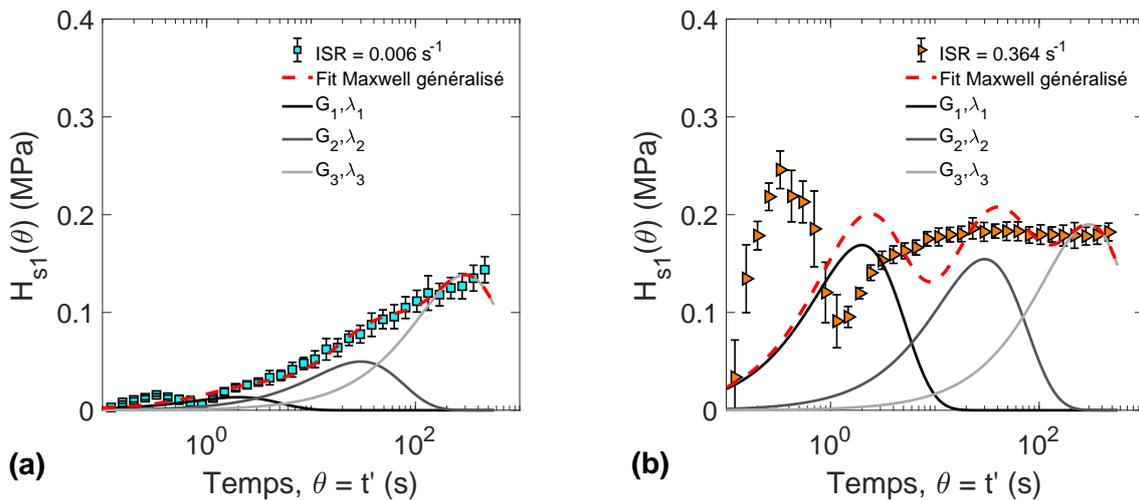


FIGURE 2.20 – Spectres de relaxation de l'élastomère ajustés par un modèle de Maxwell généralisé à trois temps de relaxation. (a)  $ISR = 0,006 \text{ s}^{-1}$  et (b)  $ISR = 0,364 \text{ s}^{-1}$ .

figure 2.21 représente l'évolution de la fonction d'atténuation avec le produit  $\alpha\tau_i$ . Les points expérimentaux sont obtenus de la même manière que pour le PMMA et les barres d'erreurs correspondent

à l'écart-type calculé par l'expression 2.13.

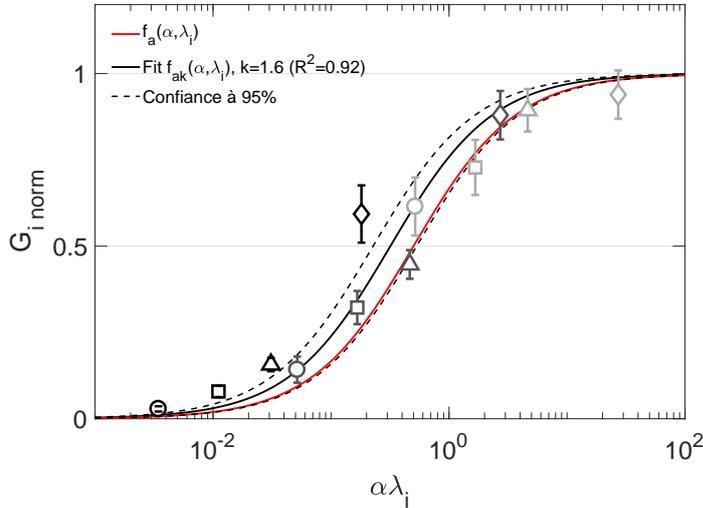


FIGURE 2.21 – Fonction d'atténuation expérimentale, évaluée sur les spectres de relaxation de l'élastomère.

Il est à noter que pour les symboles noirs obtenus au premier temps de relaxation –  $t' = 2$  s – ainsi que ceux obtenus au deuxième temps de relaxation –  $t' = 30$  s – le rapport  $G_{i\,norm} = G_i(\alpha)/G_i(\alpha_{max})$  n'est pas correct car l'hypothèse comme quoi la contribution visqueuse au temps considéré a atteint sa valeur nominal n'est pas vérifiée. En effet, les spectres obtenus pour les deux vitesses de déformation les plus élevées ne sont confondus qu'à partir de 80 s – voir figure 2.16.b.

Cela implique que les valeurs  $G_{i\,norm}$  calculées à ces temps de relaxation sont surestimées. Le fait que les symboles noirs et gris foncés soient tous supérieurs à la prévision VEL corrobore cette remarque. Néanmoins, la méthode de calcul de la fonction d'atténuation n'est sûrement pas la seule source de déviation puisque, comme nous l'avons vu en section 2.3.1 (p. 45), les vitesses de déformation calculées en fin de chargement ne sont pas représentatives de l'histoire de chargement, spécifiquement pour les vitesses de déformation faibles. Les résultats obtenus aux vitesses de déformation faibles devraient être décalés vers la droite du graphique – en considérant un  $(\alpha\tau_i)$  plus grand.

En effet, nous traçons sur la figure 2.22, l'évolution de la vitesse de déformation avec la résistance à la pénétration sur un graphique log - log de manière à obtenir la l'indice de viscoplasticité,  $n$ . Nous remarquons que les points expérimentaux suivent une relation plutôt linéaire de  $ISR = 0,015$  s<sup>-1</sup> à 0,364 s<sup>-1</sup> – caractérisée par une pente,  $n \approx 5$  – soit  $m \approx 0,2$ . En deçà de 0,015 s<sup>-1</sup> de vitesse de déformation, la pente expérimentale augmente et dévie de l'ajustement présenté en figure 2.22.

Comme expliqué ci-dessus, ce comportement est dû à l'histoire de chargement – comme nous l'avons vu en section 2.3.1 (p. 45). Ainsi, la vitesse de déformation *vue* par le matériau est donc – en moyenne – plus élevée et la résistance à la pénétration qui en découle est elle aussi plus élevée.

Malgré ces approximations, l'évolution de la fonction d'atténuation déterminée expérimentalement est très proche de la définition analytique. Le comportement en relaxation de l'élastomère sous indentation Berkovich peut donc être approximé par une réponse viscoélastique linéaire.

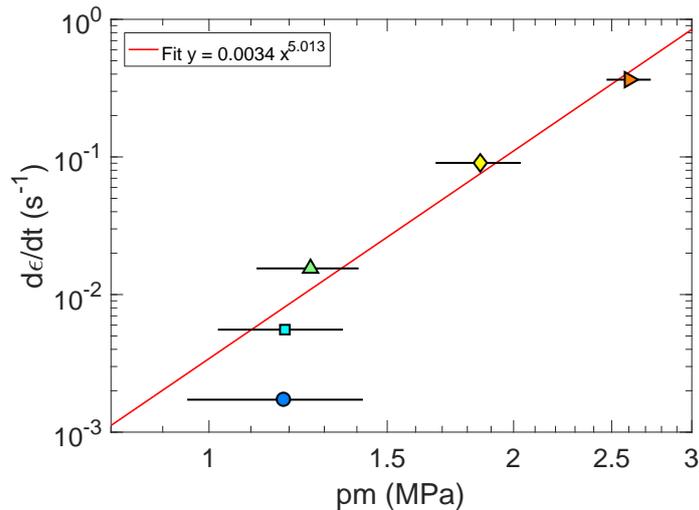


FIGURE 2.22 – Évolution de la vitesse de déformation en fonction de la pression moyenne de contact,  $p_m$ , sur de l'élastomère à température ambiante. La courbe rouge représente l'ajustement des points expérimentaux par une loi de type Norton Hoff, avec  $n = 5$  l'indice de viscoplasticité.

## 5 Bilan des études

### 5.1 Importance de la cinétique de chargement

Nous avons vu en section 1 (p. 39) que la cinétique de chargement pouvait significativement modifier la réponse en relaxation mesurée. Un chargement à vitesse de déformation constante garanti une mesure indépendante de la profondeur d'indentation alors qu'un chargement à taux de charge identique ne le permet pas. Dans ce dernier cas et pour la caractérisation de solides VEL, les essais doivent être réalisés avec le même temps de chargement indépendamment de la profondeur d'indentation. Cependant, une attention particulière devra être portée à l'utilisation de ce type de méthode dans le cas de comportement mécanique affectés par l'histoire de chargement.

### 5.2 Effet de la vitesse de déformation

L'effet de la vitesse de déformation lors du chargement a été discuté au travers d'études expérimentales réalisées sur du PMMA et sur un élastomère ainsi que d'une étude analytique sur un modèle VEL. Les résultats des deux approches sont cohérentes en terme de tendance bien que l'atténuation de la contribution visqueuse **mesurée expérimentalement** soit moins prononcée que ce que prévoit le modèle VEL dans le cas du PMMA.

Une explication de ce phénomène provient du fait que le champ de déformation induit par la pointe Berkovich n'est pas homogène. Certaines zones proches de la pointe peuvent être déformées plastiquement – ou viscoplastiquement – alors que d'autres, situées à l'intérieur du matériau ne sont sollicitées que de manière élastique – ou viscoélastique. Il est donc difficile de savoir *a priori* quel comportement domine.

Les résultats obtenus donnent un éclairage nouveau sur la quantification des composantes de déformation élastique et plastique en indentation. Nous avons postulé un modèle linéaire visco-

élastique que nous avons ensuite confronté à l'expérience. Pour l'élastomère, la réponse obtenue se rapproche de la formulation du modèle VEL sur la plage de sollicitation étudiée. Nous pouvons donc en conclure que l'hypothèse de départ est vérifiée. Le spectre de relaxation obtenu est composé d'une contribution principalement viscoélastique.

Néanmoins, les résultats expérimentaux dévient du modèle VEL pour les très faibles vitesses de déformation, ce qui est sûrement causé par une vitesse de déformation non-constante imposée lors du chargement.

Pour le PMMA, l'hypothèse de VEL n'est pas adaptée – ce qui est communément admis dans la littérature [76, 21] – comme discuté en section 4.1.2 (p. 59). Nous pouvons donc interpréter la déviation au modèle comme un **signe de viscoplasticité**. Ainsi l'amplitude de la déviation serait gouvernée par le rapport de contribution *viscoplastique*/viscoélastique.

L'utilisation d'un modèle numérique éléments finis pourrait permettre de quantifier ce rapport de contribution qui dépendrait des paramètres plastique –  $\sigma_y$  –, viscoplastique –  $m$  – et viscoélastique –  $G_i$  et  $\lambda_i$ .

### 5.3 Dérive thermique

Nous avons pu mettre en évidence les limitations concernant la dérive thermique sur les mesures de relaxation. Même en présence d'un système très stable tel que le SA2<sup>®</sup> – avec des niveaux de dérive de l'ordre de  $0,015 \text{ nm.s}^{-1}$  à température ambiante – le temps de maintien à une profondeur de pénétration de 500 nm ne peut pas excéder 1000 s afin de garantir une déviation inférieure à  $\pm 5 \%$  sur la mesure du module de relaxation.

Dans tous les cas, l'obtention de données fiables en relaxation pour des temps relativement long – de l'ordre de l'heure – n'est pas réalisable en maintenant le déplacement constant.

### 5.4 Vers une caractérisation des énergies d'activation

La caractérisation des comportements dépendants du temps peut également révéler les énergies à mettre en jeu pour déclencher un phénomène physique. Cette mesure est appelée énergie d'activation – comme nous l'avons définie en section 1.2.6 du chapitre 1 (p. 11). Celle-ci est souvent liée à un mécanisme physique intrinsèque au matériau. Dans le cas des polymères thermoplastiques amorphes, cette énergie peut par exemple être affiliée à une rotation des chaînes monomères, à faible température [84] ou au mouvement relatif des chaînes avec l'augmentation du volume libre, à haute température [5, 84]. Dans le cas des métaux, cette énergie peut être liée à des phénomènes de diffusion [17]. Dans le chapitre 3 nous aborderons l'essai de relaxation en température pour mettre en lumière les types de résultats que nous pouvons obtenir.

### 5.5 Vers une mesure de la relaxation aux temps longs

En réponse à la discussion de la section 5.3 (p. 64), il s'avère que le maintien de l'aire de contact constante lors d'un essai d'indentation reste le critère le plus contraignant de l'essai de relaxation. Nous proposons dans le chapitre 4 une méthode permettant d'atteindre des temps de maintien de l'ordre de l'heure sans effet de la dérive sur la mesure en relaxation.

## Chapitre 3

# Application de l'essai de relaxation à déplacement constant à haute température

## 1 Méthode expérimentale

### 1.1 Dispositifs expérimentaux

#### 1.1.1 XPCLim<sup>®</sup>

Nous disposons d'un nanoindenteur XPCLim<sup>®</sup> de la société MTS – maintenant KLA Tencor, Milpitas, Californie. Cet instrument fonctionne sous plus forte charge que le SA2<sup>®</sup> – à savoir 450 mN avec une résolution de 10nN. La mesure de déplacement est capacitive et a pour résolution 0,5 nm. La particularité de cet indenteur est d'être placé dans une chambre pouvant atteindre des températures de -50 °C à 100 °C. Cet instrument fonctionne également avec le mode CSM. Les essais sont réalisés avec un pointe Berkovich.

#### 1.1.2 Ti950<sup>®</sup>

Nous avons eu l'opportunité de collaborer avec Mathilde Laurent-Brocq de l'Institut Chimie et Matériaux Paris Est – ICMPE – autour du projet de nanoindentation à hautes températures. Les travaux ont été effectués sur le nanoindenteur Bruker Ti950<sup>®</sup>. Cet instrument a été détaillé en section 2.4 (p. 33). Il est équipé du module de chauffage Nova<sup>®</sup> qui permet d'atteindre des températures de l'ambiante jusqu'à 500 °C. La force maximum d'indentation est de 14 mN avec une résolution de 1 nN. Le déplacement est mesuré avec une résolution de 0,02 nm. Un module dynamique est également disponible sur cette appareil.

En raison de la conception du système, le support de la pointe – qui la relie au transducteur – possède un rapport d'aspect très élevé. La longueur de cette partie est de l'ordre de 2 à 3 cm alors que son diamètre n'excède pas le millimètre. De ce fait, la moindre déviation de son axe par rapport à la normale de la surface de l'échantillon peut causer une augmentation de la complaisance du système. Les résultats présentés par la suite ont été corrigés par la complaisance du nanoindenteur.

Cette dernière est calculée de telle manière à obtenir un rapport  $F/S^2$  indépendant de la profondeur d'indentation  $h$  [85].

### 1.1.3 Mesure de la raideur de contact

La raideur de contact a été mesurée pour tous les essais par le mode CSM. Les paramètres d'utilisation sont donnés dans le tableau 3.1.

TABLE 3.1 – Paramètres du mode CSM utilisés dans les différentes configurations pour les mesures à hautes températures.

Échantillons	PMMA	AA1050
Indenteurs	XPCLim <sup>®</sup>	Ti950 <sup>®</sup>
Fréquence (Hz)	32	200
Amplitude (nm)	4	0.4 - 1

### 1.1.4 Mesures dynamiques – DMA –

Les mesures dynamiques ont été effectuées en traction - compression sur le système 01dB de Metravib<sup>®</sup>. Six balayage en température de -150 °C à 150 °C avec un taux de  $\pm 1$  °C.min<sup>-1</sup> ont été effectués. durant chacun de ces balayages, la fréquence de sollicitation est modifiée avec pour valeurs : 0,1 Hz, 0,3 Hz, 1 Hz, 3 Hz, 10 Hz et 30 Hz. L'amplitude de déplacement imposé était de  $\pm 5$   $\mu$ m.

## 1.2 Matériaux

### 1.2.1 PMMA

Les propriétés du matériaux sont données en section 2.2.1 du chapitre 2 (p. 44).

### 1.2.2 Alliage d'aluminium – AA1050 –

Les alliages d'aluminium de série 1000 sont des matériaux de corroyage composés d'au moins 99 % d'aluminium. La composition chimique du AA1050 est donnée dans le tableau 3.2. Le matériau étudié dans cette section était initialement laminé à chaud puis a subit un recuit à 300 °C pendant 3h afin de garantir un état recristallisé. Son module d'élasticité est de 69 GPa et son coefficient de Poisson,  $\nu = 0,33$ .

TABLE 3.2 – Composition chimique de l'alliage d'aluminium AA1050.

Al	Fe	Si	Zn	Cu	Mn	Mg	Ti	Autres
99,05	0,40	0,25	0,07	0,05	0,05	0,05	0,05	0,03

### 1.3 Procédure expérimentale

#### 1.3.1 Types de chargements

Les différents types de chargements utilisés sont recensés dans le tableau 3.3. Dans le cas des essais effectués avec le XPClim<sup>®</sup>, la vitesse de déformation est imposée en effort  $-\dot{F}/F$ . Cependant, pour des raisons d'homogénéisation toutes les valeurs de vitesses de déformation sont notées avec le formalisme  $\dot{h}/h$ . Pour tous nos essais, nous retrouvons bien la relation 1.53.

#### 1.3.2 Asservissement du maintien à déplacement constant

**PMMA** Les paramètres d'asservissement du déplacement en relaxation pour les essais en température sur le PMMA sont donnés dans le tableau A.3 de l'annexe A (p. 132). La figure 3.1 représente l'évolution du déplacement et de la force, en fonction du temps, lors de la transition chargement - maintien.

Le début du segment de relaxation pris en compte est le même que pour les essais à température ambiante sur le PMMA et l'élastomère – voir section 2.3.3 du chapitre 2 (p. 50). De ce fait, le début du segment de relaxation contient 0,1 s de maintien à charge constante. Comme il est indiqué sur la figure 3.1 par la zone grisée, seules les données obtenues après 4 secondes de maintien sont représentatives du comportement en relaxation du matériau.

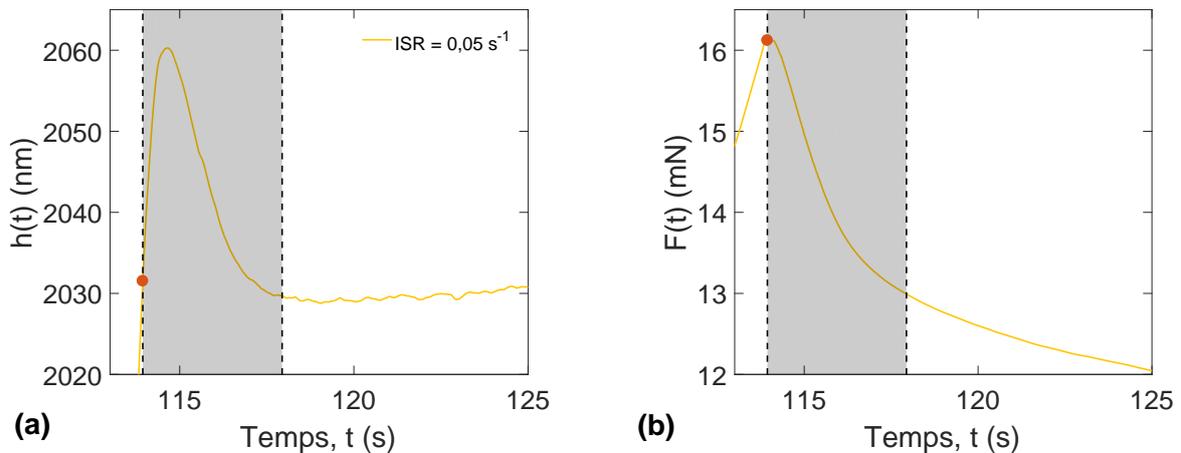


FIGURE 3.1 – Exemple d'un asservissement à déplacement constant sur le PMMA à 60 °C : Profondeur de pénétration (a) et charge (b) – en fonction du temps. Le symbole ● marque la localisation du début du segment de relaxation. Les zones grisées représentent la période de stabilisation de l'asservissement – environ 4 s.

**AA1050** Dans le cas de l'alliage d'aluminium, la procédure de chargement et l'asservissement utilisés pour les essais sont détaillés en annexe A (p. 129).

La figure 3.2.a et .b représentent l'évolution de la profondeur de pénétration et de la force en fonction du temps au niveau de la transition chargement - maintien, dans le cas de l'indentation de l'alliage d'aluminium à 300 °C. Nous remarquons, sur la figure 3.2.a, la forme en double pentes introduite sur l'asservissement. Le symbole rouge représente la localisation du début du segment

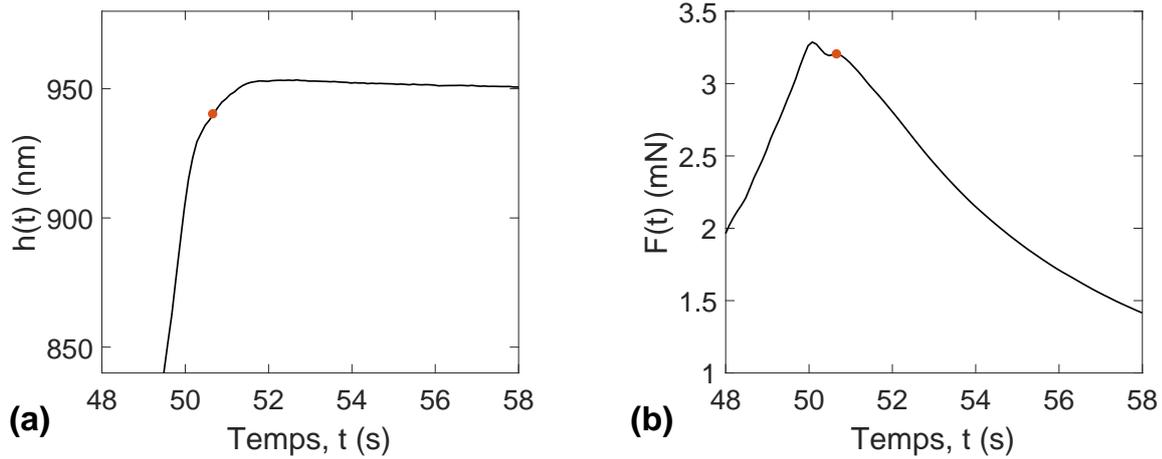


FIGURE 3.2 – Exemple d’un asservissement à déplacement constant sur l’alliage d’aluminium AA1050 à 300 °C : Profondeur de pénétration (a) et charge (b) – en fonction du temps. Le symbole ● marque la localisation du début du segment de relaxation.

TABLE 3.3 – Procédures expérimentales développées pour les essais d’indentation à hautes températures.  $h_1$  et  $t_m$  correspondent à la profondeur et au temps de maintien, respectivement.

Hautes Temp.			Exponentiel ( $\alpha = cst$ )		
Indenteurs	Matériaux	Températures (°C)	Cinétiques ( $s^{-1}$ )	$h_1$ (nm)	$t_m$ (s)
XPClim <sup>®</sup>	PMMA	40 / 50 / 60 / 80	0,005 / 0,025 / 0,05	2000	600
Ti950 <sup>®</sup>	AA1050	25 / 100 / 200 / 300	0,15	900	60

de relaxation. En raison du caractère très plastique du matériau à haute température, nous ne pouvons pas nous permettre d’avoir le moindre dépassement de la consigne lors de la transition chargement - maintien. La vitesse de déformation était alors réduite en fin de chargement pour accompagner le mouvement de la pointe – voir annexe A (p. 129).

Nous verrons dans la section 2.2.3 (p. 73) que la contribution viscoplastique lors du segment de relaxation est diminuée, en raison de la – relativement – faible vitesse de déformation appliquée lors du chargement.

### 1.3.3 Dérive thermique

Nous reportons sur la figure 3.3.a les dérives obtenues sur la silice fondue avant chaque essai sur le PMMA avec la méthode de double cycle charge-décharge [86] ainsi que les estimations faites au travers de la mesure de raideur de contact lors du maintien à déplacement constant sur le PMMA – voir la section 2.3.4 du chapitre 2 (p. 51). Nous remarquons que les niveaux de dérives sont bien du même ordre de grandeur pour les deux méthodes de caractérisation, ce qui conforte l’estimation de la dérive via la raideur de contact. De plus, ceux-ci restent relativement bas pour l’ensemble des températures, mis à part les essais à 50 °C.

Les dérives obtenues pour les essais en température sur l’alliage d’aluminium AA1050 sont

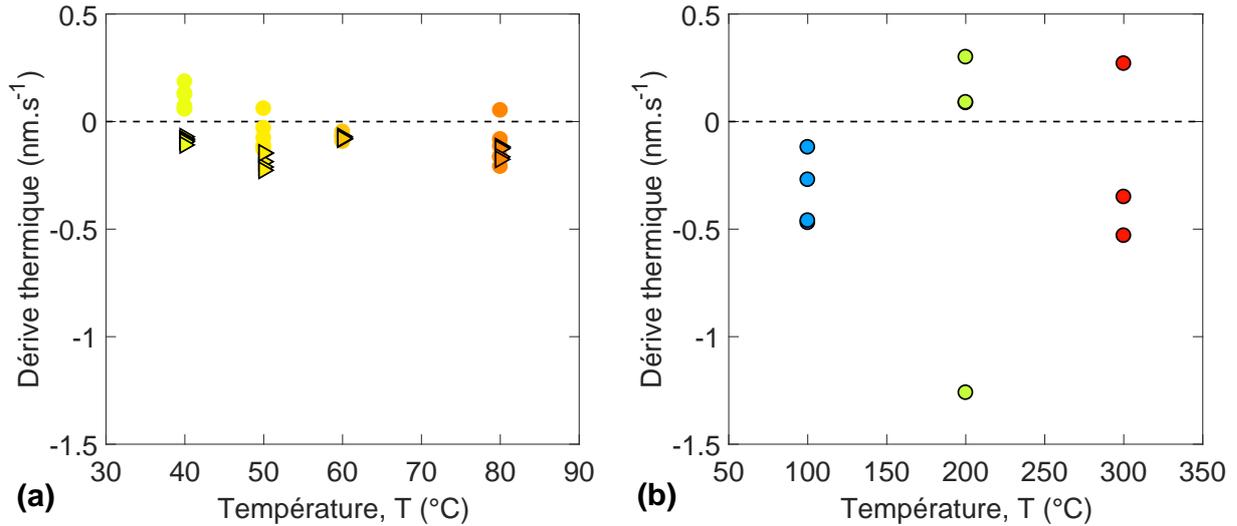


FIGURE 3.3 – Mesures des dérivées : (a) obtenues sur la silice avant d’effectuer les essais sur le PMMA – symboles ● – et dérivées déterminées par la mesure de la raideur de contact lors du maintien à déplacement constant – symboles ▷ – voir section 2.3.4 (p. 51); (b) obtenues lors du maintien de la force à  $2 \mu\text{N}$  sur AA1050 avant l’essai.

représentées figure 3.3.b. La dérive thermique est évaluée avant chaque essai en maintenant une force de  $2 \mu\text{N}$  pendant 60 s – comme expliqué en section 2.3.4 du chapitre 2 (p. 51) – et le calcul de dérive est effectué sur les 20 dernières secondes du maintien [68]. Ils sont, de manière générale, un ordre de grandeur au dessus que ceux obtenus entre 40 et 80 °C, ce qui est également relaté par Schuh *et al.* [67]. Nous verrons dans la section 2.2.2 (p. 73) que la mesure des propriétés en relaxation devient assez limitée pour ces ordres de grandeur de dérive.

La figure 3.4 représente les pourcentages d’erreurs atteignables sur la mesure de l’aire de contact – lors du maintien à déplacement constant – en fonction du temps de maintien et des taux de dérive normés par la profondeur d’indentation lors du maintien. Nous faisons l’hypothèse que la dérive est constante sur la totalité de l’essai. L’ensemble des dérivées caractérisées dans cette section sont représentées et mise en regard des dérivées mesurées à température ambiante.

Les taux de dérive des essais sur PMMA et élastomère étant très répétables, seuls les moyennes sur 5 essais sont illustrées. Pour l’alliage d’aluminium AA1050, toutes les valeurs de dérivées sont représentées. Cette représentation permet de se rendre compte que les essais de relaxation à hautes températures sur l’alliage AA1050 sont difficilement exploitables au delà de 60 s et même avant – avec des potentielles erreurs de plus de 15 % sur le calcul de l’aire de contact.

Afin de minimiser l’erreur potentielle sans limiter le temps de maintien, nous pouvons soit diminuer le niveau de dérive, soit augmenter la profondeur d’indentation. Il est difficile de jouer directement sur le niveau de dérive lors d’un essai et descendre en dessous de  $0,01 \text{ nm}\cdot\text{s}^{-1}$  est – à notre connaissance – impossible. Augmenter la profondeur de pénétration semble être la solution la plus simple à mettre en œuvre mais ceci n’est pas forcément compatible avec l’intérêt principal de la nanoindentation – à savoir la caractérisation aux faibles profondeurs.

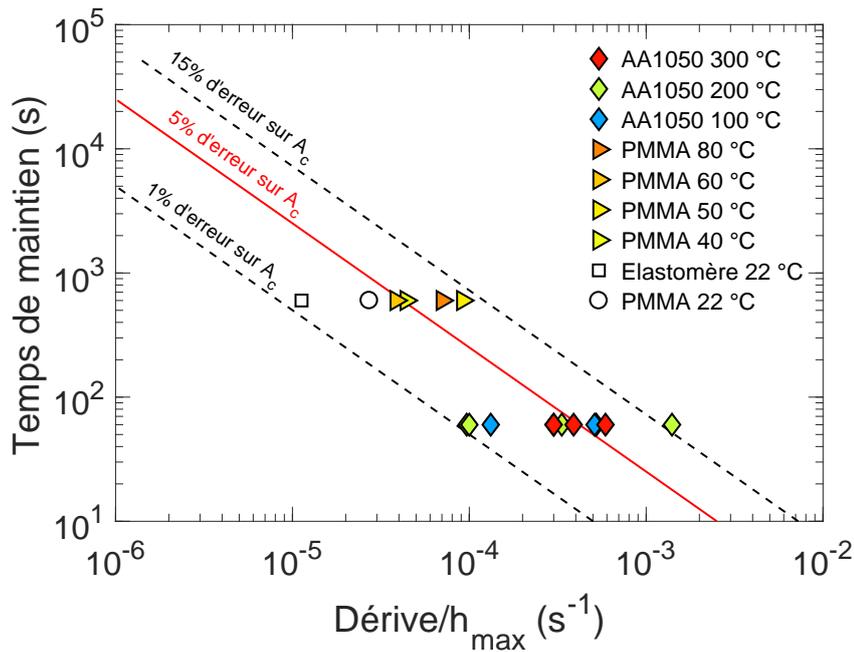


FIGURE 3.4 – Erreur faite sur le calcul de l’aire de contact – due à la dérive thermique – tracée en fonction du temps de maintien et du rapport taux de dérive sur profondeur d’indentation maximum. Les taux de dérive des essais sur PMMA et élastomère étant très répétables, seuls les moyennes sur 5 essais sont illustrées. Pour l’alliage d’aluminium AA1050, toutes les valeurs de dérives sont représentées.

### 1.3.4 Vérification des mesures sur Ti950<sup>®</sup>

**Mesures sur silice fondue** Des mesures de dureté et de module d’élasticité ont été réalisées sur de la silice fondue à 25, 100 et 400 °C avec le montage haute température Nova<sup>®</sup> du nanoindenteur Bruker Ti950<sup>®</sup>. La figure 3.5 représente l’évolution – en fonction de la température – de la dureté et du module d’élasticité normalisés par les propriétés à température ambiante. Les symboles ronds rouges représentent les résultats de notre étude calculés à partir du modèle de Loubet *et al.* – décrit en section 2.2.4 du chapitre 1 (p. 23). La hauteur du défaut de pointe estimée sur la silice fondue à température ambiante est  $h_0 = 12$  nm. Nous trouvons une dureté de 9 GPa et un module d’élasticité réduit,  $E'^*$ , de 71 GPa à 25 °C ce qui correspond aux données de la littérature [73, 67, 87]. L’évolution des propriétés mécaniques avec la température sont cohérentes avec les données de la littérature sur le sujet, notamment Schuh *et al.* [67] et Trenkle *et al.* [87] en indentation ainsi que Spinner [88] et Marx *et al.* [89] par caractérisation dynamique à haute fréquence – 37 kHz.

L’obtention de données fiables par ce système de mesure est donc vérifiée à hautes températures. La température du couple pointe - échantillon au niveau du contact semble être cohérente avec les mesures effectuées en dessous et au dessus de l’échantillon sur les platines.

**Asservissement de la température** L’effet de l’asservissement de la température sur les mesures de l’effort en relaxation – effectuées sur la silice fondue – à 100 °C et 400 °C est représenté les figures 3.6 et 3.7, respectivement. Dans le cas de l’asservissement à 100 °C, le maintien de la

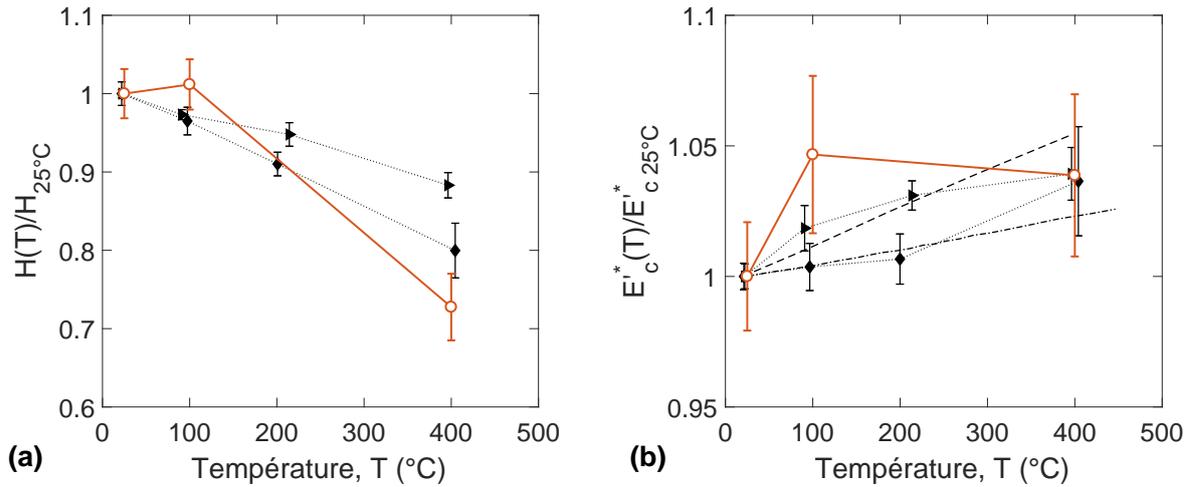


FIGURE 3.5 – Résultats et littérature sur la silice fondue : (a) Module d'élasticité réduit de contact,  $E_c^*$ , normé sur le module mesuré à température ambiante. Les symboles  $\circ$  représentent les résultats de notre étude, les barres d'erreur représentent l'écart type sur 5 essais ; les symboles  $\blacktriangleright$  représentent les résultats obtenus par Trenkle *et al.* [87] ; Les symboles  $\blacklozenge$  représentent des résultats obtenus par Schuh *et al.* [67] ; La courbe en tiret représente des résultats de Spinner [88] et la courbe en trait mixte représente les résultats de Marx *et al.* [89]. (b) Dureté normée sur la dureté mesurée à température ambiante. La même notation que pour le graphique (a) a été adoptée – seules les données de Trenkle *et al.* et Schuh *et al.* sont disponibles pour la dureté.

température cible est effectué avec une précision de  $\pm 0,005$  °C sur le temps de l'essai, ce qui est très satisfaisant. Dans le cas du maintien à 400 °C, l'asservissement peut atteindre des précisions identiques mais dans certain cas, nous observons des amplitudes de  $\pm 0,037$  °C autour de la valeur cible – voir figure 3.7. Les récents articles publiés en nanoindentation à haute température reportent des précisions d'asservissement de l'ordre de  $\pm 0,05$  °C au niveau de la pointe [49]. Le système utilisé dans cette étude ne comporte pas de thermocouple au plus proche de la pointe cependant, les variations de température mesurées autour de l'échantillon se révèlent très stables.

Les fluctuations de température ne semblent pas être corrélées aux dérives observées sur les signaux de force. Ces dernières sont reliées à la stabilisation locale de la température au niveau du contact [65]. De plus, les apparitions de perturbations sur la courbe d'effort sont directement liées à des sources de vibrations extérieures – comme noté sur les figures 3.6 et 3.7.

## 2 Résultats

### 2.1 Application au PMMA

Nous nous intéressons maintenant à l'influence de la température sur le comportement en relaxation du PMMA en indentation. Comme il est mentionné dans le tableau 3.3, nous faisons varier deux paramètres qui sont la vitesse de déformation lors du chargement et la température. Ainsi, nous présenterons l'effet de la température sur la sensibilité à la vitesse de déformation – au travers des essais de relaxation – et nous interpréterons l'évolution du module de relaxation par

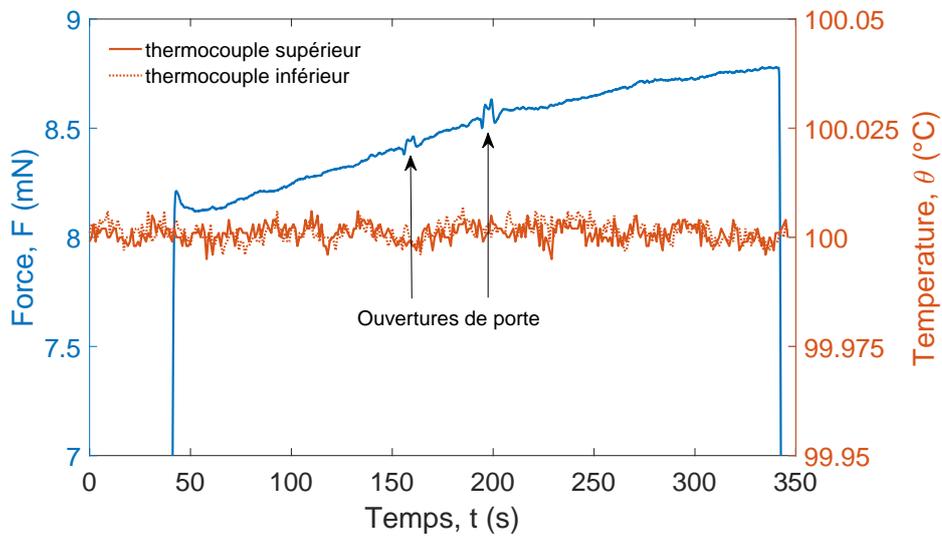


FIGURE 3.6 – Évolution de l’effort lors du maintien à déplacement constant sur la silice – axe de gauche, en bleu – et des températures mesurées au dessus et en dessous de l’échantillon – axe de droite, en rouge – pour une consigne à 100 °C.

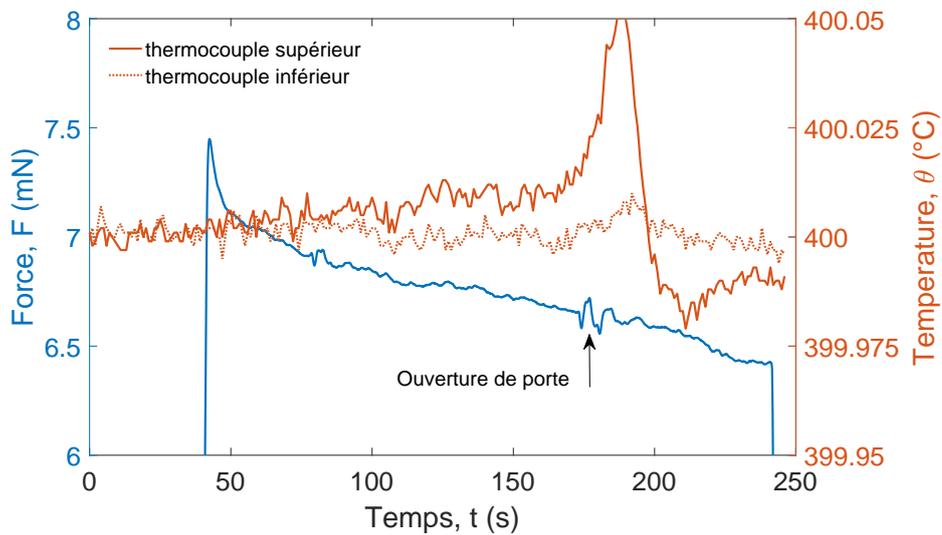


FIGURE 3.7 – Évolution de l’effort lors du maintien à déplacement constant sur la silice – axe de gauche, en bleu – et des températures mesurées au dessus et en dessous de l’échantillon – axe de droite, en rouge – pour une consigne à 400 °C.

l'équivalence temps-température détaillée en section 1.2.6 (p. 11).

### 2.1.1 Modules et spectres de relaxation en température

La figure 3.8 représente l'ensemble des essais de relaxation réalisés en température sur le PMMA. Les graphiques a, c, e et g de la figure 3.8 représentent les modules de relaxation obtenus à 40, 50, 60 et 80 °C, respectivement, après un chargement sous trois vitesses de déformation différentes –  $\dot{h}/h = 0,05, 0,025$  et  $0,005 \text{ s}^{-1}$ . Les graphiques b, d, f et h représentent, quand à eux, les approximations du premier ordre des spectres de relaxation correspondants. Les approximations du premier ordre des spectres de relaxation sont obtenues par l'équation 1.13 après avoir effectué une moyenne glissante sur 5 points des courbes de module de relaxation – voir annexe B (p. 135). Même avec ce traitement les approximations obtenues sont très dispersées après 10 s de maintien.

Nous remarquons la même tendance d'atténuation du spectre pour les temps de relaxation courts – comme nous avons pu le voir à température ambiante sur la figure 2.13. L'amplitude des spectres décroît légèrement avec la température de la même manière que le module de relaxation.

## 2.2 Application à l'alliage d'aluminium – AA1050 –

### 2.2.1 Contrainte d'écoulement plastique

La contrainte d'écoulement plastique correspond à la contrainte représentative  $\sigma_r$  définie par l'équation 1.57 dans la section 2.3.2 du chapitre 1 (p. 27). Celle-ci est utilisée pour quantifier la relaxation des matériaux élastoplastiques tels que la silice ou les alliages d'aluminium.

### 2.2.2 Évolution de la contrainte d'écoulement dans le temps et en température

La figure 3.9 représente l'évolution de la contrainte d'écoulement  $\sigma_r$ , calculée par l'équation 1.57, en fonction du temps de relaxation pour différentes températures d'essais.

Les essais ont été réalisés avec une période de maintien de 60 s mais au vue des dérives subies, seules les 25 premières secondes de relaxation sont représentées. Pour les essais à 300 °C, la dérive en déplacement se fait sentir même à partir de 10 s de maintien. La contrainte d'écoulement chute peu entre l'ambiante et 100 °C alors que celle-ci chute de 40 % entre 100 et 200 °C. De plus la contribution viscoplastique durant la relaxation est bien plus importante à 200 et 300 °C. Ce résultat est en accord avec l'activation des mécanismes de fluage exprimés dans la figure 1.9 du chapitre 1. En terme d'ordre de grandeur, nous nous trouvons sur la cartographie dans la zone de fluage dislocation avec :  $9 \times 10^{-4} < \sigma_r/E < 1,5 \times 10^{-3}$  et  $0,3 < T/T_m < 0,6$  – la température de fusion de l'alliage AA1050 étant d'environ 660 °C.

### 2.2.3 Estimation de la vitesse de déformation plastique

Lors d'un essai de relaxation uniaxial, la déformation appliquée au solide est constante. Ainsi, en considérant un modèle viscoplastique de type Bingham-Norton – détaillé dans le tableau 1.3 en section 1.3.1 du chapitre 1 (p. 12) et rappelé sur la figure 3.10b –, nous pouvons écrire les relations :

$$\epsilon = \epsilon_e + \epsilon_{vp} = cst \tag{3.1a}$$

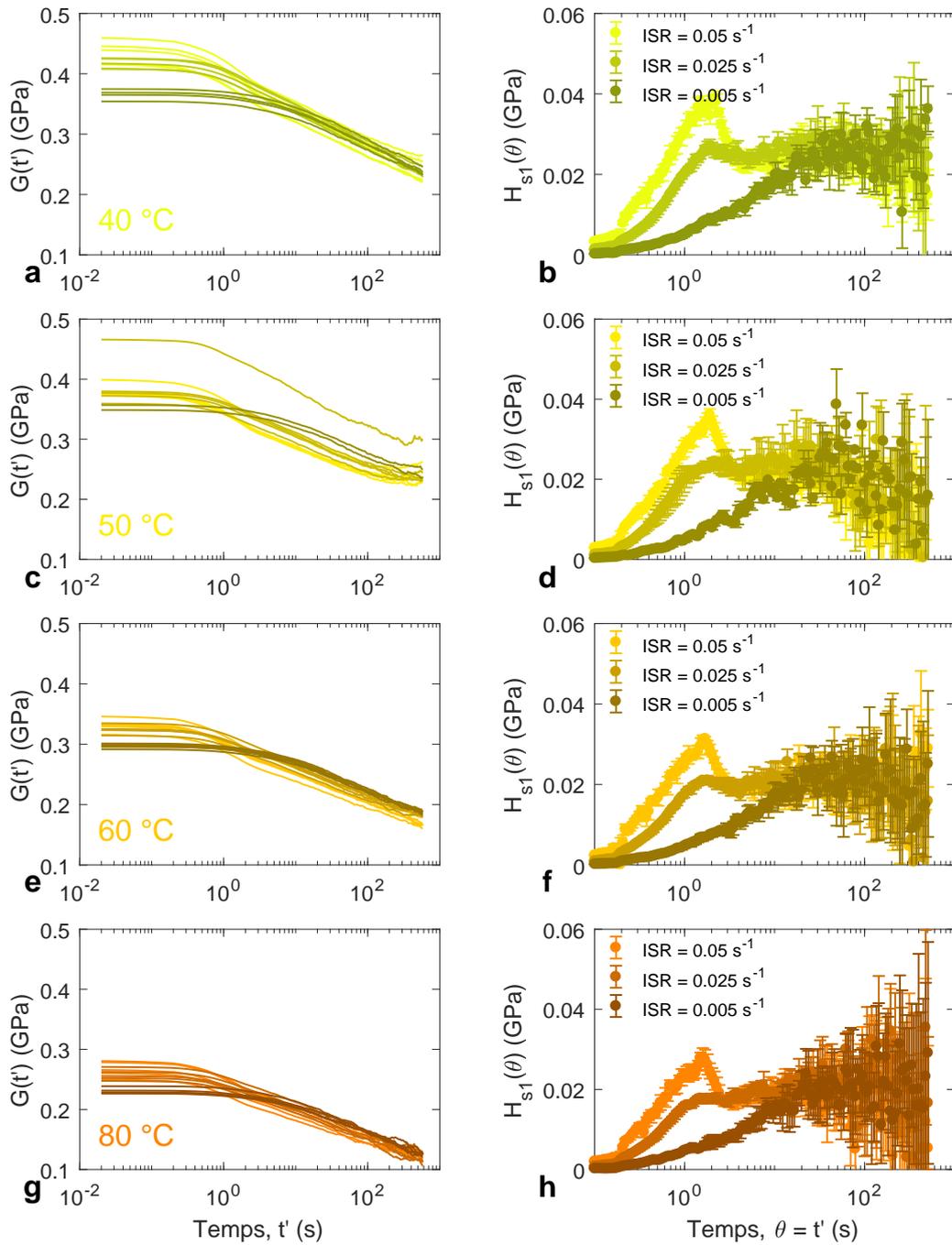


FIGURE 3.8 – Modules et spectres de relaxation du PMMA sollicité à différentes vitesses de déformation lors du chargement et à différentes température.

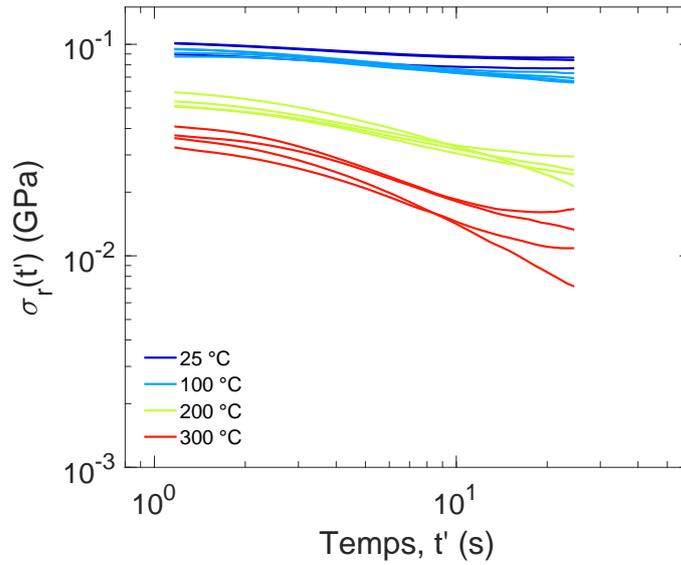


FIGURE 3.9 – Contrainte représentative définie par l'équation 1.57 en fonction du temps de relaxation.

$$\sigma = \sigma_e = \sigma_{vp} \quad (3.1b)$$

Avec  $\epsilon_e$  et  $\epsilon_{vp}$  les déformations de la partie élastique et viscoplastique, associées à leur contrainte  $\sigma_e$  et  $\sigma_{vp}$ .

En dérivant l'expression 3.1a par rapport au temps, nous obtenons la relation suivante :  $\dot{\epsilon}_e = \dot{\epsilon}_{vp}$ . Nous savons également que la contrainte élastique s'exprime, sous une sollicitation uniaxiale, telle que :  $\epsilon_e = \sigma_e/E$ . Il est alors possible d'exprimer la vitesse de déformation plastique à partir des propriétés élastiques du solide.

Dans le cas de l'essai de relaxation en indentation, nous considérons également que la déformation au niveau du contact est constante – voir section 2.3.5 du chapitre 1 (p. 31). Ainsi, avec le même modèle viscoplastique, la relation 3.1a reste inchangée. Il nous reste alors à caractériser le champ des contraintes sous la pointe afin d'évaluer la vitesse de déformation plastique lors de l'essai.

Pour cela, nous représentons sur la figure 3.10.a la répartition schématique des volumes sollicités de manière hydrostatique, viscoplastique et élastique sous la pointe. Cette représentation est fondée sur le modèle de Hill, repris par Johnson [90], sur l'expansion d'une cavité hémisphérique plastique sous la pointe.

En considérant que le PGS est respecté lors du maintien de l'aire de contact constante – voir section 2.3.5 du chapitre 1 (p. 31) – la géométrie du champ de contrainte sous la pointe **reste géométriquement similaire**. Ainsi, nous pouvons écrire  $\sigma_r = \Sigma_e = \Sigma_{vp}$  avec  $\sigma_r$ , la contrainte représentative totale, et  $\Sigma_e$  et  $\Sigma_{vp}$  les contraintes représentatives dans les zones élastique et viscoplastique, respectivement.

De la même manière que pour le développement uniaxial, nous pouvons donc écrire la vitesse de déformation viscoplastique lors du maintien à aire de contact constante en indentation, telle que :

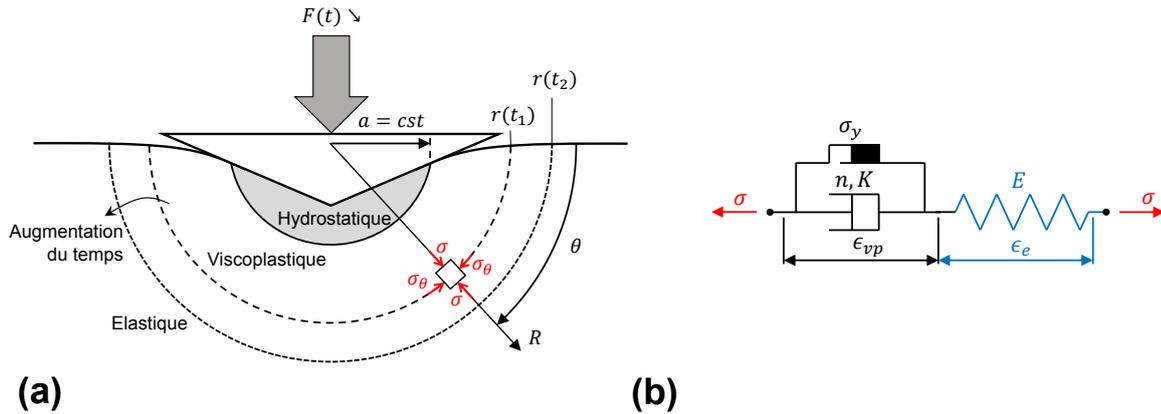


FIGURE 3.10 – (a) Schéma représentatif de l'indentation d'un solide viscoplastique, d'après [15]. Un noyau hémisphérique sous la pointe est supposé être soumis à une pression hydrostatique égale à la pression moyenne de contact  $pm$ . La limite entre le comportement viscoplastique et élastique du solide est également représentée par une cavité hémisphérique de rayon  $r(t)$ . (b) Modèle de Bingham-Norton utilisé pour caractériser les propriétés viscoplastiques du matériau.

$$\dot{\epsilon}_{vp} = \frac{1}{E} \frac{d\sigma_r}{dt} \quad (3.2)$$

Avec  $E$  le module d'élasticité considéré indépendant du temps.

La figure 3.11 représente l'évolution la vitesse de déformation plastique définie par l'équation 3.2 en fonction de la dureté sur un graphique log - log. Le calcul des dérivées numériques nécessaire à l'évaluation de la vitesse de déformation est détaillé en annexe B (p. 135). Les courbes de couleur correspondent aux essais de relaxation de 25 à 300 °C – effectués dans cette étude – et les symboles en nuances de gris représentent les résultats obtenus par Phani *et al.* par mesure de fluage en indentation sur un alliage d'aluminium similaire – de type AA1100 [49].

Il est important de rappeler ici que la vitesse de déformation appliquée lors du chargement pour les essais de relaxation en température –  $\dot{h}/h = 0,15 \text{ s}^{-1}$  – est très inférieure à celle appliquée par Phani *et al.* [49] – voir section 1.3.1 (p. 67) et annexe A (p. 129). En effet, ceux-ci effectuent un chargement à vitesse constante égale à  $16 \text{ mN.s}^{-1}$  – soit, en fin de chargement :  $\dot{P}/P = 1 \text{ s}^{-1}$  et  $\dot{h}/h \approx 0,5 \text{ s}^{-1}$ . Il est donc normal que nous accédions à des vitesses de déformations plastiques beaucoup plus faibles.

Néanmoins, Les résultats que nous obtenons sont bien dans la tendance des données obtenues en fluage. Notamment à 100 et 200 °C. L'interprétation que nous faisons de la vitesse de déformation plastique au travers de l'équation 3.2 semble donc être équivalente à la définition classique –  $\dot{\epsilon} = \dot{h}/h$ . Nous verrons dans le chapitre 4 que la méthode fonctionne également pour la silice fondue à température ambiante – voir section 2.3.5 (p. 96).

Ainsi, l'obtention des paramètres viscoplastiques, tel que la sensibilité à la vitesse de déformation,  $m$ , et l'énergie d'activation du phénomène,  $Q$ , sont accessibles par mesure de relaxation en indentation. Nous détaillerons ce type d'applications dans la section 3.2 (p. 79).

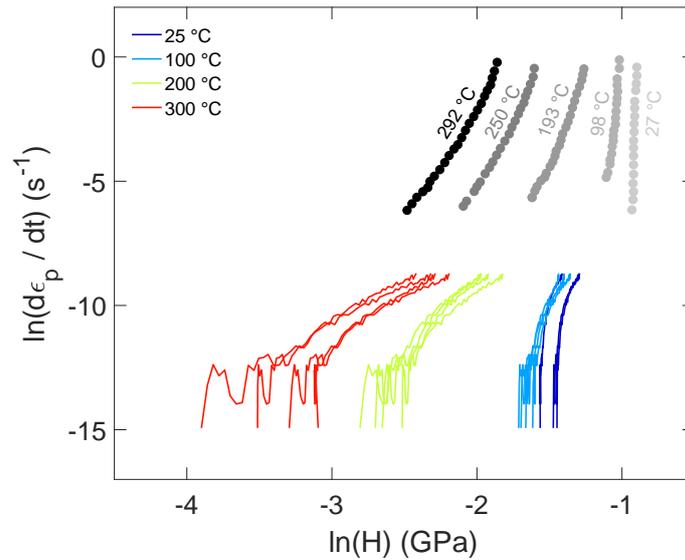


FIGURE 3.11 – Vitesse de déformation plastique en fonction de la dureté en log-log. Les symboles  $\bullet$ ,  $\bullet$ ,  $\bullet$ ,  $\bullet$  et  $\bullet$  représentent les résultats de Phani *et al.* [49] obtenus par mesure de fluage en indentation à 27, 98, 193, 250 et 292 °C, respectivement.

### 3 Discussion

#### 3.1 Caractérisation de la relaxation $\beta$ du PMMA

##### 3.1.1 Équivalence temps-température

Afin de caractériser le comportement en relaxation du PMMA sur une plus grande plage de temps – ou fréquence –, nous utilisons le principe d'équivalence temps-température énoncé en section 1.2.6 (p. 11) du chapitre 1. La figure 3.12.a représente les modules de relaxation obtenus après un chargement à  $\dot{h}/h = 0,05 \text{ s}^{-1}$  à toutes les températures d'essai.

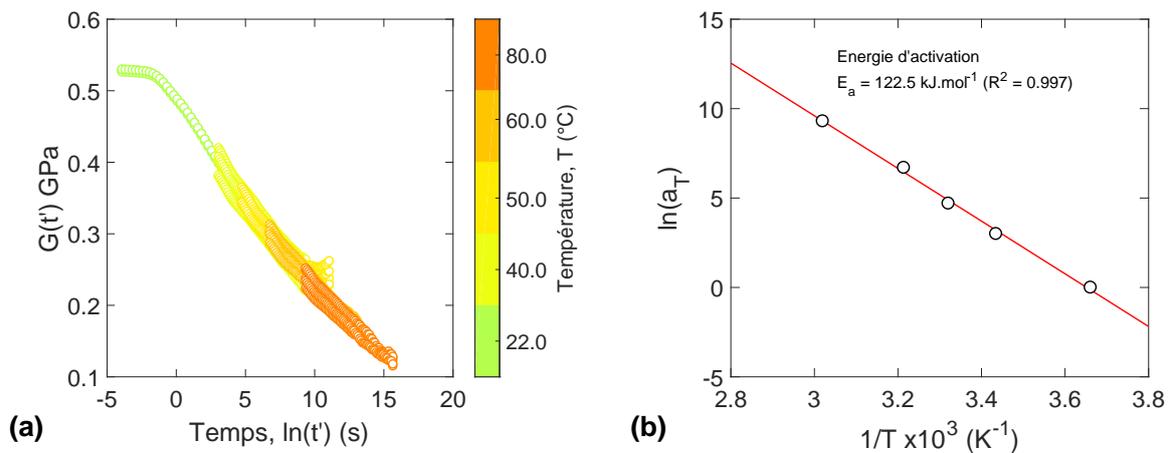


FIGURE 3.12 – Module de relaxation du PMMA en fonction du logarithme en base 10 du temps, obtenu par transposition temps-température (a) et fonction d'Arrhenius,  $\ln(a_T)$  vs.  $1/T$  obtenue pour  $T_0 = 22 \text{ °C}$  (b).

Les modules de relaxation de 40 à 80 °C sont affichés seulement après 1 s de maintien pour limiter l'effet de l'asservissement aux temps courts ainsi que l'atténuation du spectre de relaxation.

L'évolution du module de relaxation a été tracé en fonction de  $\ln(t)$  afin d'appliquer un décalage  $\ln(a_T)$  au différentes courbes. Les données à température ambiante sont les références –  $\ln(a_T) = 0$ . Les essais effectués à des températures plus élevées ont par conséquent un décalage positif.

### 3.1.2 Énergie d'activation

L'énergie d'activation du phénomène de relaxation sur un polymère vitreux – en deçà de sa température de transition vitreuse – peut s'exprimer au travers de la loi d'Arrhenius – décrite en section 1.2.6 (p. 11) du chapitre 1. La figure 3.12.b représente l'évolution du décalage  $\ln(a_T)$  en fonction de l'inverse de la température absolue. Les ronds blancs représentent les valeurs expérimentales déduites de la figure 3.12.a et la courbe rouge illustre l'ajustement par la loi d'Arrhenius. Nous trouvons une énergie d'activation de 123 kJ.mol<sup>-1</sup>.

Pour un essai de relaxation et sur la plage de température étudiée, nous devrions définir l'énergie d'activation de la relaxation  $\beta$ . Cette relaxation secondaire intervient sur le plateau vitreux, avant la température de transition vitreuse qui est, quant à elle, caractérisée par la relaxation  $\alpha$ . De nombreux travaux ont été effectués dans la littérature sur la caractérisation de ce processus secondaire de relaxation et les valeurs d'énergie d'activation mesurées sont comprises entre 71 et 176 kJ.mol<sup>-1</sup> [91].

Bergman *et al.* [92] obtiennent une énergie d'activation de 79 kJ.mol<sup>-1</sup> – en dessous de la  $T_g$  – par mesure diélectrique. Thompson [93] trouve une énergie d'activation de 176 kJ.mol<sup>-1</sup> par mesure de fluage en traction et en cisaillement sur la même plage de température [25 - 80 °C]. Iwayanagi et Hideshima [94], quant à eux, trouvent une énergie d'activation de 121 kJ.mol<sup>-1</sup> déterminée par essais dynamiques en flexion et en torsion entre 20 et 65 °C. Finalement, Read [95, 96] estime l'énergie d'activation de la relaxation  $\beta$  entre 100 et 138 kJ.mol<sup>-1</sup> sous sollicitation dynamique couplée à une mesure de la biréfringence optique sur la même plage de température.

Il est important de noter que la relaxation  $\beta$  est un processus complexe caractérisé par une large distribution de temps de relaxation et d'énergies d'activation. De ce fait, l'énergie d'activation mesurée dans cette gamme de température peut significativement varier en fonction des conditions de mesure choisies.

Néanmoins, la mesure d'énergie d'activation – relative à la relaxation  $\beta$  – obtenues par relaxation en nanoindentation est cohérente avec celles de la littérature.

### 3.1.3 Comparaison avec les essais DMA

L'utilisation de l'essai de relaxation couplée au changement de température en indentation peut nous permettre – comme nous l'avons vu ci-dessus – d'obtenir le comportement équivalent du matériau dans le temps. Nous comparons ces données aux essais dynamiques fonctionnant sur le même principe – variation simultanée de la fréquence d'excitation et de la température – et permettant d'obtenir les modules de conservation et de perte du matériau étudié. La figure 3.13

illustre les résultats obtenus par mesure DMA en traction-compression uniaxiale et les données de relaxation interconverties en module de conservation en fonction de la fréquence.

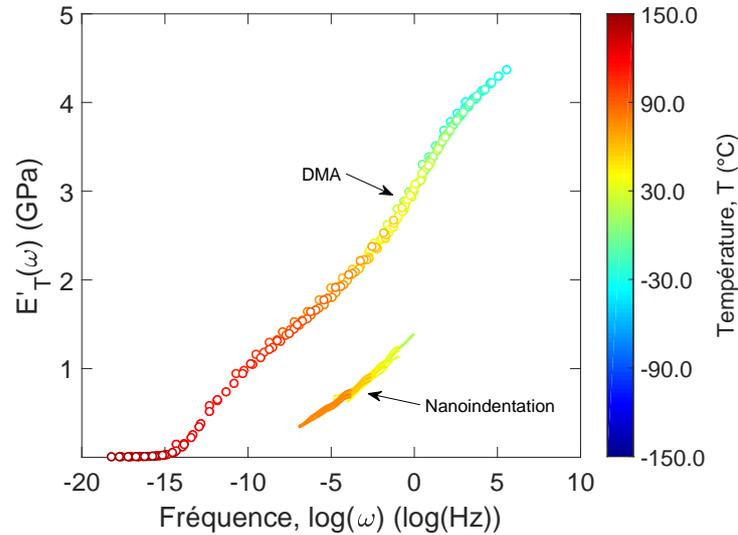


FIGURE 3.13 – Module de relaxation du PMMA en fonction du logarithme en base 10 de la fréquence de sollicitation, obtenu par transposition temps-température. La courbe en symboles ronds représente l’essai DMA et les courbes pleines représentent les résultats de l’interconversion du module de relaxation statique en module de conservation dynamique.

L’interconversion des résultats est effectuée par l’intermédiaire de l’équation 1.17 en ajustant les courbes des graphiques 3.8.a, c, e et g par un modèle de Maxwell généralisé à 4 temps de relaxation – cf équation 1.9. Le modèle utilisé n’a pas pour but de décrire précisément et de manière physique le comportement du PMMA mais permet d’extraire la tendance de l’évolution du module de relaxation avec la fréquence de sollicitation. Les résultats de l’indentation sont également convertis en module de conservation par l’expression 1.6b.

De la même manière qu’en section 3.1.2 (p. 55), le module de conservation mesuré par nanoindentation est plus faible que celui estimé en DMA, dû au fait que la déformation équivalente en indentation est beaucoup plus élevée que celle appliquée lors de l’essai dynamique. En revanche, la tendance est plutôt bien rendue sur l’intervalle de fréquence balayé. L’essai de relaxation en indentation est donc prometteur quant à l’obtention de la variation de module d’élasticité avec la fréquence d’excitation – ou la température d’essai.

Malheureusement aucun essai n’a pu être réalisé pour des températures supérieures. Par conséquent nous n’avons pas eu accès à la mesure de la relaxation  $\alpha$  pour le PMMA.

## 3.2 Comportement viscoplastique de l’aluminium

### 3.2.1 Indice de viscoplasticité

Les indices de viscoplasticité sont calculés pour les quatre températures d’essais étudiées et sont confrontés aux données estimées à partir des résultats en fluage – voir tableau 3.4. Les indices obtenus via la mesure en relaxation sont systématiquement inférieurs à ceux obtenus par fluage. Ceci

TABLE 3.4 – Indice de viscoplasticité  $n$  en fonction de la température pour les alliages d'aluminium AA1100 et AA1050. Les valeurs relatives à l'alliage AA1100 sont estimées à partir des données présentées dans la figure 3.11

Températures (°C)	25-27	98-100	193-200	292-300
AA1100 (Fluage)	177	53	14	9
AA1050 (Relaxation)	27,2	16,3	6,6	4,1

est principalement dû aux plus faibles vitesses de déformation plastique induites par un chargement plus lent – pour les essais de relaxation.

Afin de comparer correctement nos résultats avec la littérature, il faudra être capable d'effectuer un chargement rapide suivi d'un maintien à déplacement constant – **sans dépassement de la consigne** – comme il a été souligné en section 1.3.1 (p. 67).

### 3.2.2 Énergie d'activation

**Estimation par les essais de relaxation** La relaxation – ou fluage – à haute température des alliages d'aluminium est connue pour présenter un comportement de type Arrhenius [49] qui peut s'écrire en terme de vitesse de déformation plastique, tel que :

$$\dot{\epsilon}_{vp} = \dot{\epsilon}_0 \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (3.3)$$

Avec  $\dot{\epsilon}_0$ , une vitesse de déformation de référence,  $Q$ , l'énergie d'activation à une contrainte donnée,  $R$ , la constante des gaz parfaits et  $T$ , la température absolue. Des ajustements des courbes à 200 et 300 °C ont été effectués par l'équation 3.3 – ceux-ci sont représentés en traits pointillés sur la figure 3.14.a.

Afin de déterminer la valeur de l'énergie d'activation,  $Q$ , nous traçons l'évolution du logarithme népérien de la vitesse de déformation plastique en fonction de l'inverse de la température absolue, à une dureté constante [49] – voir figure 3.14.b. Nous choisissons ici l'intervalle de dureté [ $H = 0,07 - 0,085$  GPa] afin d'obtenir un intervalle d'énergie d'activation correspondant. Nous trouvons une énergie d'activation,  $Q$ , entre 63,3 et 74,2 kJ.K<sup>-1</sup>.mol<sup>-1</sup> sur l'intervalle de température [0,5 - 0,6  $T_m$ ]. Nous pouvons remarquer que l'énergie d'activation mesurée est sensiblement dépendante de la dureté de référence choisie, étant donnée que l'indice de viscoplasticité mesuré change entre 200 et 300 °C – voir tableau 3.4.

**Résultats de la littérature** Afin d'évaluer la caractérisation de l'énergie d'activation effectuée en relaxation, nous présentons quelques résultats de la littérature.

Luthy *et al.* [97] mesurent une énergie d'activation  $Q = 115$  kJ.K<sup>-1</sup>.mol<sup>-1</sup> sur la plage de températures [0,5 - 0,6  $T_m$ ] et  $Q = 142$  kJ.K<sup>-1</sup>.mol<sup>-1</sup> au dessus de 0,6  $T_m$  – pour un aluminium pur sollicité en traction et en torsion.

De plus, Phani *et al.* [49] déterminent une énergie d'activation identique à celle de Luthy *et al.* sur l'intervalle de température [0,6 - 0,7  $T_m$ ] – à savoir  $Q = 142,4$  kJ.K<sup>-1</sup>.mol<sup>-1</sup>.

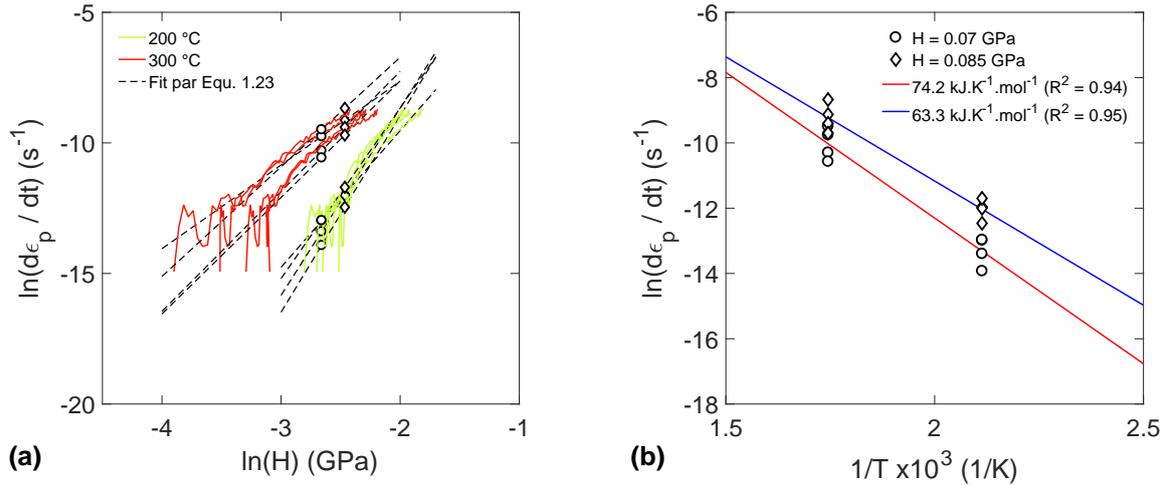


FIGURE 3.14 – Vitesse de déformation plastique en fonction de la dureté en log-log (a) Les courbes de couleur représentent les résultats obtenus à 200 et 300 °C. Les droites pointillées représentent les ajustements effectués par l'équation 1.24 et les symboles  $\circ$  et  $\diamond$  représentent les points pris en compte dans le calcul de l'énergie d'activation. Évolution du logarithme népérien de la vitesse de déformation plastique en fonction de l'inverse de la température, en Kelvin (b).

Les valeurs que nous obtenons en relaxation sont bien inférieures à celles proposées dans la littérature. Ceci pourrait être une conséquence de la qualité de l'asservissement à déplacement constant aux temps courts. En effet, en raison de la faible vitesse de déformation appliquée lors du chargement et de la présence d'un dépassement de la consigne, la chute d'effort lors des premiers instants de mesure est amoindrie. Ceci résulte en une vitesse de déformation plastique plus faible. L'amélioration du système d'asservissement est donc un point clé dans l'obtention du comportement viscoplastique représentatif des métaux étudiés à haute température.

Cependant, nous montrons que l'essai de relaxation semble être adapté à la caractérisation de l'énergie d'activation des phénomènes de diffusion dans les métaux, à hautes températures, et il faudra effectuer des études complémentaires pour certifier les résultats obtenus.

### 3.2.3 Estimations du comportement viscoplastique en température

**Fluage indentation – Phani *et al.* [49]** – Dans le but d'évaluer la sensibilité de la dureté à la vitesse de déformation plastique sur une plage de température, la vitesse de déformation ainsi que la dureté doivent être compensées pour les phénomènes de diffusion qui apparaissent à hautes températures [49]. Phani *et al.* proposent de normaliser en divisant la vitesse de déformation par  $\exp(-Q/RT)$  et la dureté par le module d'élasticité à la température de l'essai. Nous considérons les modules d'élasticité calculés par le mode CSM en fin de chargement.

La figure 3.15 représente l'évolution de la vitesse de déformation plastique normalisée en fonction de la dureté compensée par le module d'élasticité – sur une échelle log - log. Les ronds de couleur représentent les résultats de cette étude et les ronds blancs illustrent les données de Phani *et al.* [49].

De la même manière que Phani *et al.*, nous observons une zone relativement linéaire – en

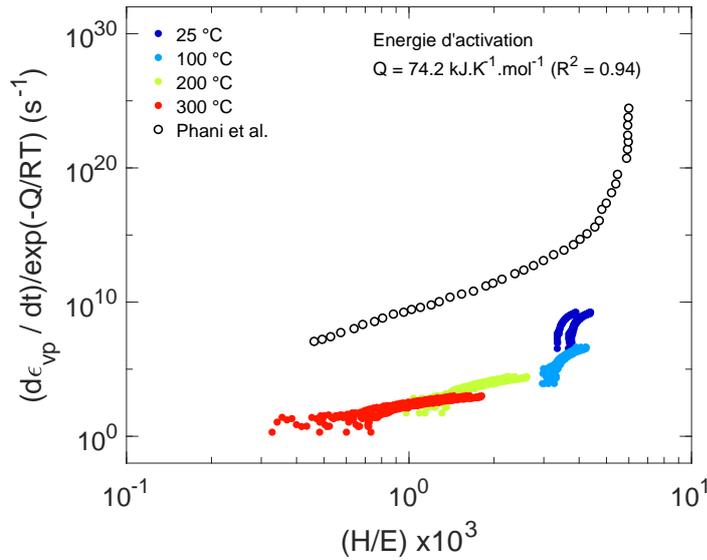


FIGURE 3.15 – Vitesse de déformation plastique compensée par la température en fonction du rapport dureté sur module d'élasticité. Les points de couleurs correspondent à notre étude et les symboles  $\circ$  représentent les résultats de Phani *et al.* [49].

échelle log - log – pour les températures supérieures à 100 °C, puis la pente de la courbe augmente pour les températures inférieures. En revanche, l'énergie d'activation que nous avons calculée dans la section 3.2.2 (p. 80) –  $Q \approx 74 \text{ kJ.K}^{-1}.\text{mol}^{-1}$  – est deux fois plus faible que celle déterminée par Luthy *et al.* [97] et Phani *et al.* [49] sur cette intervalle de température –  $Q \approx 142 \text{ kJ.K}^{-1}.\text{mol}^{-1}$  –, ce qui explique le décalage vertical des courbes expérimentales.

**Fluage traction/torsion – Luthy *et al.* [97]** – Une seconde approche est proposée par Luthy *et al.* [97] – reprise également par Phani *et al.* [49]. Celle-ci se base sur le fait que la vitesse de déformation d'un écoulement stationnaire,  $\dot{\epsilon}_{vp}$ , est proportionnelle à un coefficient de diffusion effectif,  $D_{eff}$ , et à une fonction de la contrainte d'écoulement stationnaire compensée par le module d'élasticité,  $\sigma_r/E$ . Luthy *et al.* [97] écrivent donc la relation suivante :

$$\frac{\dot{\epsilon}_{vp}}{D_{eff}} = f\left(\frac{\sigma_r}{E}\right) \quad (3.4)$$

Le coefficient de diffusion effectif,  $D_{eff}$  – premièrement défini par Robinson et Sherby [98] – prend en compte deux coefficients d'auto-diffusions réticulaires et un coefficient relatif à la diffusion le long des dislocations. Pour l'aluminium pur, Luthy *et al.* [97, 49] proposent la relation suivante :

$$\begin{aligned} D_{eff} = & 1,7 \times 10^{-4} \exp\left(-\frac{142}{RT}\right) + 6 \times 10^{-7} \exp\left(-\frac{115}{RT}\right) \\ & + 2,8 \times 10^{-6} \exp\left(-\frac{82}{RT}\right) \left[80\left(\frac{\sigma}{E}\right)^2\right] \end{aligned} \quad (3.5)$$

Avec le premier terme correspondant au coefficient d'auto-diffusion réticulaire – à haute tempé-

rature,  $T > 0,6 T_m$  –, le second terme, aux températures intermédiaires –  $0,5 T_m < T < 0,6 T_m$  – et le dernier terme correspondant au coefficient de diffusion le long des dislocations – pour des températures basses,  $0,2 T_m < T < 0,4 T_m$ .

Cette approche permet d'établir un comportement viscoplastique unifié sur une large gamme de températures. La figure 3.16.a représente les résultats de notre étude exprimés au travers de l'expression 3.4 – avec  $\sigma_r$  et  $\dot{\epsilon}_{vp}$  calculés par les équations 1.57 et 3.2, respectivement. Sur cette figure apparait également, les résultats de Luthy *et al.* [97] obtenus par essais de traction et de torsion sur un aluminium pur et les résultats de Phani *et al.* [49] obtenus par fluage en nanoindentation à haute température sur un alliage d'aluminium AA1100. La figure 3.16.b représente, quant à elle, une illustration de l'effet de l'ajout de solution durcissante – dans un matériau modèle pur – sur son comportement viscoplastique unifié.

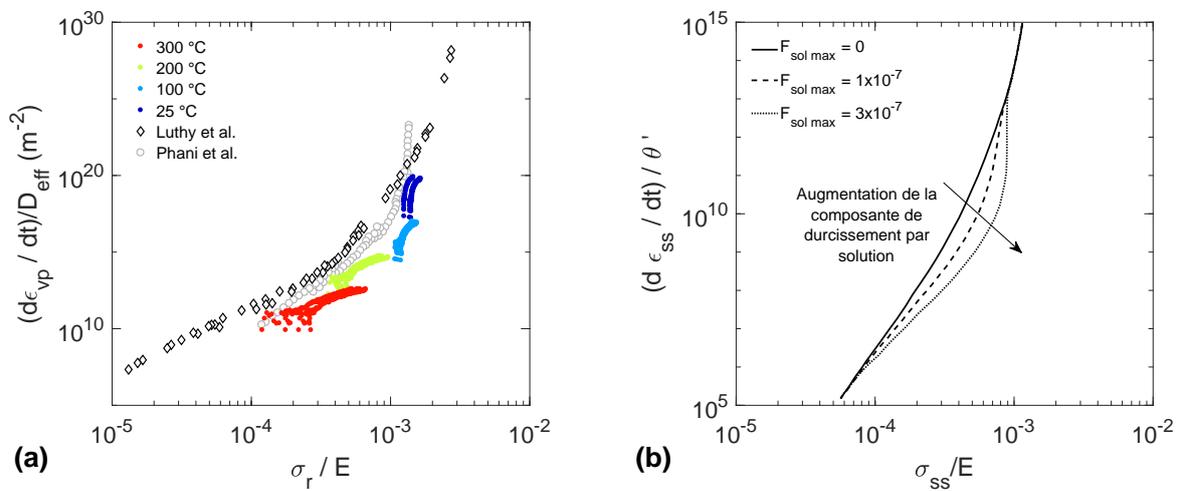


FIGURE 3.16 – Vitesse de déformation plastique normée par le coefficient de diffusion effectif,  $D_{eff}$ , en fonction du rapport contrainte représentative sur module d'élasticité (a). Les points de couleurs correspondent à notre étude, les symboles  $\circ$  et  $\diamond$  représentent les résultats de Phani *et al.* [49] et de Luthy *et al.* [97], respectivement. Vitesse de déformation en écoulement stationnaire normé par la température en fonction du rapport contrainte d'écoulement stationnaire sur module d'élasticité (b). Les courbes représentées sont une illustration de l'effet de l'ajout de solutions durcissantes dans un matériau modèle pur – tracées à partir des simulations de Miller *et al.* [99].

Il est intéressant de noter que notre alliage d'aluminium AA1050 possède environ 1 % d'éléments d'addition – voir la composition chimique dans le tableau 3.2. Miller *et al.* [99] étudient l'effet de l'ajout d'une composante durcissante – relative aux éléments en solution – dans le comportement viscoplastique des métaux et montrent que la forme de la courbe  $\dot{\epsilon}_{vp}/D_{eff} = f(\sigma_r/E)$  sur l'intervalle  $[5 \times 10^{-5} < \sigma_r/E < 2 \times 10^{-3}]$  peut être significativement modifiée par l'augmentation de cette composante – voir figure 3.16.b.

Cette modification se traduit par une sensibilité à la vitesse de déformation plus faible sur l'intervalle  $[1 \times 10^{-3} < \sigma_r/E < 2 \times 10^{-3}]$  et plus élevée sur l'intervalle  $[5 \times 10^{-5} < \sigma_r/E < 1 \times 10^{-3}]$ . Miller *et al.* [99] remarquent même que la sensibilité à la vitesse de déformation peut devenir négative sur le premier intervalle défini, dans le cas d'un alliage d'aluminium contenant 3,2 % de Magnésium.

Nous observons la même tendance sur nos résultats en relaxation, en considérant les résultats de Luthy *et al.* [97] comme étant l'équivalent de la simulation pour  $F_{sol\ max} = 0$  – voir figure 3.16.a.

## 4 Bilan et ouvertures

Une étude portant sur la caractérisation – à haute température – d'un polymère et d'un alliage d'aluminium a été réalisée. La principale limitation – déjà mise en avant dans la littérature et en section 5.3 du chapitre 2 (p. 64) – est la dérive thermique. En effet, repousser les limites de la stabilité thermique est un enjeu important dans l'amélioration des mesures de propriétés mécaniques dépendantes du temps.

### 4.1 Estimation de la vitesse de déformation plastique

Afin de caractériser les paramètres viscoplastiques d'un matériau – tels que la sensibilité à la vitesse de déformation,  $m$ , ou l'énergie d'activation du phénomène,  $E_a$ ,  $Q$ , – la connaissance de la vitesse de déformation au sein du matériau doit être connue.

Dans le cas classique de l'essai de fluage en indentation, la vitesse de déformation est directement calculée par l'expression  $\dot{h}/h$ . Or cette relation n'est plus valable en relaxation car  $\dot{h}/h = 0$ . Nous transposons dans notre étude l'estimation de la vitesse de déformation plastique – en relaxation uniaxiale – à l'essai d'indentation – voir section 2.2.3 (p. 73). Nous exploitons l'hypothèse que la déformation représentative générée au sein du matériau ne dépend que de la géométrie de la pointe.

Les vitesses de déformation plastique estimées par cette méthode sont cohérentes avec les résultats de Phani *et al.* [49] obtenus par fluage en nanoindentation sur un alliage d'aluminium similaire. Nous verrons dans le chapitre 4 que la méthode fonctionne également pour la silice fondue à température ambiante.

### 4.2 Obtention des propriétés mécaniques

Malgré une quantité de données exploitables souvent réduite, nous avons pu caractériser les **énergies d'activation** des phénomènes de relaxation des deux matériaux étudiés. Dans le cas du PMMA, l'énergie d'activation de la relaxation  $\beta$  – mesurée par nanoindentation – est en bon accord avec les résultats de la littérature obtenus par différentes méthodes. Dans le cas de l'alliage d'aluminium AA1050, les résultats sont plus difficiles à interpréter en raison de la qualité de l'asservissement aux temps courts – voir section 1.3.1 (p. 67) et annexe A (p. 129) – et à un niveau de dérive thermique élevé.

Comme il a été évoqué en conclusion du chapitre 2 (p. 64), nous développerons dans le chapitre suivant une nouvelle méthode de relaxation permettant une plus grande stabilité de mesure. Malheureusement, les dispositifs expérimentaux disponibles lors de ces travaux ne permettaient pas de mettre en œuvre cette méthode pour des essais en température.

### 4.3 Vers une mesure des changements microstructuraux

Dans le cas des métaux, d'autres phénomènes activés par l'augmentation de la température peuvent apparaître. C'est le cas de la recristallisation. La nanoindentation instrumentée est, la majeure partie du temps, utilisée comme une technique de mesure statique, en réalisant une caractérisation *post mortem* des propriétés mécaniques modifiées suite à un traitement mécanique, thermo-mécanique ou chimique par exemple.

La nanoindentation à haute température apporte la possibilité de pouvoir réaliser une mesure *in situ* de ces modifications de propriétés mécaniques, au cours du temps. Nous verrons dans le chapitre 5 l'application de ce type de mesures.



# Chapitre 4

## Méthode de relaxation à raideur de contact constante : Comment s'affranchir de la dérive en déplacement ?

### 1 Principe de la méthode

Nous avons pu voir dans le chapitre précédent l'importance de la stabilité du maintien de l'aire de contact constante lors de l'essai de relaxation en nanoindentation. De plus nous avons montré qu'une estimation de la dérive fondée sur la mesure de la raideur de contact était possible. L'idée est de maintenir directement la raideur de contact constante et de ce fait, s'affranchir de la dérive en déplacement.

Cette idée a été premièrement introduite dans le cadre d'essai de fluage en indentation par Syed Asif et Pethica en 1997 [100]. Le principe était, à l'époque, de mesurer l'évolution de l'enfoncement de la pointe via la mesure de la raideur de contact. En 2004, Goldsby *et al.* [101] étudient le fluage du quartz par la même méthode – avec des temps de maintien jusqu'à  $5 \times 10^4$  s – soit plus de 13 h. Cette méthode a ensuite été utilisée par Maier *et al.* [41] en 2013 pour caractériser le comportement en fluage de l'aluminium et du nickel à grains ultra fins. Ils effectuent une mesure du fluage jusqu'à 200 °C pour des temps de maintien de 1 à 10 h.

Néanmoins aucun travaux n'a porté sur l'étude de la relaxation à raideur de contact constante. Nous développons dans ce chapitre les possibilités et les limites liées à cette méthode. Nous comparons les résultats obtenus avec ceux de la littérature mais également avec les résultats obtenus pour des essais de nanoindentation à déplacement constant.

#### 1.1 Hypothèses et modèle utilisé

##### 1.1.1 Hypothèses

Suite à la description du principe de mesure dynamique de la raideur de contact faite en section 2.2.3 (p. 19) et à la présentation des différents modèles d'estimation de l'aire de contact réalisée en section 2.2.4 (p. 23) du chapitre 1, nous énonçons les hypothèses d'utilisation de la méthode.

Dans un premier temps, l'hypothèse des petites déformations doit être satisfaite – à savoir que l'amplitude d'oscillation du mode CSM doit rester négligeable par rapport à la profondeur d'indentation. Dans un second temps, le matériau doit être homogène à l'échelle étudiée pour que la raideur soit proportionnelle au rayon de contact – voir expression 1.35.

Nous pouvons alors écrire l'évolution de l'aire de contact en fonction de la raideur telle que :

$$A_c = \frac{\pi}{4} \left( \frac{S(\omega)}{E_c^*(\omega)} \right)^2 \quad (4.1)$$

Avec,  $E_c^*(\omega)$ , constant pour une fréquence de sollicitation donnée.

### 1.1.2 Géométries du contact

Une fois ces hypothèses énoncées, il nous faut déterminer *a priori* quel sera le modèle d'aire de contact le plus représentatif de notre configuration – voir section 2.2.4 (p. 23) du chapitre 1. En effet, l'estimation de la forme de contact aura une influence sur le module réduit de contact calculé et par conséquent sur la caractérisation de l'aire de contact. Le problème étant imbriqué, nous postulons par la suite que le calcul du module réduit de contact effectué pour des profondeurs de pénétration élevées est correctement approximé par le modèle d'Oliver et Pharr ou celui de Loubet *et al.* . Le choix du modèle est réalisé en fonction du comportement du matériau à étudier :

**Silice fondue** Dans le cas de silice fondue, nous choisissons un dépouillement par la méthode d'Oliver et Pharr [28] afin de limiter les différences de calculs avec les résultats de la littérature. Néanmoins, la méthode de Loubet *et al.* est également valide pour ce matériau étant donné que celui-ci a servi de référence dans le développement des deux méthodes.

**Polymères à l'état vitreux** Dans le cas des polymères amorphes – à l'état vitreux à température ambiante – nous choisissons le modèle d'Oliver et Pharr qui présente l'avantage de bien rendre compte de l'affaissement de la surface autour de la pointe [77].

**Élastomère** Dans le cas de l'élastomère, nous choisissons de calculer le module réduit de contact par la méthode d'Oliver et Pharr. Deuschle *et al.* montrent que l'estimation de l'aire de contact faite par ce modèle dans le cas de l'indentation d'un PDMS (1 : 30) par une pointe Berkovich est très proche de l'aire réelle de contact – mesurée *in situ* – à une profondeur de pénétration de 5  $\mu\text{m}$  [102]. De fait, les effets d'adhésion potentiels sont de moins en moins prépondérants avec l'augmentation de la profondeur de pénétration.

## 2 Méthode expérimentale

### 2.1 Dispositif expérimental

Nous utilisons pour cette étude le nanoindenteur SA2<sup>®</sup> – décrit en section 2.1.1 (p. 44) du chapitre 2. En raison de sa grande résolution en force et en déplacement ainsi que de sa bonne sensibilité de mesure de la raideur, cet appareil se trouve être la meilleure option pour effectuer

TABLE 4.1 – Procédures expérimentales développées pour les essais d’indentation à hautes températures.  $h_1$  correspond à la profondeur de maintien.

Raideur const.		Exponentiel ( $\alpha = cst$ )		
Matériaux	Maintien (h)	ISR ( $s^{-1}$ )	$S_1$ ( $N.m^{-1}$ )	$h_{equiv}$ (nm)
Silice	2 / 5	0,05	$50 \times 10^3$	200
PMMA	5 / 10	0,05	$14,4 \times 10^3$	500
PC	10	0,05	$8,8 \times 10^3$	500
PS	10	0,05	$10,6 \times 10^3$	500
Élastomère	10	0,006	$0,8 \times 10^3$	5500

 TABLE 4.2 – Fréquences et amplitudes de sollicitations appliquées au mode CSM du nanoindenteur SA2<sup>®</sup> pour les différents matériaux étudiés.

Param.	Silice	PMMA	PC	PS	Élastomère
Fréquence (Hz)	75	43	43	43	75
Amplitude (nm)	3	8	8	8	6

cette étude. En effet, l’asservissement d’un signal requiert que son rapport signal sur bruit soit le plus important possible.

## 2.2 Matériaux

Les matériaux utilisés sont pour partie décrits dans la section 2.2 (p. 44). Il s’agit du PMMA et de l’élastomère. Nous effectuons également des essais sur du polycarbonate, PC, et sur du polystyrène, PS. Le polycarbonate étudié est un polymère thermoplastique amorphe. Sa température de transition vitreuse est aux alentours de  $150\text{ °C}$  [103]. Le polystyrène, quant à lui, possède une  $T_g$  aux alentours de  $100\text{ °C}$  [104].

## 2.3 Procédure expérimentale

### 2.3.1 Types de chargement

Les types de chargements utilisés – pour chacun des matériaux étudiés – sont décrits dans le tableau 4.1. Les paramètres du mode CSM sont décrits dans le tableau 4.2.

### 2.3.2 Asservissement et segment de relaxation

Le même type d’approche que pour l’asservissement du déplacement est utilisé pour régler les paramètres PID – voir section 2.3.2 du chapitre 2 (p. 48). Les paramètres PID utilisés pour chacun des matériaux sont détaillés en annexe A (p. 129). L’acquisition des données est réalisée à une fréquence de  $1\text{ Hz}$  car le logiciel TestWorks 4<sup>®</sup> pilotant le nanoindenteur SA2<sup>®</sup> extrait les données

via une feuille Excel de 65536 lignes. La fréquence d'acquisition pour une mesure de 10 h est donc très limitée (maximum 1 Hz). Ceci explique le nombre de points restreint pour décrire les signaux mesurés lors du segment de relaxation – voir figure 4.1.

**Polymères amorphes vitreux** De la même manière que pour les essais à déplacement constant, l'effet de l'asservissement sur les premiers instants de mesure est illustré figure 4.1.

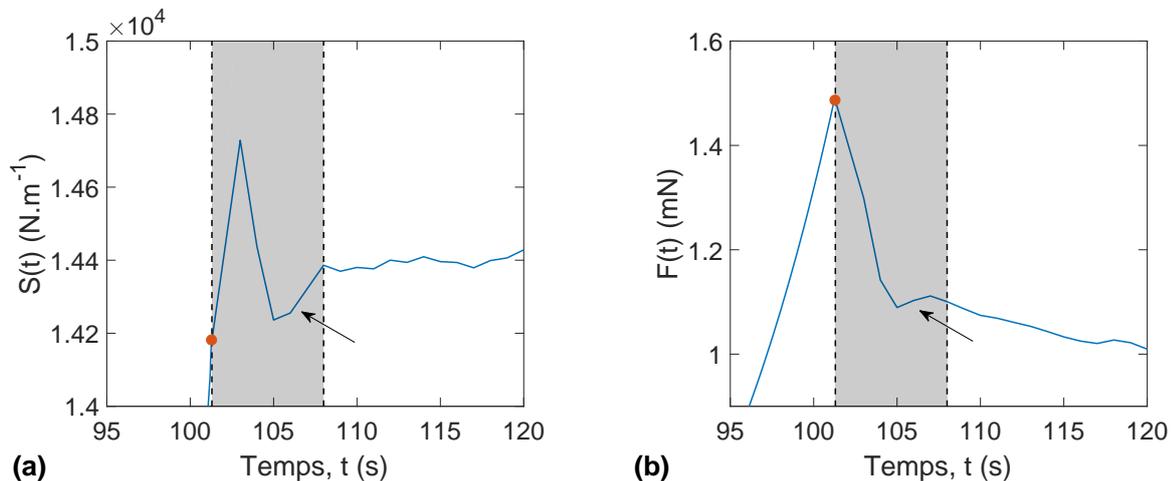


FIGURE 4.1 – Dépassement de la consigne de raideur (a) et son implication sur le signal de force (b) pour un essai de relaxation sur du PMMA. Les flèches indiquent l'instant de la première oscillation de l'asservissement autour de la consigne. La zone grisée représente le temps de stabilisation de l'asservissement, à savoir 6 s.

La chute d'effort – figure 4.1.b – engendrée par un dépassement de 3,8 % de la consigne – figure 4.1.a – est de 24 %, ce qui n'est pas négligeable. Nous considérerons par la suite les mesures faites une fois la raideur de contact stabilisée – pour le PMMA, après 18 s de maintien, soit 3 fois la constante de temps de stabilisation représentée par la bande grisée sur la figure 4.1. Le point rouge représente, de la même manière qu'en section 2.3.3 du chapitre 2 (p. 50), le début du segment de relaxation, déterminé par le lancement de l'asservissement de la raideur de contact.

Les comportements du PC et du PS lors de la transition sont équivalents à celui du PMMA : pour le PS, le dépassement de la consigne en raideur est de 3,7 % et engendre une baisse d'effort d'environ 30 % ; pour le PC le dépassement est de 5 % et engendre une baisse d'effort de 30 % également.

Il est important de noter ici qu'une grande partie de l'information sur le comportement en relaxation de ces matériaux est contenue dans la première seconde de maintien à raideur de contact constante. Or nous n'avons pas accès à ces informations, en partie à cause du dépassement mais également à cause de la fréquence d'acquisition faible. Des efforts de développement devront être fait dans les prochaines années pour augmenter la qualité des mesures aux temps courts.

**Élastomère** La figure 4.2 représente l'évolution de la raideur de contact et de la force appliquée à l'échantillon en fonction du temps, lors de la transition d'asservissement. Le dépassement de la consigne en raideur est d'environ 2,5 % et engendre une baisse de 15 % de la force.

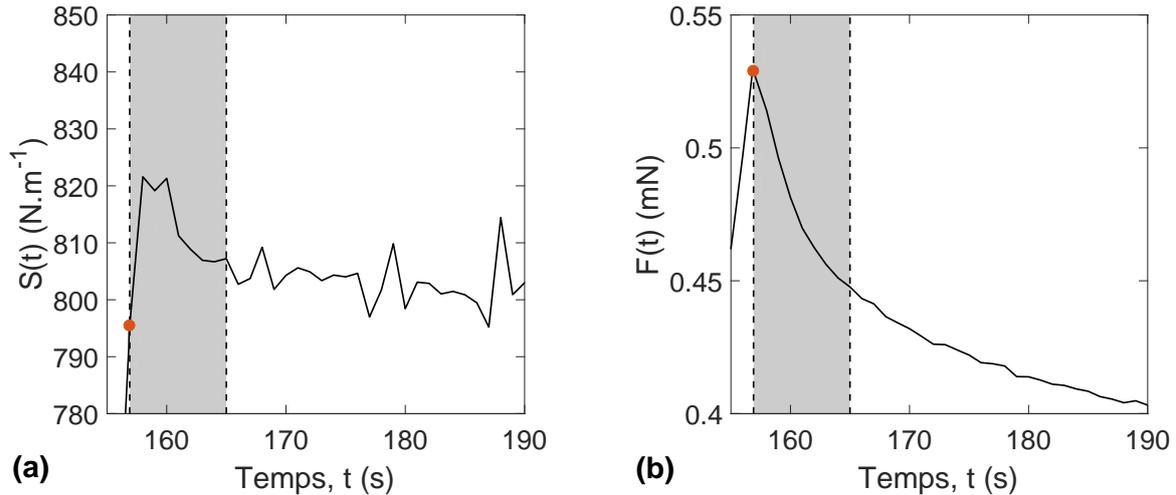


FIGURE 4.2 – Dépassement de la consigne de raideur (a) et son implication sur le signal de force (b) pour un essai de relaxation sur l'élastomère. La zone grisée représente le temps de stabilisation de l'asservissement, à savoir 6 s.

### 2.3.3 Dérive thermique

**Avantage de l'essai à raideur de contact constante** Nous présentons dans ce paragraphe l'intérêt annoncé de l'essai de relaxation à raideur de contact constante par rapport à l'essai à déplacement constant. La figure 4.3 illustre l'évolution des trois principales mesures – à savoir le déplacement, la force et la raideur – en fonction du temps. Quatre essais à déplacement constant maintenu 1 h sur du PMMA sont représentés.

Nous remarquons que malgré la constance du signal de déplacement, les courbes de force et de raideur divergent assez vite – au bout de quelques centaines de secondes. Ceci est en accord avec les remarques faites dans le chapitre 2 en section 2.3.4 (p. 51).

La figure 4.4 – quant à elle – représente l'évolution de ces mêmes signaux lors de quatre essais à raideur de contact constante sur du PMMA – avec un maintien de 2 h. Il est intéressant de noter que la mesure de la baisse d'effort avec le temps de maintien est très répétable – quelque soit le comportement en déplacement. De plus, nous pouvons nous rendre compte de la dérive réelle sur la dispersion des signaux de déplacement.

Cette méthode offre donc une bien meilleure stabilité de mesure du point de vue de la dérive. Il est maintenant possible d'atteindre des temps de maintien jusqu'à 10 h en essai de relaxation par nanoindentation contre quelques centaines de secondes avec la méthode classique. Cette méthode offre la possibilité d'augmenter le temps de caractérisation de presque deux ordres de grandeurs.

**Limitations du dispositif expérimental** Théoriquement, l'établissement d'un contact de raideur constante garantit une mesure en relaxation indépendante de la dérive thermique comme nous l'avons vu précédemment. Néanmoins, il s'avère qu'à partir d'un certain déplacement – dû à la dérive – le signal de force dérive également.

La figure 4.5 illustre ce phénomène. Alors que la raideur est maintenue constante, nous observons

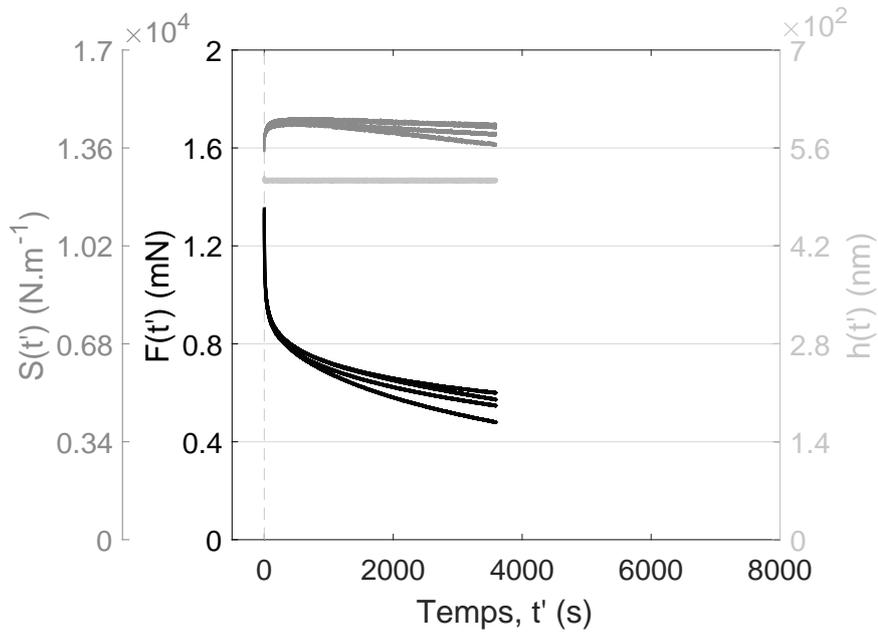


FIGURE 4.3 – Raideur de contact, force et déplacement en fonction du temps de relaxation pour des essais à déplacement constant sur le PMMA. Pour des raisons de lisibilité, les segments de chargement et déchargement ne sont pas représentés.

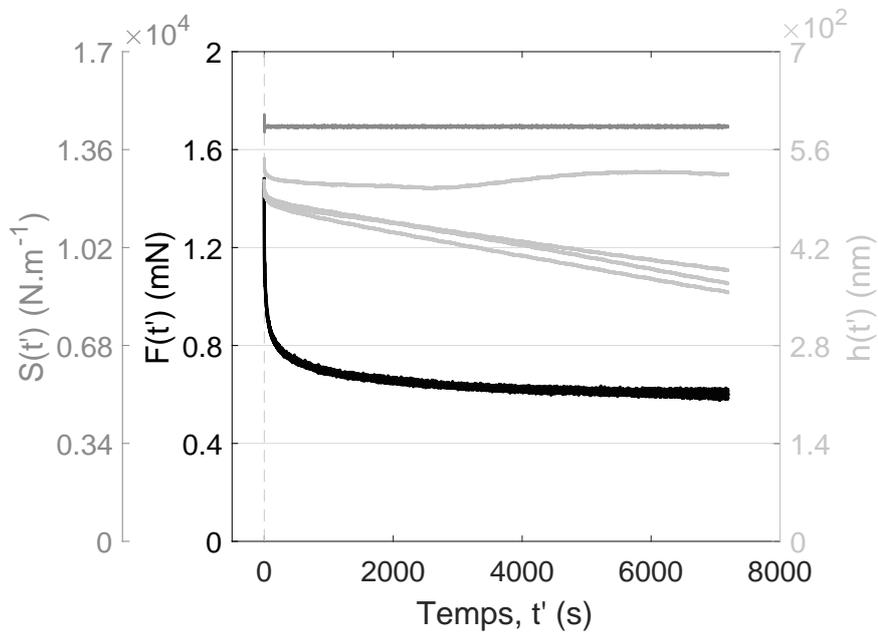


FIGURE 4.4 – Raideur de contact, force et déplacement en fonction du temps de relaxation pour des essais à raideur de contact constante sur le PMMA. Pour des raisons de lisibilité, les segments de chargement et déchargement ne sont pas représentés.

les différentes dérives en déplacement – sur le graphique du bas figure 4.5 – et les signaux de force – en haut. Les instants où la force diverge du faisceau de courbe principal sont indiqués par des ronds blancs et leur localisation temporelle est reportée sur le graphique du déplacement.

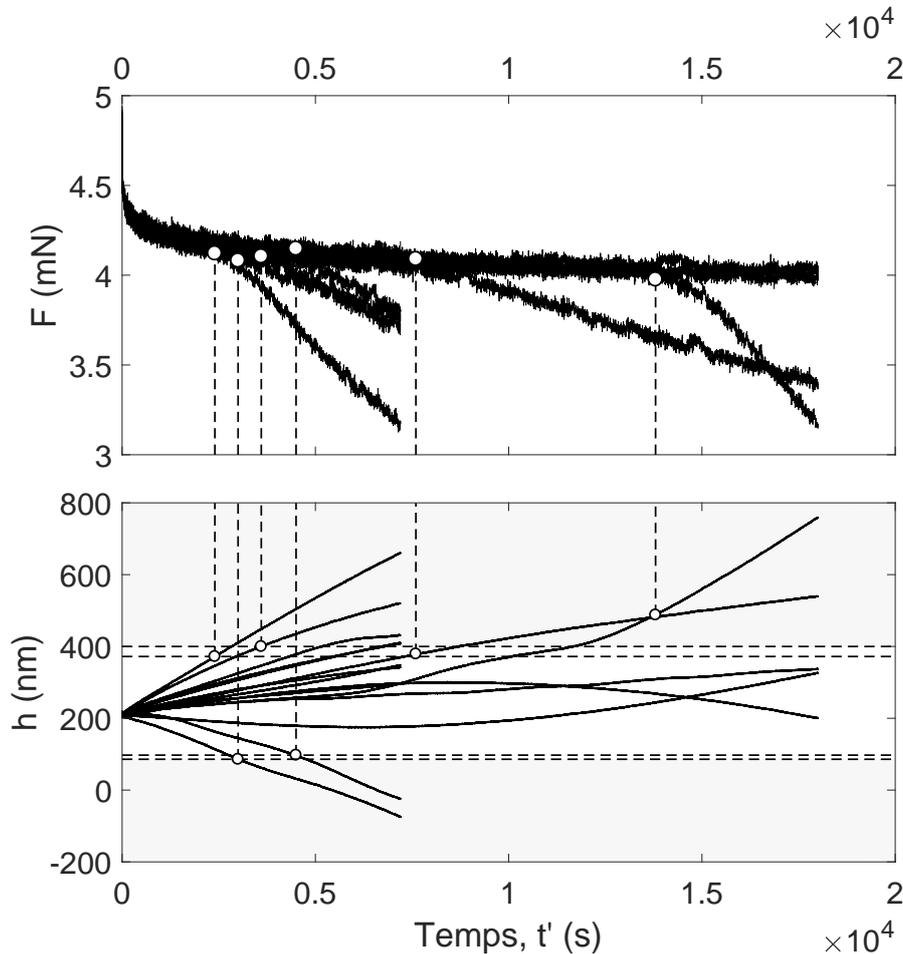


FIGURE 4.5 – Force et déplacement en fonction du temps de relaxation pour des essais à raideur de contact constante maintenue de 2 à 5 h sur de la silice fondue. Pour des raisons de lisibilité, les segments de chargement et déchargement ne sont pas représentés.

Nous pouvons alors distinguer deux plages de déplacement : La première – non grisée – où la dérive en déplacement est relativement faible et aucun effet n'est mesuré sur le signal d'effort et la seconde – grisée – où le signal de force diverge.

Il semblerait que ce phénomène provienne de la discrétisation effectuée au niveau du convertisseur analogique-numérique sur le signal de déplacement. En effet, pour améliorer la résolution numérique, un intervalle de déplacement maximum est numérisé autour du point de fonctionnement actuel. Si le déplacement du capteur capacitif excède ces limites, la mesure de déplacement et de raideur ne sont plus correctes. Ainsi l'asservissement est réalisé sur une mesure **fausse** de la raideur ce qui impliquerait la dérive observée sur le signal de force – voir figure 4.5.

Cette dérive en force pourrait également être attribuée à la dérive thermique. En effet, nous considérons principalement une dérive en déplacement normale à la surface mais il se trouve qu'il existe également une dérive tangentielle du dispositif. La figure 4.6 représente les courbes force -

déplacement pour deux cas de maintien pendant 5 h de la raideur de contact constante.

La courbe noire présente un certain niveau de dérive en force qui peut être corrélé à la double pente sur le segment de décharge. Cet *artefact* de mesure est souvent observé lors de fortes dérives en déplacement latérales. Ainsi, le décalage de la pointe au niveau de l’empreinte pourrait augmenter de façon anormale la raideur du contact, causant ainsi une baisse de force appliquée.

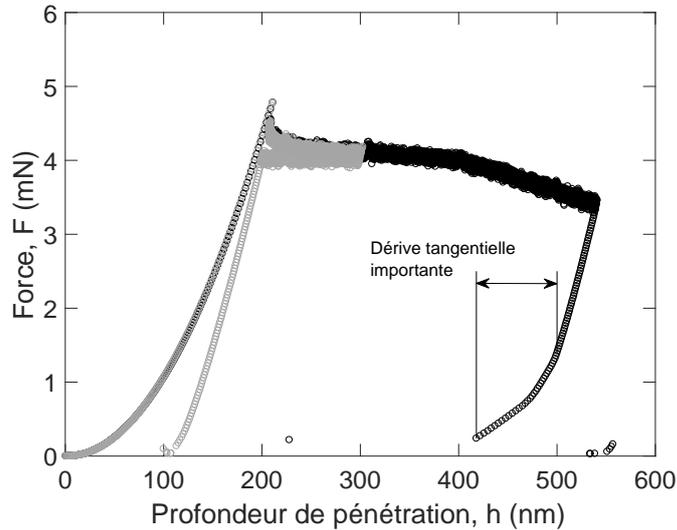


FIGURE 4.6 – Courbe force - déplacement pour deux cas de maintien pendant 5 h de la raideur de contact constante. La courbe grise correspond à un essai sans dérive en force et la courbe noire, avec dérive.

Ces hypothèses sont cependant à vérifier, étant donné que le réglage de l’intervalle de déplacement numérisé n’a pas été modifié lors de cette étude et que nous ne connaissons pas exactement les mouvements parasites au niveau du contact.

Une attention particulière devra donc être portée sur les conditions d’utilisation de la tête DCM<sup>®</sup> du nanoindenteur SA2<sup>®</sup>. Dans les prochains développements effectués sur la silice fondue, seules les courbes ne présentant pas de dérive sont étudiées.

### 2.3.4 Calcul des propriétés mécaniques

Le module de relaxation est calculé par l’expression 1.67, où nous connaissons maintenant l’aire de contact via l’équation 4.1. Nous pouvons alors écrire  $G(t)$  tel que :

$$G(t) = \frac{(1 - \nu) F(t)}{\tan(\beta) A_c} \quad (4.2)$$

L’approximation du spectre de relaxation est calculée de la même manière qu’en section 2.3.5 (p. 52) du chapitre 2. Le traitement des données expérimentales pour obtenir la dérivée première du module de relaxation est détaillé en annexe B (p. 135).

### 2.3.5 Vérification de la méthode sur silice fondue

Afin d'attester de la validité de la méthode, une première étude a été menée sur de la silice fondue à température ambiante. Des essais de relaxation avec un maintien jusqu'à 5 h ont été réalisés – voir figure 4.5.

Une étude similaire est réalisée par Maier *et al.* [41] sur de la silice fondue. Ces derniers utilisent la méthode de fluage "longue durée" par nanoindentation introduite en section 1 (p. 87).

Afin de comparer nos résultats aux leurs, nous utilisons la même méthode de calcul de la contrainte d'écoulement plastique – car celle-ci diffère légèrement de l'équation 1.57 définie en section 2.3.2 du chapitre 1 (p. 28). Nous noterons ainsi  $\sigma_{rM}$  la contrainte représentative de Maier – à différencier de  $\sigma_r$  dans le reste du manuscrit, telle que :

$$\sigma_{rM} = \frac{H}{c} \quad (4.3)$$

Avec  $c = 1,5$  dans le cas de la silice fondue [105].

**Comportement en relaxation** La figure 4.7.a représente l'évolution de  $\sigma_{rM}$  normalisée par la contrainte représentative de Maier à l'instant 0 du segment de relaxation, respectivement, fluage. Le point rouge représente l'estimation de la baisse de contrainte déterminée à partir du graphique  $\dot{\epsilon} = f(\sigma_{rM})$  publié par Maier *et al.* [41]. La courbe grise représente le résultat brut relatif à un essai de 5 h et la courbe noire, les données moyennées sur 50 points. Pour des raisons de lisibilité, seule une courbe de relaxation est représentée mais les résultats obtenus pour les deux autres essais, sans dérive, suivent la même tendance.

Il est intéressant de noter que sur les 10 % de baisse en 5 h, plus de 2 % ont lieu lors des dix premières secondes. Étant donné la qualité de l'asservissement aux temps courts, cette partie de la courbe est à considérer avec précautions – voir section 2.3.2 (p. 89).

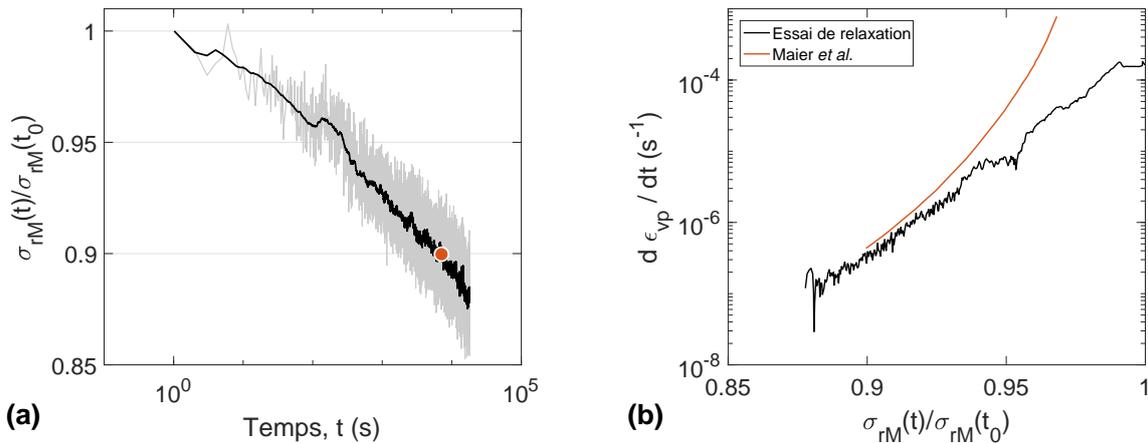


FIGURE 4.7 – Évolution de  $\sigma_{rM}$  normalisée par la contrainte représentative de Maier déterminée lors du chargement – courbes grise et noire – et du temps de fluage – symbole ● (a). Le résultat en fluage provient des travaux de Maier *et al.* [41]. Courbe de vitesse de déformation en fonction de la contrainte représentative de Maier normée (b).

Néanmoins, nos résultats sont en parfait accord avec ceux de Maier *et al.* [41] – avec une baisse de 10 % de contrainte d'écoulement plastique,  $\sigma_{rM}$ , au bout de 2 h de maintien. Cette baisse – dans le cas du fluage – correspond à une augmentation d'environ 11 % de l'aire de contact, ce qui est également confirmé par les mesures de Goldsby *et al.* [101] sur du quartz – avec une augmentation de l'ordre de 10 % au bout de 2 h de maintien de la force.

Il est important de noter que ces deux types d'essais *a priori* différents mènent à un résultat identique. Ceci peut être en partie expliqué par le fait que – dans les deux cas – l'aire de contact reste quasiment constante tout au long de l'essai.

**Sensibilité à la vitesse de déformation** Nous pouvons à présent nous intéresser à la sensibilité à la vitesse de déformation de la silice fondue. Pour cela nous utilisons la même approche que celle développée dans le chapitre 3, dans la section 2.2.3 (p. 73).

Afin d'estimer la vitesse de déformation plastique – au travers de l'équation 3.2 – nous devons au préalable effectuer un traitement numérique des données pour réduire au maximum le bruit de mesure. En effet, la relation 3.2 nécessite d'effectuer une dérivation numérique et ce calcul est très sensible aux pentes locales. Le détail de ce traitement numérique est donné dans la section 2.2 de l'annexe B (p. 136).

La figure 4.7.b représente l'évolution de la vitesse de déformation plastique,  $\dot{\epsilon}_{vp}$ , en fonction de la contrainte représentative de Maier normée. La courbe noire correspond aux données calculées à partir de la contrainte représentative déterminée en annexe B. Le module d'élasticité pris en compte pour le calcul de  $\dot{\epsilon}_{vp}$  correspond à la moyenne des modules mesurés durant la phase de chargement –  $E' = 69,5 \text{ GPa}$ . La courbe rouge représente les résultats de Maier *et al.* [41].

Dans un premier temps, il est intéressant de noter que la plage de vitesses de déformation plastique calculée à partir de  $\dot{\sigma}_{rM}$  est très proche de celle mesurée par Maier – telle que  $\dot{\epsilon} = \dot{S}/S$ . Ceci conforte l'utilisation de cette vitesse de déformation plastique estimée par l'équation 3.2 dans le cas de l'essai de relaxation en indentation. Par extension, cela apporte un poids supplémentaire aux résultats obtenus sur l'aluminium en température – voir section 2.2.3 (p. 73).

Deuxièmement, nous obtenons une relation puissance quasiment parfaite sur trois ordres de grandeur de vitesse de déformation, contrairement aux résultats de Maier *et al.* [41]. Ceci laisse entendre que la sollicitation mécanique appliquée au matériau lors d'un essai de relaxation se traduit par un écoulement viscoplastique **effectivement stationnaire**.

Nous calculons une sensibilité à la vitesse de déformation,  $m = 0,0163$ . Ce résultat est en parfait accord avec celui de Elmustafa *et al.* [106] qui obtiennent  $m = 0,015 \pm 0,002$  par mesure de fluage en nanoindentation. Limbach *et al.* [107] mesurent, quant à eux, une sensibilité à la vitesse de déformation comprise entre 0,0068 et 0,01 à partir d'essais de type "strain rate jump" – voir la définition en section 2.3.2 du chapitre 1 (p. 28). Étant donné le nombre restreint de vitesses de déformation applicables lors de ce type d'essai, à savoir : 3, la quantification de la sensibilité à la vitesse de déformation est moins précise. Ceci pourrait expliquer les valeurs plus faibles trouvées par Limbach *et al.* [107].

Pour conclure cette section, les essais de relaxation à raideur de contact constante effectués sur la silice fondue ont permis de caractériser avec précision son comportement viscoplastique sur quatre ordres de grandeur en temps. De plus, **l'établissement d'un régime d'écoulement stationnaire semble être garanti sur l'intégralité du segment de relaxation.**

Suite à cette validation, nous détaillons les résultats obtenus pour les différents polymères et l'élastomère.

### 3 Résultats

#### 3.1 PMMA, PS, PC

##### 3.1.1 Modules et spectres de relaxation

Les mesures des modules et spectres de relaxation des trois polymères thermoplastiques sont affichés sur la figure 4.8. Les résultats présentés sont issus d'essai de relaxation à raideur de contact constante avec un maintien de 10 h.

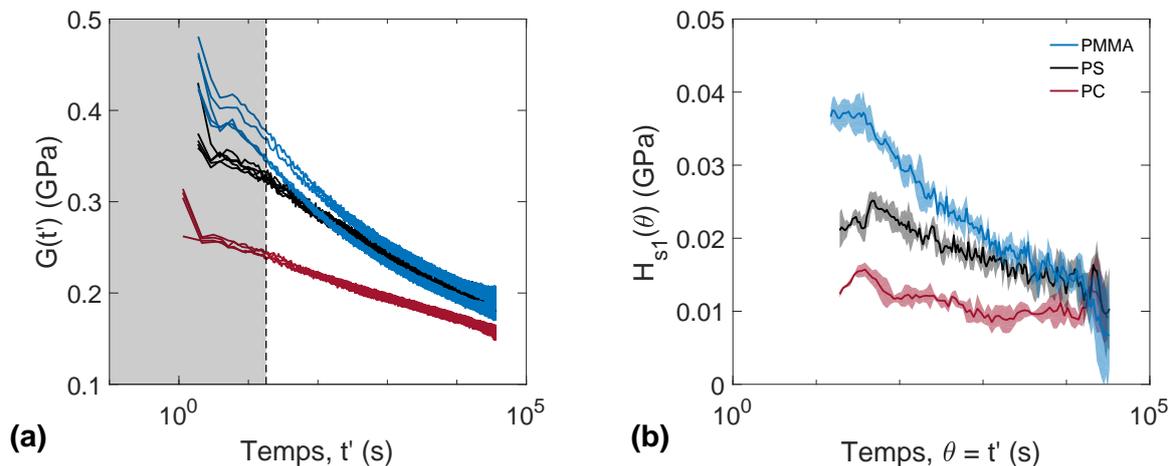


FIGURE 4.8 – Module de relaxation (a) et approximations du premier ordre des spectres de relaxation calculés (b) pour le PMMA, le PC et le PS. Les zones de couleurs claires autour des spectres de relaxation représentent les écarts types calculés sur 5 essais.

Comme il est évoqué en section 2.3.2 (p. 89), pour des raisons logicielles de stockage de données, la fréquence d'acquisition est limitée à 1 Hz – contre 50 Hz pour les essais de maintien à déplacement constant. De ce fait, les courbes de module de relaxation commencent à  $t' = 1$  s. De la même manière que pour les essais de relaxation présentés dans le chapitre 2, les résultats de spectre de relaxation ne sont exploitables qu'après la stabilisation de l'asservissement autour de la valeur de raideur cible. Le temps de stabilisation pour ce type d'essai est plus long – de l'ordre de 18 s – et les résultats présentés en figure 4.8 sont donc tronqués à cette limite basse.

Le module de relaxation à  $t' = 1$  s du PMMA est supérieur à ceux du PS et du PC mais cet écart tend à diminuer pour des temps de relaxation élevés. En effet, le module de relaxation du PMMA se confond – au bout d'environ 1000 s – avec celui du PS. En ce qui concerne les spectres de relaxation des polymères, le PMMA et le PS présentent les contributions visqueuses les plus

élevées jusqu'à environ 4h30 de maintien. Après cette période, les spectres se confondent pour les trois matériaux.

Il est important de noter ici, que certaines mesures de l'effort dévient après 5 h de maintien. Cette limitation est discutée en section 2.3.3 (p. 91). Les dérives qui en découlent – peu visible sur les mesures de module de relaxation – provoquent une dispersion assez importante sur les spectres.

### 3.1.2 Comparaison avec la littérature

**PMMA** Les résultats sont ici comparés avec les essais de la littérature, en nanoindentation et sous sollicitations macroscopiques. La figure 4.9 représente les modules (a) et spectres de relaxation (b) des différents résultats de la littérature. Les données de la littérature présentées dans cette figure correspondent à celles décrites en section 3.1.2 du chapitre 2 (p. 55).

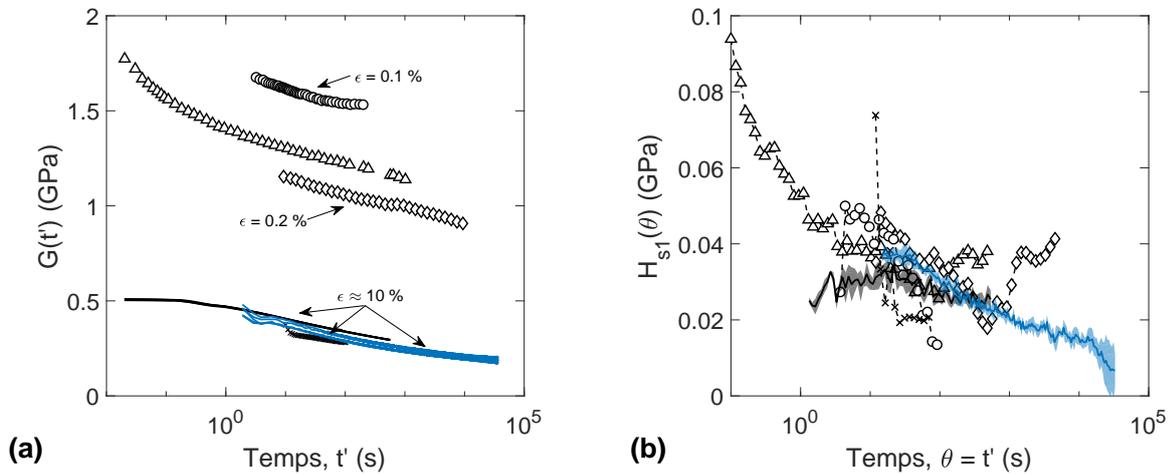


FIGURE 4.9 – Comparaison des données d'indentation avec la littérature pour le PMMA : (a) En rouge, module de relaxation obtenue à 500 nm de pénétration et pour une vitesse de déformation de  $0,05 \text{ s}^{-1}$  à raideur de contact constante ; les symboles  $\circ$  représentent les données de Vanlandingham *et al.* [57] ; les symboles  $\triangle$  représentent les données de Fernández *et al.* [79] ; les symboles  $\diamond$ ,  $\square$  et  $\times$  représentent les données de Lu *et al.* [80], Cizmecioglu *et al.* [81] et Vanlandingham *et al.* [57]. Les niveaux de déformation appliqués sont indiqués sur les courbes. (b) Les approximations du premier ordre des spectres de relaxation calculés pour les trois premières courbes de la littérature et les essais d'indentation.

Il est intéressant de noter le très bon accord entre les différents résultats de nanoindentation, à la fois sur le niveau du module de relaxation mais également sur la contribution visqueuse au cours du temps de maintien.

Les résultats du chapitre 2 et les essais à raideur de contact constante couvrent deux plages de temps de relaxation qui se recoupent entre 18 et 600 s. Ces mesures sont complémentaires, car, bien que l'essai à raideur de contact constante permette de gagner jusqu'à 2 décades de temps de caractérisation – aux temps longs –, celle-ci ne permet pas de caractériser les comportements aux temps courts – de l'ordre de la seconde.

**PC** La figure 4.10 représente la comparaison des mesures obtenues sur le polycarbonate aux résultats de Colucci *et al.* [108] obtenus en compression uniaxiale et aux données de Schiffmann [59] obtenues par nanoindentation. Là encore, nous pouvons observer, sur la figure 4.10.a, la diminution du module de relaxation mesuré avec l'augmentation du niveau de déformation appliqué, comme nous l'avons vu pour le PMMA en section 3.1.2 du chapitre 2 (p. 55).

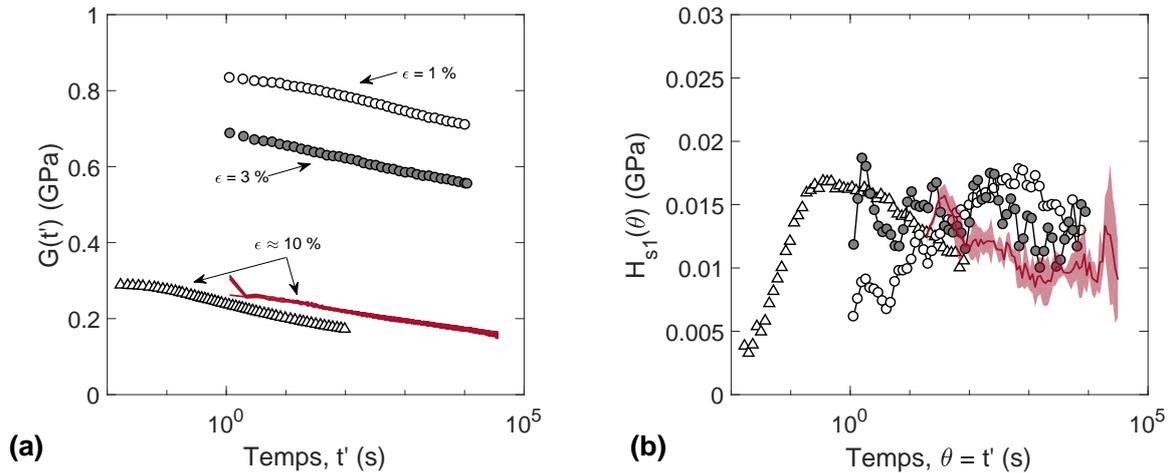


FIGURE 4.10 – Comparaison des données d'indentation avec la littérature pour le PC : (a) En rouge, module de relaxation obtenue à 500 nm de pénétration et pour une vitesse de déformation de  $0,05 \text{ s}^{-1}$  à raideur de contact constante; les symboles  $\bullet$  et  $\circ$  représentent les données de Colucci *et al.* [108]; les symboles  $\triangle$  représentent les données de Schiffmann [59]. Les niveaux de déformation appliqués sont indiqués sur les courbes. (b) Les approximations du premier ordre des spectres de relaxation calculés pour les courbes de la littérature et les essais d'indentation.

De plus, nous notons le très bon accord avec les résultats de la littérature sur l'évolution de la contribution visqueuse en fonction du temps de relaxation – voir figure 4.10.b.

### 3.1.3 Comparaison avec les essais en température pour le PMMA

La figure 4.11 représente l'évolution du module de relaxation du PMMA calculé au chapitre 3 par la méthode d'équivalence temps - température et celle mesurée à température ambiante par la procédure de maintien à raideur de contact constante – courbes en rouge. Malgré une légère différence de niveau – les essais n'ayant pas été réalisés exactement dans les mêmes conditions –, le comportement en relaxation du PMMA mesuré par les deux méthodes est très semblable.

L'essai de relaxation à raideur de contact constante effectué à température ambiante est donc équivalent à la superposition de différents essais à déplacement constant effectués sur un plage de 25 à 60 °C. Ce type d'essai présente donc un avantage certain sur la caractérisation des propriétés viscoélastique-viscoplastique des matériaux aux temps longs.

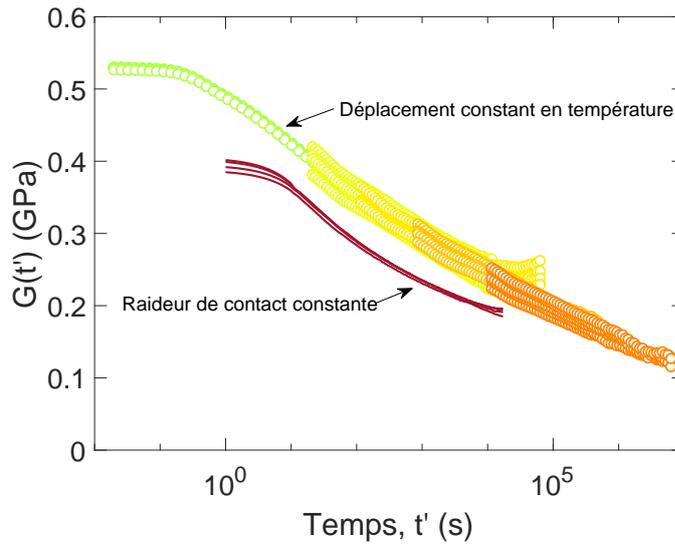


FIGURE 4.11 – Comparaison entre mesures de modules de relaxation du PMMA obtenus à déplacement constant et raideur de contact constante. Les températures des essais à déplacement constant sont – du vert vers le orange – 25, 40, 50, 60, 80 °C.

### 3.2 Élastomère

#### 3.2.1 Module et spectre de relaxation

La figure 4.12 représentent les modules et spectres de relaxation mesurés à partir des essais à déplacement constant – courbes de couleur – et des essais à raideur de contact constante – courbes noires. Une nouvelle fois, nous pouvons observer une continuité entre les deux types d’essais. De plus, nous pouvons noter un légère diminution de la dispersion des résultats sur le module de relaxation pour les essais à raideur de contact constante, ceci étant dû à la plus grande profondeur d’indentation lors du maintien – 5,5  $\mu\text{m}$  contre 2  $\mu\text{m}$  pour les essais à déplacement constant.

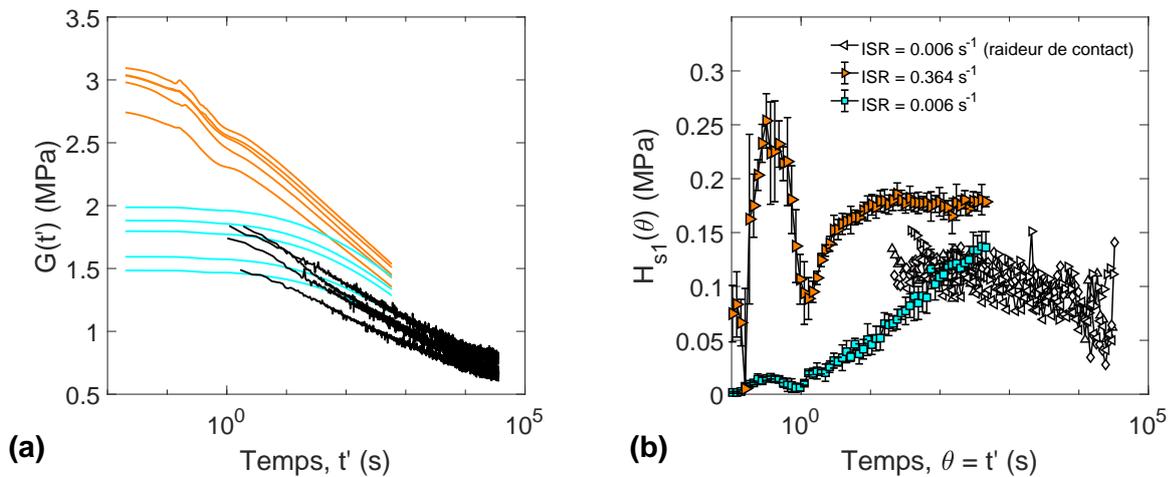


FIGURE 4.12 – Comparaison entre mesures de modules (a) et de spectres de relaxation (b) de l’élastomère – obtenus à déplacement constant et raideur de contact constante.

Nous pouvons donc considérer le matériau comme homogène à l'échelle étudiée et ainsi satisfaire l'hypothèse que le module d'élasticité est constant.

En revanche, nous avons pu noter la présence de **sauts** sur les courbes de raideurs en fonction de la profondeur de pénétration – alors qu'aucune instabilité n'avait été observée sur le tracé de la force en fonction de la pénétration. Ces augmentations plus ou moins brusques de raideur pourraient être attribuées à la répartition non homogène des agrégats de noir de carbone dans la matrice élastomère – voir figure 2.4 du chapitre 2 (p.45).

Afin de vérifier cette hypothèse, nous proposons – dans la section suivante – une analyse de ces événements.

### 3.2.2 Hétérogénéité et volume caractéristique

Comme nous l'avons exprimé dans la section précédente, nous avons observé des différences de pentes dans l'évolution de la raideur en fonction de la profondeur de contact – cette évolution doit être linéaire si la géométrie de contact ainsi que le module d'élasticité du matériau restent identiques. L'élastomère est composé d'une matrice fluoroélastomère souple, rigidifiée par l'ajout d'un réseau de nanoparticules de silice ainsi que d'agrégats de noir de carbone – voir section 2.2.2 du chapitre 2 (p. 44). Nous considérerons dans cette section que le matériau est composé de deux éléments, à savoir une matrice – élastomère + nanoparticules de silice – et des particules qui sont les agrégats de noir de carbone.

Il est considéré dans la littérature que les agrégats de noir de carbone sont 100 fois plus raides que la matrice élastomère [109]. Ceci est confirmé par les travaux de Jenei *et al.* [110] qui mesurent le module d'élasticité de nanoparticules de graphite par nano-compression. Ceux-ci trouvent un module de 8,2 GPa, en moyenne. Nous n'avons pas de valeur précise de la raideur de la matrice élastomère renforcée par le réseau de nanoparticules de silice, en revanche une étude de la matrice fluoroélastomère réalisée par Berthier *et al.* [111] indique un module de conservation d'environ 6 MPa à 25 °C, sous une sollicitation dynamique à 1 Hz. En considérant l'effet raidissant du réseau de nanoparticules, nous sommes dans les mêmes ordres de grandeurs données par Bergström *et al.* [109]. L'effet des agrégats de noir de carbone sur la **raideur locale** de l'élastomère n'est donc pas négligeable.

**Quantification des événements sur les courbes de charge** La figure 4.13 présente l'évolution de la raideur en fonction de la profondeur de contact pour deux chargements à  $\alpha = 0,006 \text{ s}^{-1}$ . Les paires de points de différentes couleurs représentent les extrémités d'un segment considéré comme "saut". La méthode de détection de ces événements est détaillée en annexe C (p. 139).

Celle-ci consiste à évaluer l'évolution d'une profondeur de contact *équivalente* – calculée à partir de la raideur de contact et d'un module d'élasticité constant, déterminé en fin de chargement – par rapport à la profondeur de contact calculée par la méthode d'Oliver et Pharr. Ainsi, toute pente supérieure à 2 est considérée comme un "saut".

Par ce traitement, nous avons pu quantifier un nombre de "sauts" moyen sur cinq courbes de chargement égal à  $10 \pm 2$ . Cette quantification reste identique pour les essais effectués à  $\alpha = 0,002 \text{ s}^{-1}$ .

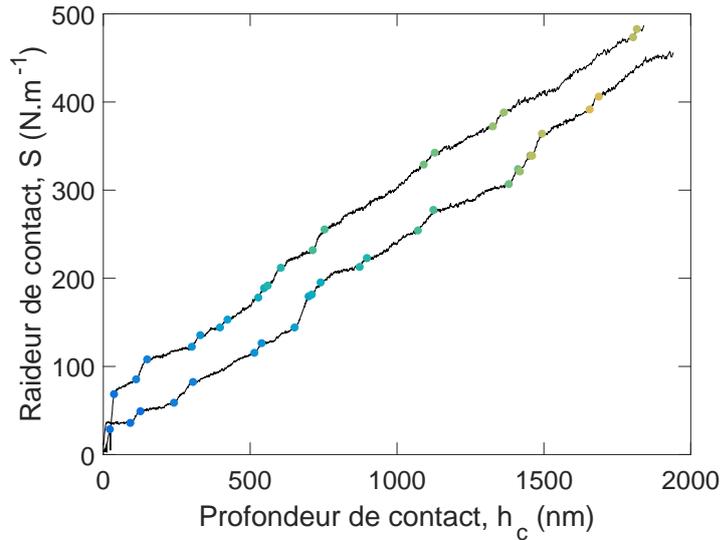


FIGURE 4.13 – Évolution de la raideur mesurée par le mode CSM avec la profondeur de contact. Les points de couleurs représentent les segments de type "saut" sur les courbes de chargements.

Suite à ce traitement, nous confrontons ces données – par le biais d’une analyse d’image – à l’évolution du nombre d’agrégats **entrants** et **entrés** en contact avec une pointe Berkovich.

**Analyse du nombre d’agrégats entrants et entrés dans le contact** La figure 4.14 représente les différentes étapes de traitement d’image nécessaires à la quantification du nombre d’agrégats entrants et entrés à un instant  $t$ . Les étapes de traitement d’image entre la figure 4.14.a et b. sont détaillées dans l’annexe C (p. 139). Ces dernières permettent d’isoler les agrégats de la matrice élastomère et d’obtenir une matrice logique de pixel : 1 pour les agrégats, 0 pour la matrice.

La figure 4.14.c représente une étape de traitement qui consiste à superposer une surface triangulaire équilatérale – surface projetée de la pointe Berkovich – sur la matrice définie en .b. La surface projetée de la pointe est successivement agrandie par pas de 1 pixel, perpendiculairement à chacun des côtés du triangle – voir schéma explicatif de la figure C.1.a en annexe C. (p. 139). L’épaisseur équivalente d’un pixel pour notre image est  $e \approx 10,4$  nm. Ceci correspond à une augmentation d’environ 36 nm de chacun des côtés et de 4,8 nm de la profondeur de contact équivalente – dans le cas d’une pointe Berkovich –, à chaque itération.

Cette profondeur de contact est calculée par l’expression suivante :

$$h_c(i) = e(N_1 + 2(i - 1) \tan(60)) \frac{\sqrt{3}}{6 \tan(65,27)} \quad (4.4)$$

Avec  $i$  le numéro de l’itération,  $N_1$  le nombre de pixels sur un côté du triangle à l’itération 1 et  $e$  l’épaisseur équivalente d’un pixel. Les angles de 60 et 65,27 °C sont relatifs à la géométrie de la pointe Berkovich.

Cette matrice de pixel est ensuite comparée à celle définie en figure 4.14.b. A chaque itération, un comptage du nombre d’agrégat entré dans la zone est effectué. La taille de ces agrégats est calculée par segmentation d’image.

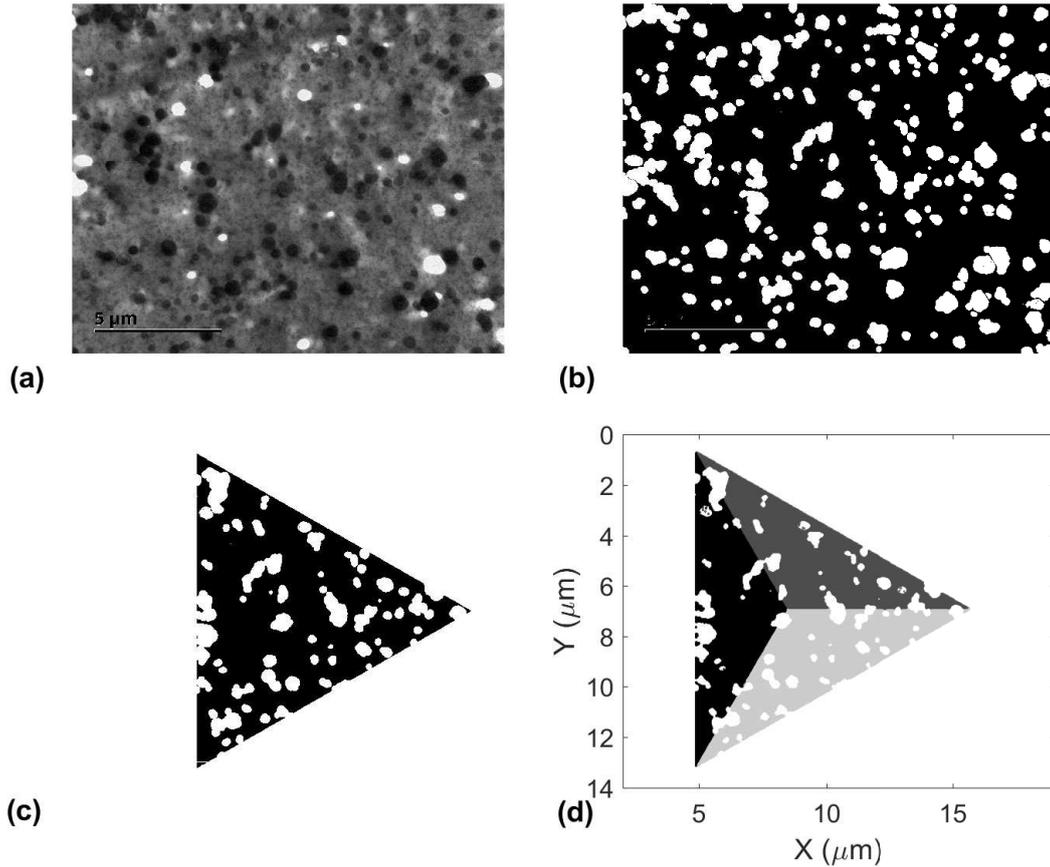


FIGURE 4.14 – Étapes du traitement de l'image de l'élastomère obtenue par microscopie à transmission (a). Les particules plus foncées représentent les agrégats de noir de carbone. Isolement des agglomérats de charge par traitement d'image (b) ; Comptage du nombre d'agrégat à l'intérieur du contact lors de l'indentation (c) et évolution de l'aire de contact pointe-agrégat avec la profondeur de pénétration (d).

La figure 4.14.d, quant à elle, représente un traitement consistant à évaluer – pour chaque itération – le nombre de pixel correspondant à un agrégat. Chacun des trois côtés du triangle est alors évalué individuellement et la surface totale d'agrégat entrant sur l'itération – équivalent à une bande de 1 pixel de largeur – est calculée. Une illustration du traitement numérique effectué sur la figure 4.14.d est donnée en annexe C (p. 139) – voir figure C.1.b.

La figure 4.15 représente l'évolution du ratio de l'aire de particule entrante sur l'aire totale de la bande entrant dans le contact – bande d'épaisseur  $e$ . Nous remarquons clairement des pics – indiqués par des flèches sur la figure 4.15. Nous pouvons ainsi interpréter les segments de pente positive comme les zones équivalentes à un "saut" sur la figure 4.13.

La figure 4.16 présentent le résultat obtenu sur l'analyse d'image de la figure 4.14.c. Le nombre d'agrégats entrants dans le contact ainsi que leur surface sont représentés en fonction de la profondeur d'indentation équivalente. Nous remarquons, là encore, une répartition in-homogène des tailles et du nombre d'agrégats qui entre dans le contact.

Les flèches indiquent les mêmes zones que sur la figure 4.15 – à savoir les pics de ratio aire

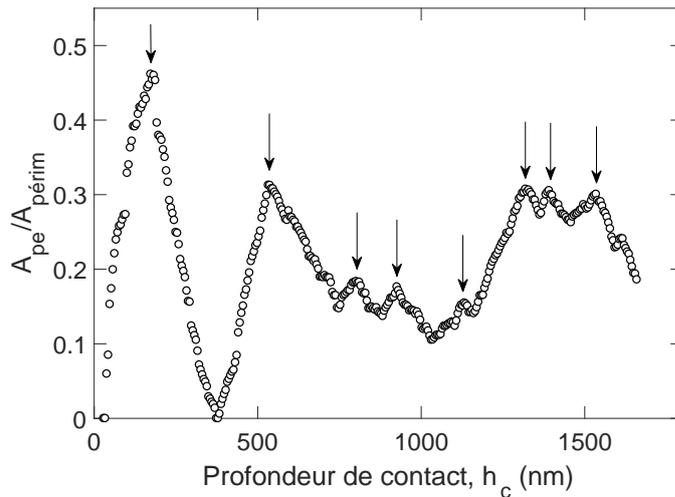


FIGURE 4.15 – Rapport de l’aire des agrégats entrants dans le contact sur le totale de l’aire entrante, en fonction de la profondeur de contact. Cette grandeur est calculée comme une bande de surface autour de la pointe.

d’agrégat entrant sur aire de surface entrante. Celles-ci précèdent systématiquement un agglomérat de taille importante ou une forte densité d’agglomérats entrés dans le contact. Nous pouvons noter qu’il n’y a pas d’agglomérat après la dernière flèche car les éléments comptés sur la figure 4.15 ne sont pas totalement entrés dans le contact, et donc pas encore comptabilisés.

**Comparaison des résultats** L’augmentation de profondeur de contact relative aux segments calculés par analyse d’image – figure 4.15 – est estimée entre 15 et 170 nm environ. Ces valeurs sont comparables à celles évaluées à partir des résultats de la figure 4.13 où nous trouvons des profondeurs de sauts comprises entre 20 et 50 nm. De plus, le nombre d’évènements compté par chaque méthode est d’environ  $10 \pm 2$  sur la même taille d’empreinte étudiée.

Ainsi, avec les deux interprétations présentées, il semble raisonnable de penser que la réponse instable de la raideur avec la profondeur de pénétration est due à l’entrée de nouvelles particules dans le contact. Celles-ci participent également à l’augmentation de la surface équivalente de contact dès lors qu’elles touchent la pointe. Aux vus des écarts importants de propriétés mécaniques entre la matrice élastomère et les agrégats de noir de carbone, ces derniers – lorsque en contact avec la pointe – joueraient le rôle d’extension rigide de l’indenteur.

Néanmoins, nous faisons l’hypothèse que seuls les agrégats présents en surface ont une influence sur l’évolution de la raideur de contact. En effet, l’estimation du nombre d’agrégats entrants est effectuée sur un matériau d’une épaisseur d’environ 100 nm – soit l’épaisseur de la lame MET, voir figure 4.14. Cet hypothèse peut être discutée dans le sens où le volume élastique sollicité lors de l’indentation est bien supérieur – dans le cas de notre élastomère.

En considérant les travaux de Tabor [15] et Johnson [90], le volume plastique lors de l’indentation est relatif au rapport  $E/pm \tan(\beta)$  – dans le cadre des petites déformations. Pour des ratios inférieurs à environ 2, la déformation est quasiment entièrement élastique [90]. Dans le cas de notre

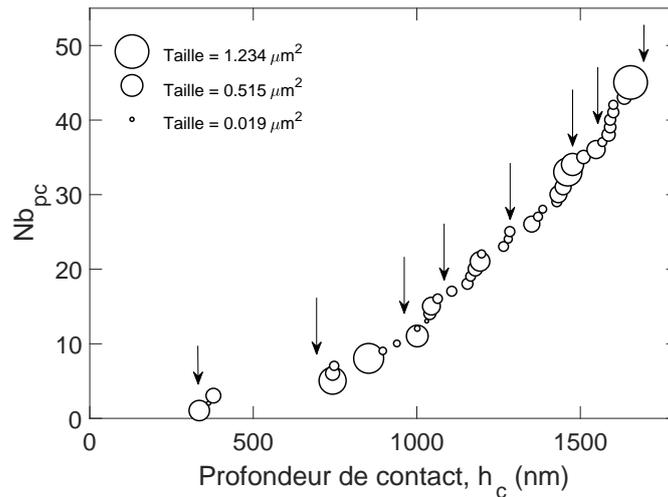


FIGURE 4.16 – Nombre d'agrégats entrés dans sous la pointe en fonction de la profondeur de contact.

élastomère, en considérant un module d'élasticité de 15 MPa – voir section 2.2.2 du chapitre 2 (p. 44) – et une résistance à la pénétration d'environ 1,3 MPa – voir figure 2.22, aux vitesses de déformation faibles – nous calculons un ratio d'environ 4.

La déformation du matériau autour de la pointe est donc majoritairement élastique et, en ce sens, le volume de déformation élastique représentatif est grand en comparaison de celui de la pointe. Nous pourrions donc nous attendre à un effet de moyenne de la mesure de raideur de contact, sur le volume représentatif. Ce qui ne semble pas être le cas puisque nous observons des in-homogénéités sur les courbes de chargement – voir figure 4.13.

L'hypothèse effectuée en premier lieu peut cependant être soutenue par le fait que la matrice élastomère est très souple en comparaison des agrégats. Ainsi, les agrégats situés "loin" du contact ne seraient que très peu sollicités car la matrice élastomère amortirait l'amplitude d'oscillation appliquée par le mode dynamique du nanoindenteur.

## 4 Bilan et ouvertures

Une nouvelle méthode d'indentation basée sur la mesure de la relaxation des matériaux lors d'un maintien à raideur de contact constante a été développée. Celle-ci repose principalement sur l'hypothèse des petites déformations ainsi que sur la considération d'un module d'élasticité homogène.

### 4.1 Mesure de la relaxation aux temps longs

Nous avons prouvé la capacité de la méthode à caractériser les comportements visqueux pour des temps de maintien jusqu'à 10 h. Les essais effectués sur la silice ont permis de mettre en valeur le caractère **stationnaire** de l'écoulement en relaxation. De plus, la sensibilité à la vitesse de déformation,  $m$ , déterminée en relaxation, est en parfait accord avec la littérature [106].

Les résultats obtenus pour les polymères sont également en bon accord avec les comportements visqueux déterminés dans la littérature. L'obtention de la **contribution viscoélastique ou viscoplastique est correctement caractérisée** malgré l'application d'un niveau de déformation relativement élevé –  $\epsilon \approx 10\%$ . Dans le cas du PMMA, le module de relaxation mesuré sur 10 h de maintien est très proche de celui calculé par la méthode d'équivalence temps-température. Finalement, la relaxation à raideur de contact constante sur l'élastomère est cohérente avec les valeurs obtenues à déplacement constant.

## 4.2 Problématique de la caractérisation aux temps courts

Nous avons vu que l'asservissement demeure, comme dans le cas du maintien à déplacement constant, la limite majeure de la caractérisation du comportement en relaxation aux temps courts. Malgré l'obtention de relativement faibles dépassements de la consigne en raideur – inférieurs à 5 % – la perte d'information lors de la première seconde de maintien représente jusqu'à 30 % de la charge maximale atteinte. Des développements devront être fait sur les systèmes de contrôle pour améliorer le temps de réponse des nanoindenteurs et accéder à ces informations.

## 4.3 Couplage avec les essais en température

L'intérêt fondamental de cette méthode est d'améliorer la stabilité des mesures aux temps longs, afin de caractériser au mieux les propriétés visqueuses des matériaux. La prochaine étape sera de coupler ce type de méthode aux essais en température pour palier les limites développées dans le chapitre 3 – en section 5.3 (p. 64).

## 4.4 Estimation de l'hétérogénéité du matériau par la raideur de contact

L'utilisation du mode de chargement dynamique – CSM – lors de l'indentation de l'élastomère nous a permis de nous rendre compte de l'hétérogénéité du matériau aux échelles étudiées. La présence d'agrégats de noir de carbone, dispersés de manière in-homogène à l'échelle du micron, a pu être détectée par la mesure de la raideur de contact. Cette mesure, couplée à une analyse d'image MET nous a permis de lier la présence de "sauts" de raideur à l'entrée de nouveaux agrégats à la périphérie du contact. Cette étude nous conduit à penser que seuls les particules en contact direct avec la pointe ont un effet sur l'évolution de la raideur du contact. Ainsi, la mesure dynamique pourrait être utilisée pour quantifier l'hétérogénéité d'un matériau à l'échelle de la centaine de nanomètres.

## 4.5 Vers une approche statistique de l'hétérogénéité du matériau

A la suite de ce développement, nous pouvons envisager une approche statistique de l'hétérogénéité du matériau en effectuant une comparaison plus poussée de la probabilité d'apparition d'un "saut" de raideur en fonction de la probabilité qu'une particule entre dans le contact. Pour ce faire, nous aurons besoin d'un plus grand nombre d'image MET ainsi qu'un plus grand nombre d'essais d'indentation.

## Chapitre 5

# Application de la nanoindentation haute température à la caractérisation *in situ* des évolutions microstructurales d'un alliage d'aluminium

### 1 Motivations de l'étude

De récents développements dans les techniques de mise en forme avancées – tel que la fabrication additive [112, 113] ou les traitements mécaniques de surface [114, 115] – mènent à la création de matériaux avec de forts gradients de microstructure et de propriétés mécaniques proches de leur surface. La caractérisation de la recristallisation statique de ce type de matériaux est une des questions importantes à traiter dans les prochaines années, à la fois d'un point de vue scientifique et industriel [116].

Celle-ci devra être faite à très petite échelle étant donné le caractère local des modifications microstructurales induites. En ce sens, la nanoindentation instrumentée est un outil potentiellement adapté à la réalisation de ce type d'études. Différentes méthodes de caractérisations locales existent déjà dans la littérature. Notamment, les essais d'indentation sont communément utilisés comme mesure *post mortem* des variations de propriétés mécaniques [117, 118, 119, 120]. Des observations microstructurales EBSD permettent également d'extraire une fraction recristallisée des cartographies [117].

Certaines méthodes *in situ* ont également été développées pour suivre en temps réel la cinétique de recristallisation, telles que la diffraction de neutron [121], les mesures EBSD [122, 123] ou encore des mesures au synchrotron [124, 125].

Néanmoins, ces études restent très longues à mettre en œuvre et sont souvent coûteuses. Nous étudierons dans ce chapitre l'application de la nanoindentation instrumentée à la mesure *in situ* de la cinétique de recristallisation dans le but de mettre en avant ses avantages – que sont la rapidité de caractérisation et son coût d'utilisation réduit – ainsi que ses principales limites à prendre en considération.

## 2 Méthode expérimentale

### 2.1 Préparation des échantillons

#### 2.1.1 Échantillons

L'alliage d'aluminium 1050 étudié est le même que celui décrit dans le chapitre 2. Sa composition chimique est donnée dans le tableau 3.2. Le matériau étudié dans cette section est fortement écroui suite à un laminage à chaud.

Des échantillons de  $12 \times 10 \text{ mm}^2$  sont découpés dans une plaque d'épaisseur 1 mm. Le but de cette étude étant de caractériser la cinétique de recristallisation de cet alliage, nous faisons particulièrement attention à ne pas modifier la microstructure initiale du matériau lors des étapes de préparation de nos échantillons. Ainsi, pour limiter l'échauffement du matériau, un enrobage à froid est réalisé.

#### 2.1.2 Polissage

Le polissage est effectué au laboratoire Georges Friedel des Mines de Saint Etienne. La procédure complète est détaillée dans le tableau 5.1. Les étapes de polissage de 1 à 13 sont effectuées sur une polisseuse automatique avec serrage concentrique de l'échantillon – de manière à garantir le meilleur parallélisme entre les deux surfaces opposées des échantillons. Les étapes "Ultrason" correspondent à un nettoyage des résidus de silice du papier précédent. Une attaque est réalisée – étape 11 – pour relâcher les contraintes résiduelles accumulées lors des premières étapes de polissage mécanique.

#### 2.1.3 Caractérisation métallographique

La caractérisation métallographique est effectuée par diffraction des électrons rétro-diffusés – EBSD<sup>1</sup> – sur un microscope électronique à balayage – MEB – Zeiss Supra 55 VP<sup>®</sup>. Nous utilisons une tension d'accélération de 20 kV. Les cartographies sont réalisées avec un pas de 600 nm. La qualité du polissage nous permet d'obtenir des taux d'indexation de l'ordre de 95 %. La figure 5.1 illustre l'image de la surface de l'échantillon – après polissage – obtenue par contraste de bande. Afin de reconnaître par la suite les zones à caractériser, nous effectuons une grille d'indents Vickers espacés de  $400 \mu\text{m}$  – voir figure 5.1.a.

### 2.2 Cinétique de chauffage et procédure d'indentation

Les essais sont réalisés sur le système Bruker Ti950<sup>®</sup> décrit en section 1.1.2 du chapitre 3 (p. 65). La procédure consiste à indenter l'échantillon à différents endroits et après différents temps de revenu, au sein du nanoindenteur à haute température. Le temps de revenu est considéré comme le temps à partir duquel la température de revenu est atteinte. Un temps minimum de 10 min après avoir atteint la température de revenu est nécessaire avant d'effectuer la première indentation. Cette période permet une stabilisation de la température de la pointe au sein du micro-four et limite la dérive thermique lors de l'essai.

---

1. EBSD pour "Electron Back Scatter Diffraction"

TABLE 5.1 – Procédure de polissage.

Étapes	Papier	Charge (daN)	Vitesse de rotation ( $\text{min}^{-1}$ )	Temps de maintien (s)
1	P320	7	150	60
2	P600	2	150	15
3	Ultrason		2 min	
4	P1200	3	150	60
5	Ultrason		2 min	
6	P2500	3	150	60
7	Ultrason		2 min	
8	Solution $3 \mu\text{m}$	5	300	150
9	Ultrason		2 min	
10	Solution $1 \mu\text{m}$	3,5	300	150
11	Attaque Keller		1 min	
12	Solution $1 \mu\text{m}$	3,5	300	150
13	Silice colloïdale	2	150	180
14	Silice colloïdale + Vibromètre		10 Hz toute la nuit	
15	Solution $1 \mu\text{m}$	3,5	300	60

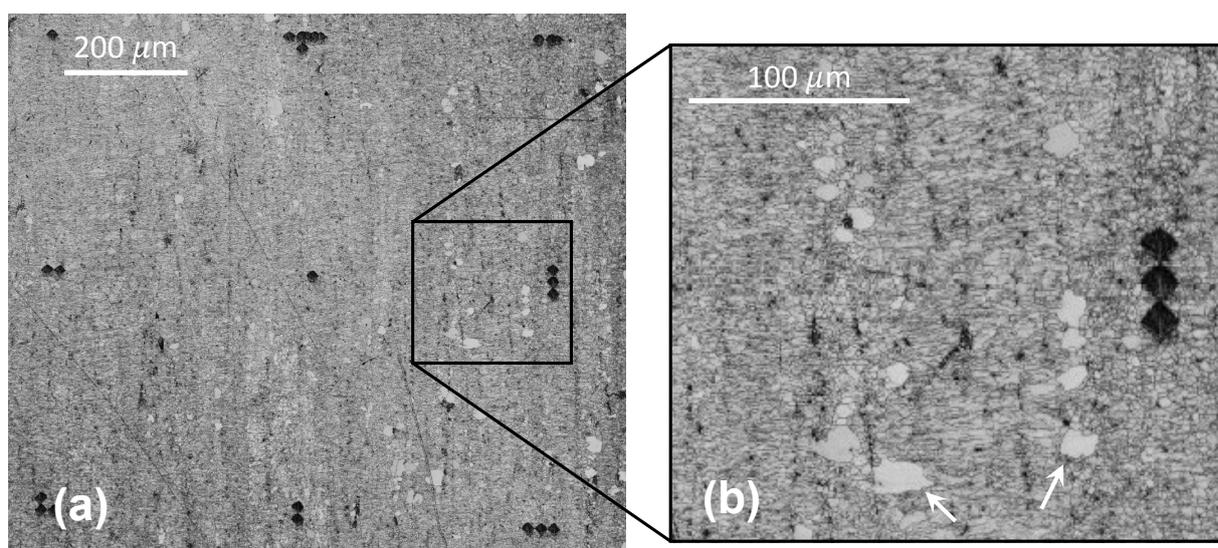


FIGURE 5.1 – Image en contraste de bande de l'échantillon 2. (a) Image complète de la grille d'indents Vickers réalisés pour repérer la surface. (b) Agrandissement d'une zone dans laquelle nous remarquons la présence de grains non-écrouis – indiqués en partie par les flèches blanches.

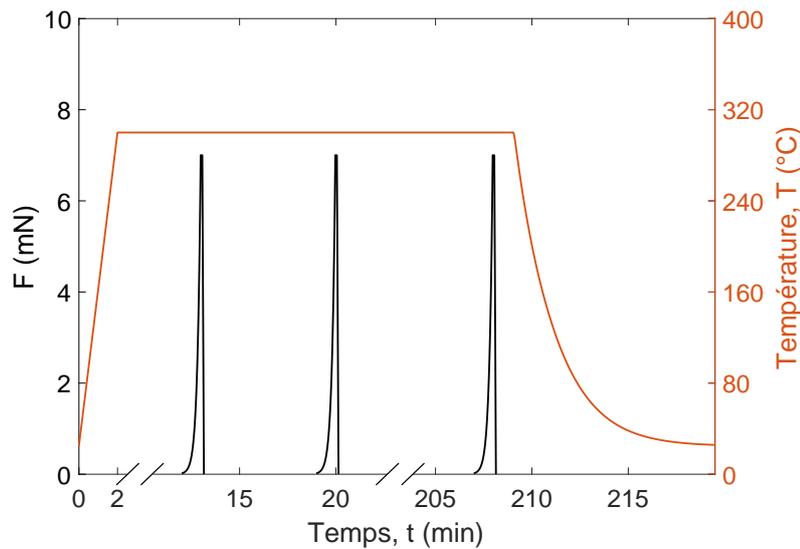


FIGURE 5.2 – Procédure de chargement et cinétique de chauffage pour la réalisation des mesures de recristallisation *in situ*. Les courbes noires représentent la charge appliquée et la courbe rouge la température.

TABLE 5.2 – Description des échantillons et des procédures utilisées.

Éch.	Température de revenu (°C)	Temps de revenu (min)	Vitesse de déformation (s <sup>-1</sup> )	Charge maximum (mN)
1	300	165	0,1	7
2	300	210	0,1	7
3	325	203	0,1	7

### 2.2.1 Description des échantillons et des cinétiques

Le temps total nécessaire à effectuer une indentation est de 5 min, nous réalisons donc – au mieux – une indentation toute les 7 min. La procédure de chargement ainsi que la cinétique réelle de chauffe sont indiquées sur la figure 5.2. Les essais sont réalisés sur trois échantillons. Deux échantillons subissent un revenu à 300 °C et un échantillon, un revenu à 325 °C. Un récapitulatif des températures et temps de revenu ainsi que des principaux paramètres de chargement est donné dans le tableau 5.2. Pour chaque indentation, la charge maximale est maintenue 5 secondes puis la décharge se fait en 5 secondes. Le module CSM est utilisé avec les paramètres détaillés dans le tableau 3.1 – en section 1.1.3 du chapitre 3 (p 66).

### 2.2.2 Dérive thermique

La dérive thermique est évaluée avant chaque essai en maintenant une force de 2  $\mu\text{N}$  pendant 60 s. Le calcul de dérive est effectué sur les 20 dernières secondes de maintien [68]. Les dérives thermiques mesurées sont comprises entre  $-2 \text{ nm}\cdot\text{s}^{-1}$  et  $-0,1 \text{ s}^{-1}$ . La profondeur de pénétration est

corrigée en considérant un taux de dérive constant – étant donné que le temps de l’essai est du même ordre de grandeur que le temps de caractérisation de la dérive.

Cependant, il est à noter que les niveaux de dérives ne sont pas négligeables par rapport à ceux communément admis à température ambiante – dérives aux alentours de  $0,05 \text{ nm.s}^{-1}$  voir section 2.3.4 du chapitre 2 (p. 51). Malgré cette limitation, aucune influence de la dérive sur la mesure de la dureté n’est perçue sur les essais réalisés. En d’autres termes, les taux de dérives ne sont pas corrélés aux duretés mesurées.

## 2.3 Caractérisation de la cinétique de recristallisation

### 2.3.1 Équivalence dureté - fraction recristallisée

La fraction recristallisée,  $H_{REX}$ , est reliée à la dureté par l’expression suivante [126] :

$$X_{REX} = \frac{H_{def} - H_t}{H_{def} - H_{REX}} \quad (5.1)$$

Avec  $H_{def}$ ,  $H_{REX}$ ,  $H_t$ , les duretés à l’état déformé, à l’état recristallisé et après  $t$  minutes de revenu, respectivement.

### 2.3.2 Essais *in situ* sur Ti950<sup>®</sup>

Comme nous l’avons indiqué dans la section 2.2.1 de ce chapitre (p. 110), le module CSM est utilisé lors du chargement. Celui-ci nous permet d’effectuer des mesures du module d’élasticité ainsi que de la dureté en fonction de la pénétration. Ces propriétés sont calculées à partir du modèle de Loubet *et al.* [35] détaillé en section 2.2.4 du chapitre 1 (p. 23). Ce modèle est utilisé en raison de la présence de bourrelets à la périphérie des empreintes après essais. En effet, nous avons réalisé des mesures de topographie des indents à l’aide du module d’imagerie – "Scanning Probe Microscopy" – du nanoindenteur – voir figure 5.3.

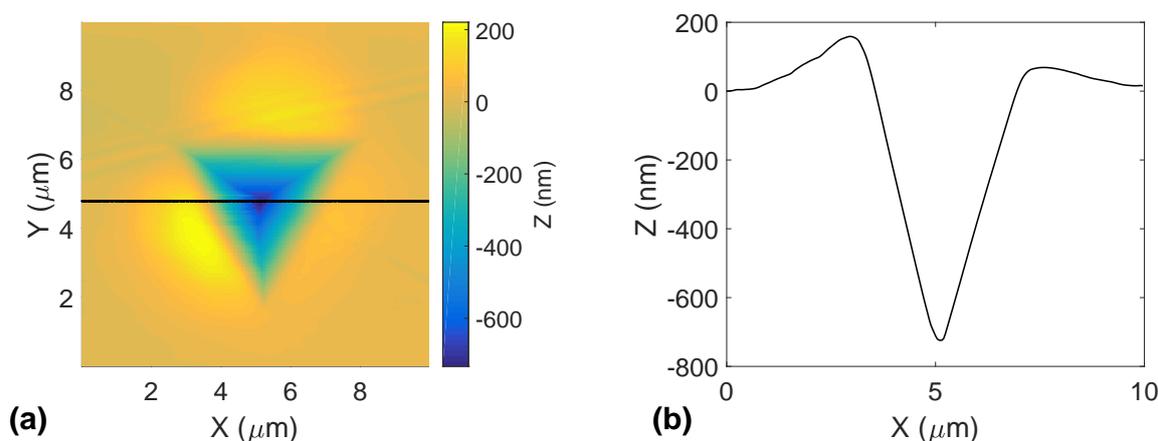


FIGURE 5.3 – Topographie et profil d’un indent effectués par le module d’imagerie – "Scanning Probe Microscopy" – du nanoindenteur Hysitron Ti950<sup>®</sup>. (a) Topographie d’une indentation Berkovich sur un alliage d’aluminium corroyé AA1050, en cours de recuit. (b) Profil mesuré au niveau de la ligne noire sur (a) ; Nous notons la présence de bourrelets à la périphérie du contact.

### 2.3.3 Essais *post mortem* sur duromètre Vickers

Une caractérisation "classique" de recristallisation est effectuée en parallèle des essais *in situ* sur un duromètre Vickers – Buehler<sup>®</sup>, Lake Bluff, Illinois – avec une charge de 1 kgf. Neuf échantillons d'alliage AA1050 sont plongés dans un bain de sel liquide à 300 °C pendant différentes durées – à savoir : 60, 300, 600, 900, 1800, 2700, 3600, 7200 et 10800 s. Après chaque recuit, les échantillons sont trempés à l'eau. Les échantillons sont ensuite successivement polis pour finir avec une solution diamantée de 3  $\mu\text{m}$ .

Chaque résultat discuté dans cette étude représente la moyenne et l'écart type calculé sur 5 mesures de dureté.

## 3 Résultats sur Al1050

### 3.1 Évolutions microstructurales

La figure 5.4 montre la microstructure de l'échantillon 1 écroui et après 2h45 de recuit à 300°C. Les orientations des grains par rapport à la normale sont données en IPF<sup>2</sup> – figure de pôle inversée. Les lignes noires représentent les joints de grains avec une désorientation supérieure à 15 ° et les lignes rouges, une désorientation supérieure à 2 ° – ces dernières limites sont affiliées aux sous-grains. La microstructure initiale du matériau est typique d'une mise en forme par laminage à chaud avec de longs grains orientés dans la direction de laminage – voir figure 5.4.a – eux-mêmes subdivisés par un réseau de sous-joints de grains. Cette microstructure révèle le haut niveau d'énergie emmagasinée par déformation plastique lors de la mise en forme. La taille moyenne des sous-grains est de 1  $\mu\text{m}$ .

La texture cristallographique avant et après recuit est représentée sur la figure 5.5. La texture à l'état écroui est très proche de celle observée par Miszczyk *et al.* [119] pour le même alliage. Nous observons sur la figure 5.5.b le développement d'une forte orientation cube après recuit ce qui est une preuve que la recristallisation a bien eu lieu, pour ce type de matériau laminé à chaud [127, 128].

La recristallisation est également très visible sur les figures 5.4c et d où la densité de sous-joints a fortement diminué et la taille de grain moyenne atteint 50  $\mu\text{m}$ .

Des triangles bleus sont placés sur la figure 5.4.d afin de visualiser la position des indents par rapport à la microstructure. De la même manière, sur la figure 5.4.b, des ronds blancs illustrent la position des futures empreintes. La taille des symboles est à l'échelle des empreintes réelles. Nous pouvons ainsi voir qu'un indent couvre plusieurs sous-grains à l'état écroui – typiquement entre 5 et 10 – alors qu'il ne repose que sur un seul grain à l'état recuit.

### 3.2 Courbes d'indentation

La figure 5.6 représente les courbes de chargement effectuées sur l'échantillon 2 à différents temps de recuit. Pour des raisons de lisibilité, seul le chargement est représenté. Les courbes obtenues sur les échantillons 1 et 2 présentent la même tendance avec l'augmentation du temps de recuit. Comme indiqué dans la section 2.2.1 (p. 110), les indentations sont effectuées – au mieux – toutes les 7 min.

---

2. IPF pour "Inverse Pole Figure"

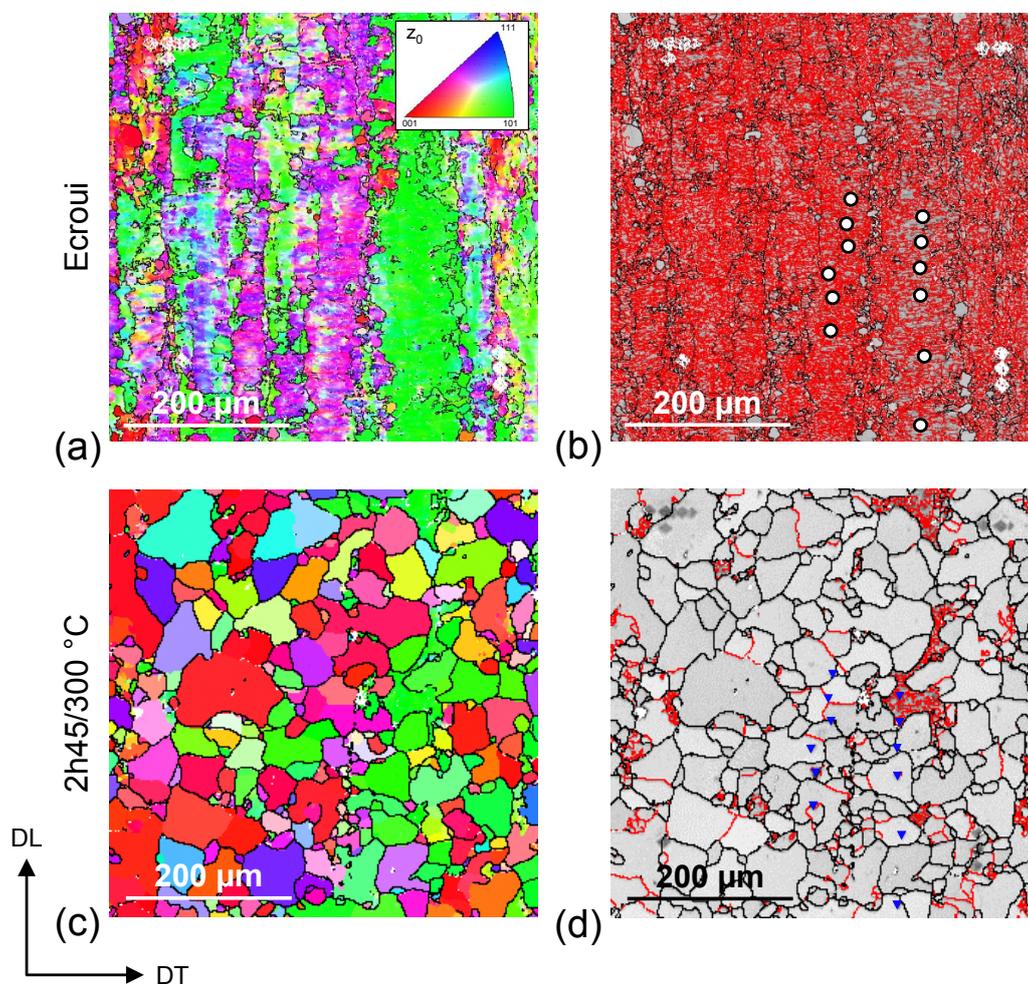


FIGURE 5.4 – Cartographies EBSD de l'échantillon 1 effectuées à la même position : (a,b) avant revenu et (c,d) après 2h45 à 300 °C. (a,c) donnent les orientations des grains par rapport à la normale à la surface en IPF – "Inverse Pole Figure" – et (b,d) sont les mêmes cartographies affichées en contraste de bande. Les lignes noires et rouges représentent les joints de grain avec plus de 15 ° et 2 ° de désorientation, respectivement. Les cercles blancs représentent la position des futures indents (b). Les triangles bleus représentent la position des indents après les essais *in situ*.

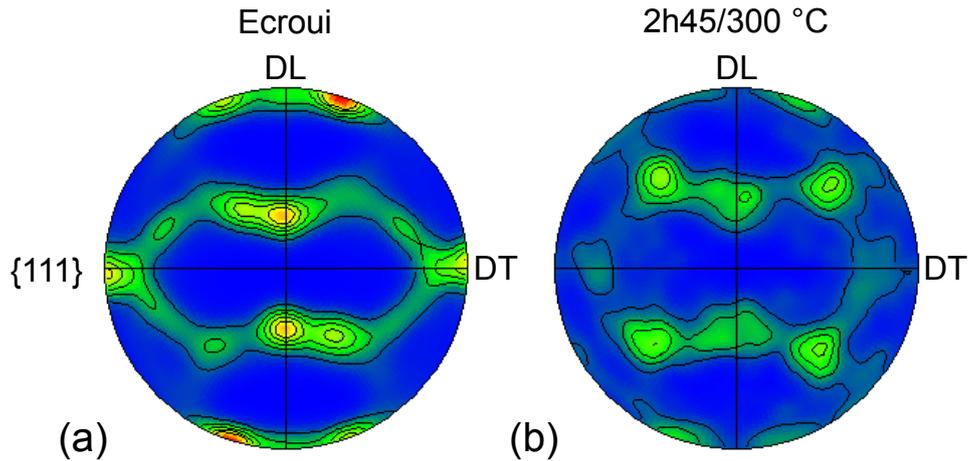


FIGURE 5.5 – Figures de pôle représentant la texture de l’alliage d’aluminium (a) écroui et (b) recuit pendant 2h45 à 300 °C dans le plan DL - DT – Directions de laminage et transversale, respectivement.

Dans certains cas, l’intervalle de temps entre deux indentations est plus élevé. En effet, quelques essais n’ont pas été effectués en raison d’une mauvaise détection du contact ou d’adhésion de la pointe à l’échantillon lors du retrait.

Néanmoins, nous observons de façon très claire la chute de résistance à la pénétration en fonction du temps de recuit : la profondeur de pénétration passe de 1000 nm à 1400 nm pour la même charge de 7 mN. De plus nous pouvons noter l’apparition de sauts d’enfoncement soudain appelés "pop-in" à partir d’un certain temps de recuit.

### 3.3 Propriétés mécaniques

#### 3.3.1 Dureté et module d’élasticité

La figure 5.7 présente les mesures de module d’élasticité et de dureté effectuées – en fonction de la profondeur de pénétration – par le mode CSM. Pour des raisons de lisibilité, seul certain temps de recuit sont affichés. Ces mesures correspondent aux courbes de chargement effectuées sur l’échantillon 2 et présentées en figure 5.6.

Les mesures de module d’élasticité sont très bruitées en raison de la faible amplitude de déplacement du mode CSM utilisée – entre 0,4 et 1 nm. Les résultats moyennés entre 850 et 900 nm sont compris entre 55 et 77 GPa. Au vu du bruit de mesure, le module reste constant quel que soit le temps de recuit et par conséquent l’état de la microstructure. Un effet d’échelle typique est visible sur les premières centaines de nanomètres de la mesure de dureté effectuée à 29 min de recuit – voir figure 5.7.b. Ce phénomène peut être expliqué par la création de dislocations géométriquement nécessaires – GNDs<sup>3</sup> – provoquée par la déformation plastique autour de la pointe [129, 130]. Pour des temps de recuit plus importants, un pop-in apparaît aux alentours de 50 nm de pénétration et la dureté chute significativement – voir la vue détaillée de la figure 5.6. Pour chaque essai, la dureté

3. GNDs pour "Geometrically Necessary Dislocations"

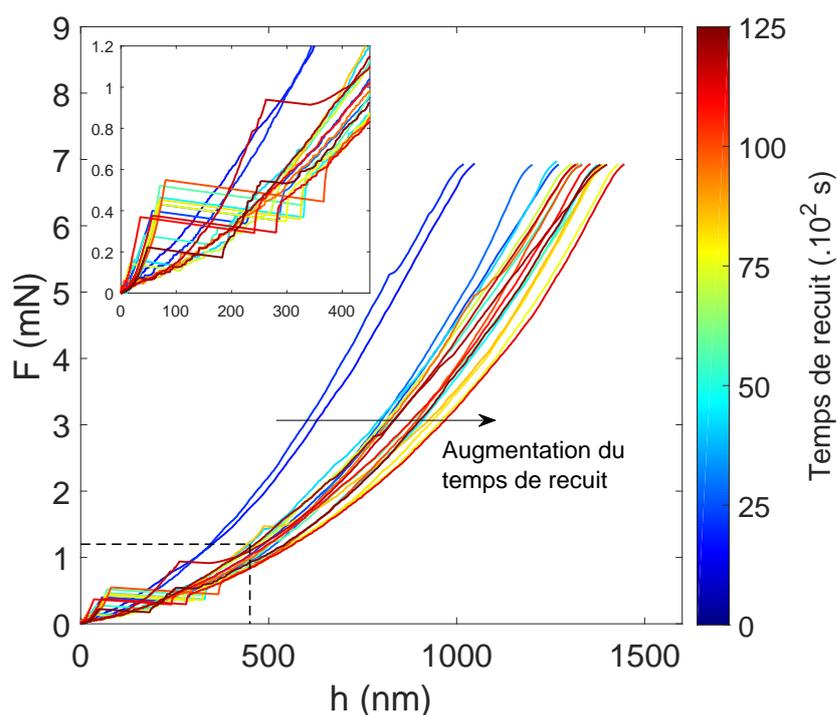


FIGURE 5.6 – Courbes de chargement obtenues à 300 °C sur l'échantillon 2. Pour des raisons de lisibilité, seules les courbes de chargement sont affichées. L'échelle de couleur représente le temps de recuit. Une vue détaillée des mécanismes de déformation sous faible charge est donnée.

peut être considérée comme constante aux pénétrations élevées. Nous prendrons pour la suite de cette étude les valeurs moyennes de dureté obtenues entre 850 et 900 nm.

La figure 5.8.a présente les résultats de dureté moyennés et obtenus sur les échantillons 1, 2 et 3 en fonction du temps de recuit. Sur le même graphique est affiché les duretés Vickers effectuées de façon *post mortem* – comme détaillé en section 2.3.3 (p. 112). Les échelles de dureté sont ajustées pour afficher la même chute de dureté. Cependant, la chute de dureté Vickers est de 20 % après 3 h de recuit à 300 °C alors que celle mesurée par nanoindentation en température est de 50 %.

### 3.3.2 Apparition de pop-in

La figure 5.8.b présente l'évolution de l'amplitude du plus grand pop-in en fonction du temps de recuit. Nous remarquons une transition – déjà visible sur les courbes de chargement de la figure 5.6 – entre la présence ou non de pop-in lors du chargement. Les bandes de couleur sur les figures 5.8.a et .b soulignent cette zone de transition. Pour les temps de recuit courts, aucun pop-in n'apparaît et à partir d'un certain temps de maintien nous mesurons une amplitude – variant de quelques dizaines de nanomètres à 400 nm.

Nous pouvons remarquer que la transition d'apparition des pop-in correspond parfaitement à la période de chute de dureté pour les essais effectués à 300 °C. En ce qui concerne les essais effectués à 325 °C, l'interprétation est plus compliquée car le phénomène de recristallisation a certainement commencé avant la première mesure. La zone de transition en rouge est donc indicative.

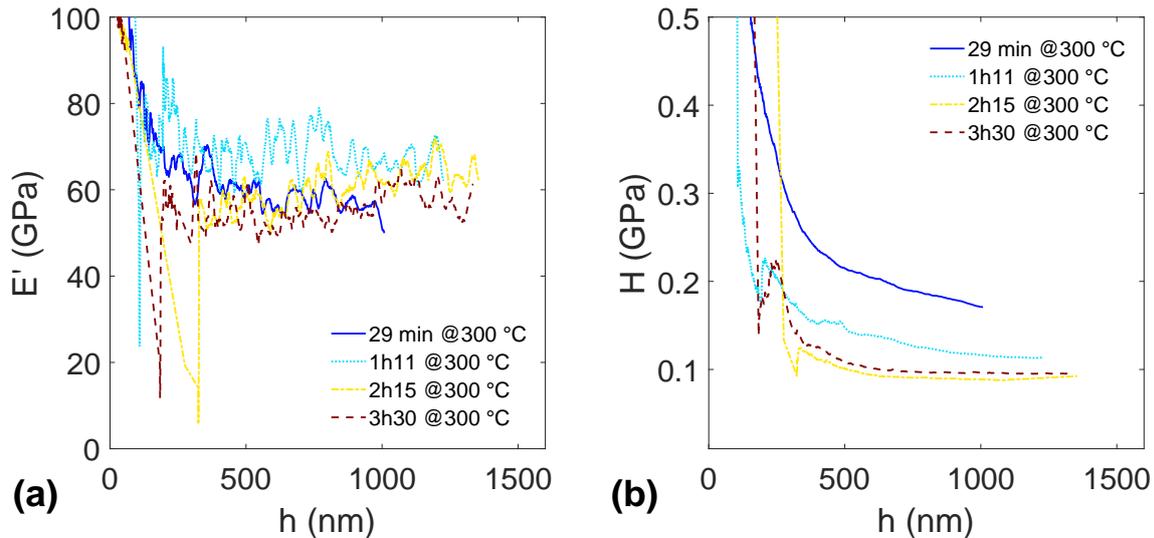


FIGURE 5.7 – Propriétés mécaniques mesurées par le mode CSM en fonction de la profondeur d'indentation : (a) Module d'élasticité et (b) dureté.

### 3.3.3 Indice de viscoplasticité

Lors de chaque essai une période de maintien de la force pendant 5 s est effectuée. Durant cette phase, nous mesurons l'augmentation du déplacement pour estimer l'indice de viscoplasticité  $n$  par fluage. En utilisant l'équation 1.25 décrite dans la section 1.3.3 (p. 13) du chapitre 1, nous traçons l'évolution de la vitesse de déformation plastique en fonction de la dureté sur un graphique log-log. Nous calculons ensuite la pente de ces droites pour extraire  $n$ . Les essais étant effectués au delà de 300 °C, l'hypothèse de fluage stationnaire pour ce type d'alliage d'aluminium est vérifiée [49]. Néanmoins, – et contrairement à Phani *et al.* [49] – la cinétique de chargement n'est pas dédiée à la mesure en fluage mais plutôt à la mesure des propriétés mécaniques lors du chargement. En effet, nous appliquons une vitesse de déformation constante lors du chargement, ce qui implique un temps de montée en charge plus important – de l'ordre de 60 s – comparé à 1 s de chargement dans l'étude de Phani *et al.* [49]. De fait, la réponse viscoplastique lors du maintien à force constante est plus faible pour nos essais, ce qui réduit la plage de données utilisables pour évaluer l'indice de viscoplasticité – voir section 2.2.3 du chapitre 3 (p. 73).

La figure 5.9 représente l'évolution de l'indice de viscoplasticité  $n$  avec le temps de recuit pour les trois échantillons étudiés. Les bandes grises et rouges représentent les zones de transitions repérées sur la figure 5.8, pour comparaison. Nous observons que l'indice de viscoplasticité augmente avec le temps de recuit jusqu'à la zone de transition – pour les essais effectués à 300 °C – et tend à se stabiliser autour de  $n = 12$ , au-delà. Dans le cas de l'essai à 325 °C, la tendance reste la même pour les temps de recuit élevés – en revanche nous ne pouvons pas observer de phase d'augmentation claire, pour la même raison que nous avons évoquée en section 3.3.2 (p. 115).

Miller *et al.* [99] trouvent un indice de viscoplasticité compris entre 10 et 15 pour un aluminium pur, sous une déformation de 10 % et pour des températures autour de 0,5-0,6  $T_m$ . D'après les données de Phani *et al.* [49] sur un alliage d'aluminium A1100 recuit, obtenues en fluage par nanoindentation à 292 °C, nous estimons un indice de viscoplasticité proche de  $n = 9$ . Les résultats

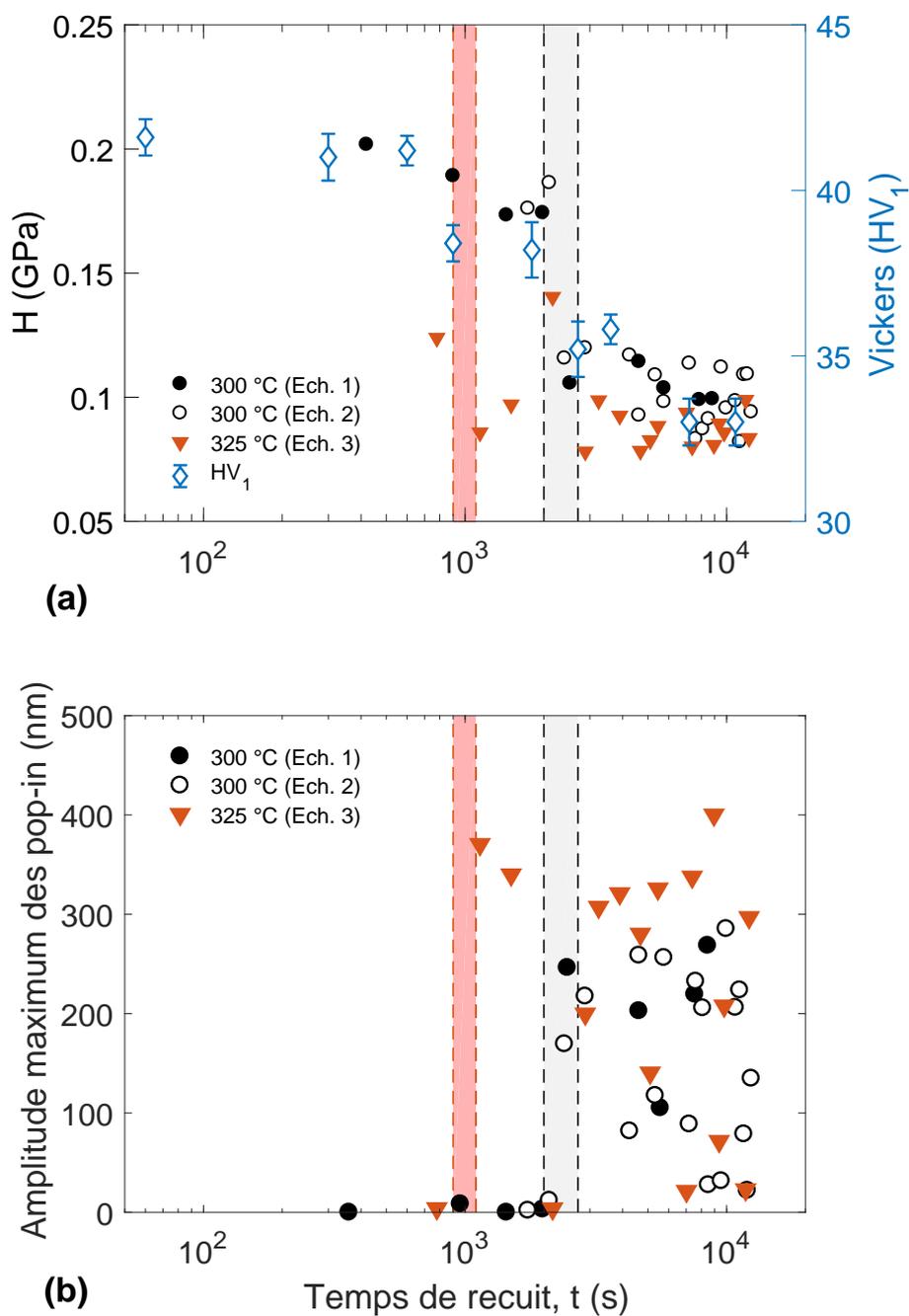


FIGURE 5.8 – Nanodureté moyenne – calculée entre 850 t 900 nm – à 300 et 325 °C et dureté Vickers, en bleue (a). Amplitude maximum des pop-in après différents temps de recuit (b). Les bandes gris clair et rouge mettent en valeur les zones d'apparitions des premiers pop-in à 300 et 325 °C, respectivement.

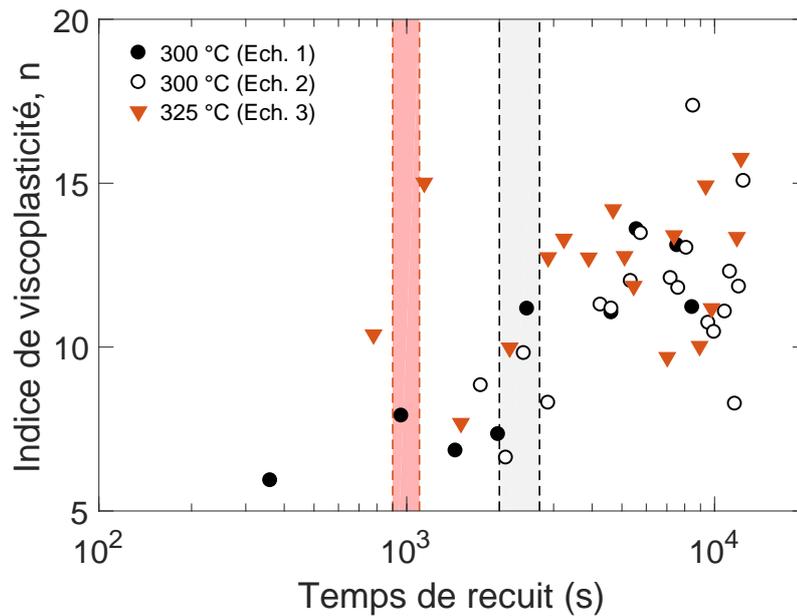


FIGURE 5.9 – Indice de viscoplasticité en fonction du temps de recuit.

que nous obtenons sont donc cohérents avec la littérature.

Nous discuterons en section 4.3.3 (p. 122) des potentiels effets de l'évolution de l'indice de viscoplasticité avec le temps de recuit sur la caractérisation de la cinétique de recristallisation.

## 4 Discussion

### 4.1 Les indicateurs de la recristallisation

Les phénomènes de restauration et de recristallisation tendent à faire diminuer la densité de dislocation du fait que le nombre de grain non-déformés augmente au sein du matériau [117]. Dans le même temps, la dureté d'un métal est fortement liée à sa limite d'élasticité [15] qui elle-même dépend de la densité de dislocation.

#### 4.1.1 Approche par les densités de dislocations

Le modèle proposé par Nix et Gao [130] et modifié par Durst *et al.* [129] exprime la dureté en fonction des densités de dislocations géométriquement nécessaires et statistiquement emmagasinées – GNDs et SSDs<sup>4</sup>. Dans ce modèle la densité des SSDs est relative à l'état initial du matériau et celle des GNDs est proportionnelle à l'inverse de la profondeur de pénétration  $h$ . En conséquence, pour des enfoncements importants, l'effet de la densité des GNDs devient négligeable rendant la dureté du matériau directement dépendante de la densité des SSDs.

Nous pouvons alors conclure que les phénomènes de restauration et de recristallisation entraînent une chute de dureté. Les résultats présentés sur la figure 5.8.a montrent effectivement

4. SSDs pour "Statistically-Stored Dislocations".

une baisse de dureté avec le temps de recuit. Nous avons, par conséquent, une preuve tangible du déroulement de ces types de phénomènes durant la mesure.

En ce qui concerne l'évolution de la dureté avec la profondeur de pénétration, nous observons la présence d'un grand effet d'échelle pour le matériau écroui, ceci étant dû au fort écrouissage de la surface et aux potentielles hétérogénéités de la microstructure. Cette effet d'échelle devrait alors diminuer avec le temps de recuit. Néanmoins, il faudrait un plus grand nombre d'essais ainsi qu'une étude microstructurale plus poussée pour statuer sur l'évolution de ce phénomène. De plus, l'analyse expérimentale de l'effet d'échelle est compliquée par l'apparition de pop-in durant les premiers 100 nm de pénétration.

#### 4.1.2 Apparition des pop-in

Une autre confirmation du phénomène de recristallisation provient de l'étude des pop-in. Comme nous avons pu le voir sur la figure 5.8.b les premiers pop-in apparaissent après 35 min à 300 °C et après environ 15 min à 325 °C.

Barnoush [131] montre que l'apparition de pop-in lors de l'indentation d'alliages d'aluminium est régie par la densité de dislocations plutôt que par la rupture d'une potentielle couche d'alumine en surface. La densité de dislocations est donc liée à l'apparition de pop-in en considérant que ce dernier représente le glissement soudain des dislocations sous la pointe. Le chargement est élastique jusqu'au déclenchement de la première dislocation. De ce fait, plus la densité de dislocations est importante – au départ – moins il y a de chance d'engendrer un pop-in, car la déformation plastique est rendue possible par le mouvement des dislocations. Montagne *et al.* [132] confirment que la présence de dislocations – au départ – promeut la nucléation de nouvelles dislocations et diminue le niveau d'effort nécessaire pour générer un pop-in.

En ce sens, l'apparition des pop-in peut être liée à la diminution de la densité des SSDs et par conséquent au phénomène de recristallisation. Comme nous avons pu le voir dans la section 3.3 (p. 114), l'essai de nanoindentation *in situ* offre la possibilité de caractériser le phénomène de recristallisation au travers de la mesure de dureté et de l'apparition des pop-in. Ces deux indicateurs sont cohérents quant à la détection de la cinétique de ce phénomène.

## 4.2 Cinétique de recristallisation

### 4.2.1 Mesure de dureté

Comme nous l'avons vu en section 2.3.1 (p. 111), nous pouvons interpréter les résultats de dureté par l'équation 5.1 afin d'obtenir la fraction recristallisée du matériau au cours du temps de recuit. La figure 5.10 représente les fractions recristallisées calculées par l'équation 5.1 avec les duretés obtenues par nanoindentation *in situ* et par duromètre Vickers *post mortem*. Seuls les nanoduretés obtenues à 300 °C sont traitées dans cette section car les résultats à 325 °C ne reflètent qu'une partie du phénomène – la recristallisation ayant sûrement débutée avant 15 min de recuit. La fraction recristallisée pour les essais de nanoindentation est calculée en prenant en compte la dureté maximum des deux sets d'essais pour l'état initial  $H_{def}$  et la dureté moyennée sur les essais après 2 h de recuit comme état complètement recristallisé  $H_{REX}$ .

Les résultats de nanoindentation et de dureté Vickers sont en très bon accord, malgré la légère différence de procédure de chauffage. De plus, Alvi *et al.* [127] mesurent – par analyse microstructurale EBSD – un temps de recristallisation<sup>5</sup> proche des 40 min à 325 °C pour le même alliage d'aluminium. Au vue des différences de conditions de laminage et d'état initial du matériau, nos résultats sont dans le bon ordre de grandeur.

#### 4.2.2 Modèle de Johnson Mehl Avrami Kolmogorov – JMAK –

L'évolution temporelle de la cinétique de recristallisation peut être modélisée de manière simplifiée par la théorie JMAK, tel que :

$$X_{REX} = 1 - \exp(-Mt^{n_R}) \quad (5.2)$$

Avec  $M$  une constante et  $n_R$  l'exposant d'Avrami. Les résultats combinés des échantillons 1 et 2 ont été ajustés par cette équation. Aucun temps d'incubation n'a été utilisé pour ajuster l'équation 5.2. La courbe noire sur la figure 5.10 représente l'ajustement du modèle sur les données de nanoindentation.

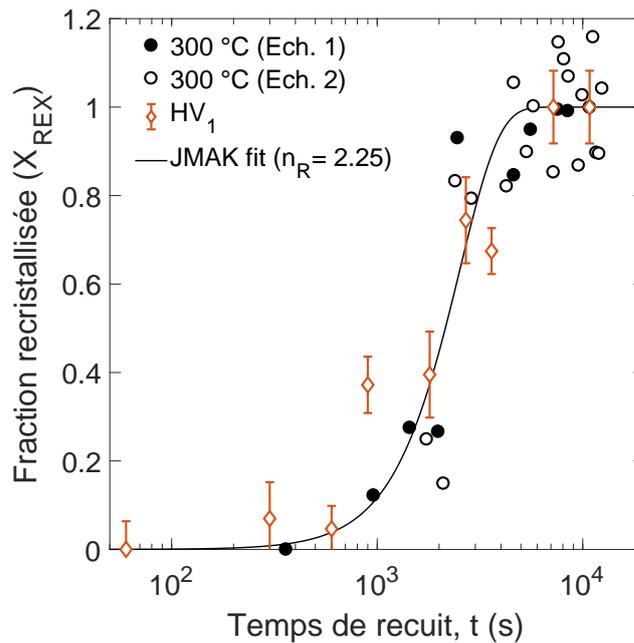


FIGURE 5.10 – Cinétique de recristallisation évaluée à partir des mesures de nanodureté et de dureté Vickers. La courbe noire représente l'ajustement de l'équation JMAK sur les données de nanoindentation.

Le temps de recristallisation extrait de l'ajustement est de 35 min ce qui est en bonne accord avec les estimations faites via l'apparition des pop-in. Nous trouvons un exposant d'Avrami égal à 2,25. Ceci pourrait correspondre à un mécanisme de recristallisation par sites saturés sur deux dimensions [117] – ce qui serait cohérent avec le haut niveau de déformation 2D induit par le procédé de laminage.

5. Le temps de recristallisation est défini comme le temps à partir duquel la fraction recristallisée atteint 50 %.

Néanmoins, il est important de noter que la microstructure initiale contient déjà des grains non-écrouis. De plus le volume de déformation plastique autour de la pointe n'est que de quelques microns de diamètre. Ce volume correspond donc à plusieurs sous-grains à l'état initial et ne représente qu'un seul grain à l'état recristallisé.

De ce fait, la cinétique de recristallisation mesurée par nanoindentation aurait tendance à être plus influencée par la surface libre des grains plutôt que par leur expansion dans le volume. La considération comme quoi la recristallisation prendrait place en 2D pourrait donc être due aux conditions aux limites du problème plutôt qu'à un comportement intrinsèque du phénomène.

L'interprétation physique de l'exposant d'Avrami est donc à traiter avec attention. D'autant plus que le nombre de résultats pour déterminer la cinétique de recristallisation est réduit.

### 4.3 Limites et considérations

#### 4.3.1 Considérations statistiques

Au vu de l'hétérogénéité initiale de la microstructure étudiée – à l'échelle de quelques microns – et de l'effet de cet état sur la cinétique de recristallisation, la question de la taille des empreintes de nanoindentation et de la représentativité des duretés mesurées doit être posée. En effet, la présence de noyaux recristallisés dans la microstructure initiale peut modifier la **cinétique locale** du phénomène. De la même façon, des zones non-recristallisées persistent en fin de recuit malgré le fait que la recristallisation apparaisse complète à l'échelle macroscopique – voir figure 5.4.d.

De ce fait, les mesures de nanodureté devraient être fortement dépendantes de la localisation de chaque indent par rapport aux caractéristiques microstructurales. Il serait alors nécessaire d'effectuer un grand nombre d'essais pour obtenir une évaluation statistique de la cinétique de recristallisation au niveau macroscopique. L'étude présentée dans ce chapitre ne contient pas assez de données pour proposer une approche statistique et obtenir un réel effet de moyenne sur le comportement macroscopique du phénomène.

Néanmoins, une tendance claire peut être extraite des essais réalisés sur les échantillons 1 et 2 à 300 °C. De plus, l'essai effectué à 325 °C semble indiquer une cinétique de recristallisation plus rapide, ce qui est cohérent avec la littérature sur le sujet [127].

La dispersion des mesures de dureté après 2 h de maintien à 300 °C est de plus ou moins 16 %, ce qui est assez faible en considération du caractère in-homogène du phénomène de recristallisation. En effet, nous pourrions obtenir une dureté variant du maximum – pour l'état écroui – au minimum – pour l'état recristallisé – même après 2 h de recuit.

L'étonnante reproductibilité des essais effectués pourrait être due à la relative petite taille des zones sondées – typiquement  $300 \times 300 \mu\text{m}$  – ainsi qu'à la précaution d'effectuer les indentations au centre des grains allongés – voir figure 5.4.b. Cette procédure garantit d'effectuer les essais sur une zone où la microstructure initiale, et par conséquent sont évolution, restent relativement similaires.

#### 4.3.2 Influence de la zone de déformation plastique

Le phénomène de recristallisation est également influencé par les zones de déformations plastiques existantes au sein du matériau [133, 134]. Humphreys *et al.* [133] étudient le processus de

recristallisation d'un aluminium plastiquement déformé au voisinage d'une particule non-déformée. Ils expliquent que la plus grande densité de dislocations – GNDs et SSDs – due au fort niveau de déformation plastique autour des particules promeut la nucléation et accélère, localement, le processus de recristallisation – voir schéma explicatif de la figure 5.11.

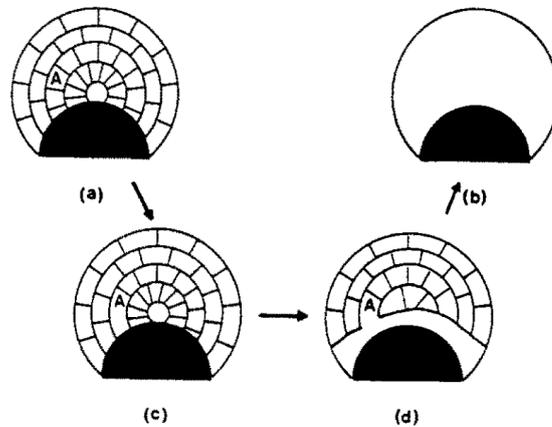


FIGURE 5.11 – Schéma explicatif de la cinétique de recristallisation autour d'une particule rigide, d'après [133].

De manière similaire, nous pouvons considérer la pointe d'indentation comme une particule indéformable augmentant la densité locale de dislocations GNDs lors de l'indentation [129]. De ce fait, l'essai d'indentation pourrait localement promouvoir la nucléation de nouveaux grains et par conséquent modifier la cinétique de recristallisation – particulièrement pour les temps de recuit courts pour lesquels la recristallisation est dirigée par le taux de nucléation.

Néanmoins, le potentiel effet de ce phénomène semble limité au vu du bon accord trouvé entre les résultats de nanoindentation *in situ* et dureté Vickers *post mortem*.

### 4.3.3 Effet de l'évolution de l'indice de viscoplasticité

Nous avons vu en section 3.3.3 (p. 116) que l'indice de viscoplasticité de l'alliage d'aluminium étudié varie avec l'augmentation du temps de recuit. Cette observation doit être prise en considération quant à la caractérisation de la cinétique de recristallisation évaluée par la mesure de dureté. En effet, la vitesse de déformation utilisée lors du chargement ainsi que l'indice de viscoplasticité influent sur la dureté mesurée au travers de l'équation 1.25.

Si l'indice de viscoplasticité reste invariant en fonction du temps de recuit, la cinétique de recristallisation – caractérisée par l'équation 5.1 – n'est pas modifiée par la vitesse de déformation utilisée lors du chargement. En revanche, si l'indice de viscoplasticité change significativement avec l'état de recristallisation, les duretés mesurées ne présentent pas exactement la même évolution avec le temps de recuit, sous différentes vitesses de déformation.

Les mesures de cinétiques de recristallisation obtenues avec une vitesse de déformation de  $0,15 \text{ s}^{-1}$  sont en bon accord avec les mesures de dureté Vickers *post mortem*. Cependant, rien ne garantit que les cinétiques obtenues sous des sollicitations plus rapides seront identiques. Cette dernière remarque sera discutée en section 4.3.5 (p. 123).

#### 4.3.4 Temps de stabilisation et dérive thermique

La stabilité thermique ainsi que le temps de stabilisation sont des paramètres prépondérants pour la bonne réalisation de ce genre d'essais. Nous avons vu en section 2.2 (p. 108) qu'un temps minimum de 10 min – après la stabilisation du chauffage à la consigne – est nécessaire pour réduire la dérive thermique. Néanmoins, le taux de dérive n'est pas négligeable, quel que soit le temps de recuit de nos essais, et doit être corrigé *a posteriori* – voir section 2.2.2 (p. 110).

De plus, la procédure de chargement elle-même est effectuée dans un certain laps de temps qui doit être négligeable par rapport à la cinétique du phénomène étudié. Dans cette étude, le temps de chargement est de 1 min et l'intervalle de mesure entre deux chargements est de 7 min, au mieux. Par conséquent, les cinétiques de recristallisation rapides – avec un temps de recristallisation inférieur à 20 min – ainsi que les phénomènes d'incubation ne sont pas accessibles actuellement.

#### 4.3.5 Ouverture à la cartographie rapide des propriétés mécaniques

Les récents développements des équipements de nanoindentation permettent d'effectuer des essais très rapides – de l'ordre de la seconde – et répétables sur une matrice de mesure. Ce type de procédures appliqué aux essais en température permettrait de répondre en partie aux questions posées dans les sections 4.3.1 et 4.3.4 (p. 121 et 123). En effet, nous pourrions envisager d'effectuer des matrices de plusieurs centaines d'indents dans un temps limité. Nous aurions alors un nombre suffisamment important de données pour développer une approche statistique du phénomène. De plus, l'avantage d'effectuer des chargements de l'ordre de la seconde est de limiter grandement l'erreur due à la dérive thermique.

Néanmoins, l'influence des hautes vitesses de déformation sur la caractérisation de la cinétique de recristallisation, impliqué par l'utilisation de ce type de méthode, sera à évaluer. La prise en compte de l'indice de viscoplasticité et de sa potentielle évolution au cours du temps sera à étudier plus précisément – par rapport aux considérations de la section 4.3.3 (p. 122).

## 5 Conclusion

### 5.1 Avantages de la méthode

Une nouvelle méthode de caractérisation *in situ* de la cinétique de recristallisation des métaux en température est proposée dans ce chapitre. Celle-ci est fondée sur l'interprétation des changements de propriétés mécaniques avec l'évolution de la microstructure. En comparaison des essais *post mortem* classiquement utilisés pour caractériser la recristallisation – détaillés en section 1 (p. 107) – l'essai de nanoindentation *in situ* est économique et plus rapide. En effet, cette méthode permet la caractérisation de la cinétique de recristallisation à partir d'**un seul échantillon** et dans un temps limité – qui se trouve être le temps de recuit choisi.

Elle ouvre donc la possibilité d'étudier l'influence de différentes conditions initiales sur le phénomène de recristallisation – tel que la composition des alliages ou le traitement de surface appliqué – de manière efficace. De plus, l'aspect très local de la mesure permettra d'élargir les études aux films minces ou aux matériaux multiphasiques par exemple.

## 5.2 Améliorations à venir

Suite aux considérations évoquées en section 4.3 (p. 121), une série d'études devra être réalisée pour adresser :

- L'influence de l'**hétérogénéité locale** du matériau sur son **comportement global** en recristallisation. Il sera alors intéressant d'effectuer des cartographies rapides de propriétés mécaniques, afin d'observer les gradients de dureté et leur évolution avec le temps de recuit ;
- l'effet de l'évolution de l'indice de viscoplasticité  $n$  avec le temps de recuit sur la caractérisation de la cinétique de recristallisation. La modification de la cinétique de recristallisation *mesurée* avec le changement de vitesse de déformation sera à étudier ; Notamment pour les vitesses de déformations très élevées, appliquées lors des cartographies rapides.
- le développement de méthodes permettant d'arriver à une stabilisation thermique plus rapide des systèmes de nanoindentation. Notamment en effectuant des pré-études du comportement thermique des couples échantillon-pointe, de manière expérimentale et numérique.

# Conclusion générale et perspectives

Ce mémoire regroupe une série d'études réalisées sur la caractérisation à hautes températures par essais de nanoindentation. L'expression "hautes températures" désigne dans ce travail un critère où des phénomènes dépendants du temps apparaissent au sein du matériau. Ainsi, nous avons travaillé de la température ambiante dans le cas des polymères et élastomères – proche de leur température de transition vitreuse  $T_g$  – et jusqu'à 300 °C dans le cas d'un alliage d'aluminium –  $0,3 T_m < T < 0,6 T_m$ .

Dans ces gammes de températures, des phénomènes dépendants du temps apparaissent. Ceux-ci peuvent être liés à une augmentation de la mobilité des chaînes monomères pour les polymères ou à l'activation de la diffusion pour les métaux. Ces phénomènes se traduisent par l'apparition d'un comportement mécanique visqueux – relaxation ou fluage – ainsi que par l'activation de changements physiques d'états, telle que la recristallisation.

Les différents chapitres offrent des éclairages complémentaires sur les problématiques techniques liées aux essais de relaxation en indentation et sur l'interprétation des résultats obtenus – notamment en les comparant à des données de la littérature à l'échelle nano et macroscopique.

Dans un premier temps, nous avons repris de manière synthétique les formulations du comportement mécanique des matériaux en insistant sur les composantes viscoélastiques et viscoplastiques. Une explication physique de l'établissement de ces lois de comportement est discutée au travers de l'étude des polymères et de métaux. Le principe de l'essai de nanoindentation instrumentée est alors expliqué et une étude bibliographique des derniers développements dans le domaine de la caractérisation à hautes températures est réalisée. Suite à cet état de l'art, nous avons révélé l'intérêt de l'essai de relaxation dans la caractérisation des propriétés mécaniques dépendantes du temps. De plus, nous avons mis en valeur les différents **défis techniques** à surmonter pour réaliser une mesure représentative et répétable.

Dans le chapitre 2 nous avons présenté le développement de l'essai de relaxation par une approche analytique en viscoélasticité linéaire qui nous a permis de mettre en valeur les paramètres importants à prendre en compte dans la réalisation d'une mesure représentative du comportement du matériau étudié : La **vitesse de déformation** lors du chargement est un paramètre de premier ordre dans la mesure du comportement en relaxation. Celle-ci doit être constante et suffisamment élevée par rapport au temps de relaxation à caractériser.

Une approche expérimentale visant à mettre en perspective les résultats de l'étude analytique nous a par la suite permis d'élargir les conclusions sur l'effet de la vitesse de déformation à des ma-

tériaux viscoélastiques – comme l'élastomère – et viscoplastique/viscoélastique – tel que le PMMA. Nous avons caractérisé expérimentalement une **fonction d'atténuation** de la contribution visqueuse en relaxation, dépendante des paramètres matériau.

De plus, nous avons confirmé la dépendance du module de relaxation au niveau de déformation appliqué, dans le cas du PMMA. Nous avons cependant remarqué que la contribution visqueuse en relaxation n'est pas dépendante du niveau de déformation appliquée. La même tendance à la relaxation que celle mesurée à l'échelle macroscopique a ainsi été caractérisée.

Nous avons également mis en évidence l'importance de la **qualité de l'asservissement** sur les résultats obtenus aux temps courts ; ainsi que la limitation relative à la **dérive thermique** en déplacement sur les mesures effectuées aux temps longs.

Cette première étude a confirmé l'intérêt de l'essai de relaxation pour la caractérisation des propriétés mécaniques dépendantes du temps. Nous avons donc naturellement élargi le spectre d'utilisation de cette méthode au delà de la température ambiante pour adresser les mesures d'énergie d'activation.

Dans le chapitre 3, nous avons étudié le comportement de la silice fondue, du PMMA et d'un alliage d'aluminium, en température. Les mêmes essais de relaxation développés au chapitre 2 ont été adaptés et appliqués.

Nous avons dû repenser la notion de vitesse de déformation représentative lors du maintien à déplacement constant car, par définition, en relaxation  $-\dot{h}/h = 0$ . Nous sommes alors repartis de la formulation uniaxiale qui permet de définir une **vitesse de déformation plastique représentative**. Les résultats obtenus par cette méthode sont cohérents avec la littérature. Celle-ci nous permet d'interpréter les données de relaxation au même titre que les essais classiques de fluage en indentation. Ainsi, nous avons prouvé que la mesure de la **sensibilité à la vitesse de déformation** du matériau ainsi que l'**énergie d'activation** des phénomènes de diffusion sont accessibles par relaxation en nanoindentation.

Dans le cas des polymères, nous avons mesuré avec succès l'évolution du module de relaxation avec la température, ce qui nous a permis d'extraire une énergie d'activation de la relaxation  $\beta$  en bon accord avec les résultats de la littérature.

Néanmoins, la limitation du temps d'essai "maximal", due à la dérive thermique, devient très critique avec l'augmentation de la température. Malgré l'utilisation de système thermiquement stable, l'obtention de mesures représentatives au delà de 10 min de maintien est impossible en maintenant le déplacement constant.

Dans le chapitre 4 une méthode de relaxation fondée sur l'asservissement de la raideur de contact a été développée. Cette mesure dynamique étant très peu sensible à la dérive thermique, la réalisation d'essais très longs – en comparaison des temps classiques d'essais en nanoindentation – est rendue possible.

Des essais jusqu'à 10 h de maintien ont été effectués sans signe de dérive sur de la silice fondue, différents polymères et un élastomère. Les contributions visqueuses obtenues sont en très bon accord avec la littérature, à la fois à l'échelle nano et macro.

Nous confirmons également la possibilité de caractériser la sensibilité à la vitesse de déformation,  $m$ , par cette méthode. Les résultats obtenus sur la silice fondue montrent que l'établissement d'un **régime stationnaire d'écoulement** semble être garanti en relaxation.

Dans une étude parallèle, nous avons utilisé la mesure de raideur de contact comme un révélateur de l'hétérogénéité du matériau. Nous avons montré que la présence de "saut" de raideur sur les courbes de chargement de l'élastomère est due à la répartition in-homogène des charges de noir de carbone à l'échelle étudiée.

Finalement, le chapitre 5 présente une étude menée sur les transformations microstructurales d'un alliage d'aluminium lors d'une opération de recuit. Nous avons mesuré, en temps réel, l'évolution de la dureté lors du chauffage de l'échantillon au sein du nanoindenteur.

Nous avons révélé deux **indicateurs de la recristallisation**, que sont : la baisse de la **dureté** et l'apparition de **pop-in**. Ces critères sont tous les deux liés à la réduction de densité de dislocations SSDs lors de la recristallisation. Ainsi cette méthode apporte une nouvelle vision mécanique, locale et en temps réel de l'évolution de microstructure en température. Les résultats obtenus sont très encourageants même si des études complémentaires nécessitent d'être réalisées.

Les études présentées dans ce mémoire mettent en valeur les similarités de l'essai de relaxation en indentation avec les essais macroscopiques classiques. La réalisation de mesures dans un volume de matière déformée constant semble être une solution efficace pour se rapprocher des conditions d'écoulement stationnaire nécessaires à l'interprétation des lois puissances classiques. Il sera intéressant de poursuivre ces études, en température, et à l'aide de la méthode de relaxation à raideur de contact constante.

L'étude des matériaux de type matrice - particules propose des perspectives nouvelles dans la caractérisation de leur hétérogénéité de comportement à l'échelle du micron. La réalisation d'une étude statistique de quantification des instabilités du signal de raideur permettrait de mieux comprendre l'interaction pointe-échantillon et notamment le volume représentatif associé à ce comportement [76]. Cette étude pourra être couplée à une représentation statistique des particules au sein du contact ainsi qu'à une simulation numérique par éléments finis.

Finalement, l'étude des phénomènes de changement d'état physique de la matière en température sera un axe important de recherche à promouvoir. En effet, des questions restent encore en suspens, telles que l'effet de la vitesse de déformation appliquée lors du chargement sur la cinétique de recristallisation mesurée ; ou encore la définition du lien entre les cinétiques de recristallisation locales et globales.



# Annexe A

## Asservissement des essais de relaxation

### 1 Principe général de l'asservissement PID

Le principe d'un asservissement PID est de corriger l'erreur de positionnement d'un système par rapport à la consigne – qui peut être en effort, en vitesse, en angle ou autres... La modification de la consigne intervient par un retour du PID sous la forme :

$$u(t) = k_P \left( e(t) + \frac{1}{T_i} \int_0^t e(t) dt + T_d \frac{de(t)}{dt} \right) \quad (1.1)$$

Avec  $u(t)$  la rectification de la consigne,  $k_P$ ,  $T_i$ ,  $T_d$  des constantes de réglage et  $e(t)$  l'erreur mesurée par rapport à la consigne, tel que représenté sur la figure A.1.

Les termes utilisés dans cette expression peuvent être regroupés en trois parties :

- **Le paramètre proportionnel** :  $k_P = K_p$ . Il est multiplié directement à l'erreur  $e(t)$ . Plus la valeur de  $k_P$  est grande plus le système gagnera en rapidité et en précision, cependant il deviendra de moins en moins stable – début de l'oscillation de la réponse autour de la consigne – ;
- **le paramètre intégrateur** :  $k_I = K_p/T_i$ . Il est multiplié à l'intégrale de toutes les erreurs précédentes. Il tend donc à faire baisser globalement l'erreur et de ce fait, la réponse tend vers la consigne. De la même manière que pour le paramètre proportionnel, l'augmentation de  $k_I$  tend à augmenter la précision et la rapidité de réponse du système mais entraîne une instabilité ;

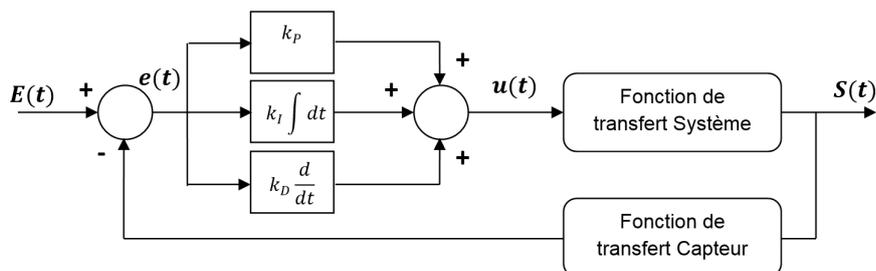


FIGURE A.1 – Schéma d'une boucle de correction PID.

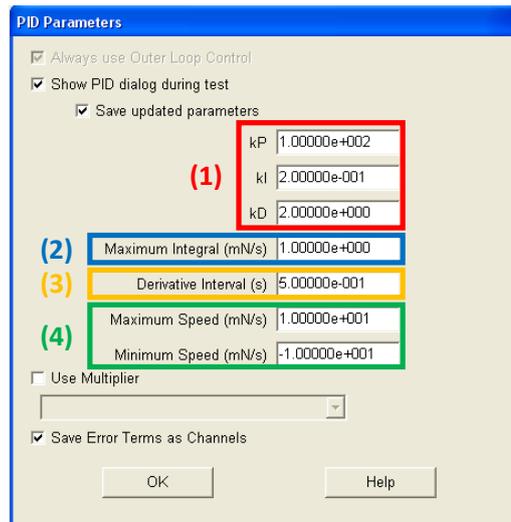


FIGURE A.2 – Illustration de l'algorithme de la fenêtre de réglage des paramètres PID sur le logiciel MTS TestWorks 4<sup>®</sup>.

- **le paramètre dérivateur** :  $k_D = K_p \times T_d$ . Il est multiplié à la dérivée de l'erreur. L'influence de ce paramètre sur la réponse du système est de diminuer le dépassement et les oscillations autour de la consigne. Cependant si on augmente trop sa valeur, le temps mort – trop élevé – conduira à une instabilité du système.

D'autres paramètres liés à la mise en œuvre de l'asservissement permettent également de régler celui-ci. La figure A.2 représente la fenêtre de réglage du correcteur PID sur le logiciel MTS TestWorks 4<sup>®</sup> des nanoindenteurs SA2<sup>®</sup> et XPClim<sup>®</sup>. On retrouve les trois paramètres  $k_P$ ,  $k_I$  et  $k_D$ , notés (1). Se trouve ensuite le paramètre "Maximum Integral" (2) qui correspond à la vitesse maximum qui peut être changée à n'importe qu'elle moment de la boucle de contrôle.

Ensuite, le paramètre "Derivative Interval" (3) correspond au temps entre chaque mise à jour de paramètre  $k_D$ . Le paramètre  $k_D$  agit comme un stabilisateur dans la boucle mais il peut contribuer à augmenter l'instabilité du système si celui-ci est bruité et que l'intervalle de mise à jour est trop court, c'est pour cela que le réglage de "Derivative interval" est important : il maintient le compromis entre efficacité et stabilité du système.

Enfin, les paramètres "Maximum et Minimum Speed" (4) correspondent aux vitesses de déplacement maximum que l'indenteur pourra prendre afin de répondre aux consignes du PID. Il agit comme une limite et peut bloquer l'effet des paramètres  $k_P$ ,  $k_I$  et  $k_D$  car le système ne pourra pas dépasser ces vitesses. Il ne sert donc à rien d'augmenter les paramètres de PID si les vitesses de réponse maximum et minimum sont limitantes.

## 2 Essais à déplacement constant

### 2.1 Essais à température ambiante – Chapitre 2 –

Les paramètres d’asservissement PID utilisés pour le maintien de la profondeur de pénétration à 500 et 1000 nm, pour les essais sur le PMMA, sont détaillés dans le tableau A.1. Les paramètres des essais effectués à une profondeur de 2000 nm sur l’élastomère sont donnés dans le tableau A.2. Les notations  $h_{stop}$  et  $h_{stab}$  correspondent aux critères d’arrêt du chargement et d’asservissement de la profondeur constante, respectivement.

TABLE A.1 – Paramètres d’asservissement PID appliqués pour maintenir le déplacement constant à 500 et 1000 nm pour les essais réalisés sur le PMMA – à température ambiante.

$h_1 = 500 \text{ nm}$						
Param.	$0,0025 \text{ s}^{-1}$	$0,005 \text{ s}^{-1}$	$0,01 \text{ s}^{-1}$	$0,025 \text{ s}^{-1}$	$0,05 \text{ s}^{-1}$	$0,15 \text{ s}^{-1}$
$k_P$	5	6	6	5	6	6
$k_I$	0,05	0,05	0,07	0,05	0,05	0,1
$k_D$	0,05	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1
$h_{stop}$ (nm)	500	500	500	500	500	500
$h_{stab}$ (nm)	500	500	501	502	503	506
$h_1 = 1000 \text{ nm}$						
Param.	$0,0025 \text{ s}^{-1}$	$0,005 \text{ s}^{-1}$	$0,01 \text{ s}^{-1}$	$0,025 \text{ s}^{-1}$	$0,05 \text{ s}^{-1}$	$0,15 \text{ s}^{-1}$
$k_P$	9	9	9	9	9	10
$k_I$	0,11	0,11	0,11	0,11	0,11	0,09
$k_D$	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1	0,1
$h_{stop}$ (nm)	1000	1000	1000	1000	1000	1000
$h_{stab}$ (nm)	1000	1000	1000	1004	1008	1015

TABLE A.2 – Paramètres d’asservissement PID appliqués pour maintenir le déplacement constant à 2000 nm pour les essais réalisés sur l’élastomère – à température ambiante.

Param.	$0,002 \text{ s}^{-1}$	$0,006 \text{ s}^{-1}$	$0,015 \text{ s}^{-1}$	$0,09 \text{ s}^{-1}$	$0,36 \text{ s}^{-1}$
$k_P$	0,1	0,1	0,1	0,07	0,07
$k_I$	$5 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-4}$
$k_D$	0	0	0	0	0
$h_{stop}$ (nm)	2000	2000	1998	1970	1910
$h_{stab}$ (nm)	2000	2000	2000	2000	2000

## 2.2 Essais à hautes températures – Chapitre 3 –

Les essais sur le PMMA à 40, 50, 60 et 80 °C ont tous été effectués avec les mêmes réglages d’asservissement présentés dans le tableau A.3. Les paramètres d’asservissement utilisés sur le système Bruker Ti950<sup>®</sup>, pour les essais réalisés sur l’alliage d’aluminium AA1050, sont identiques indépendamment de la température appliquée. Nous avons dans ce cas :  $k_P = 1$ ,  $k_I = 0,8$  et  $k_D = 0$ .

TABLE A.3 – Paramètres d’asservissement PID appliqués pour maintenir le déplacement constant à 2000 nm pour les essais réalisés en température sur le PMMA.

Param.	0,005 s <sup>-1</sup>	0,025 s <sup>-1</sup>	0,05 s <sup>-1</sup>
$k_P$	5	5	5
$k_I$	$2.10^{-2}$	$2.10^{-2}$	$2.10^{-2}$
$k_D$	0	0	0
$h_{stop}$ (nm)	2000	1995	1990
$h_{stab}$ (nm)	2000	2000	2000

La procédure de chargement est, quant à elle, légèrement différente des autres méthodes présentées dans cette annexe.

En effet, l’aluminium ayant un comportement très plastique, le moindre dépassement de la consigne en déplacement provoquerait une déformation irréversible menant à une perte de contact entre la pointe et la surface de l’échantillon. Nous avons donc adapté la méthode pour insérer un léger ralentissement de la pointe juste avant le maintien à déplacement constant.

Ainsi, à la fin du chargement à vitesse de déformation constante, deux segments intermédiaires sont ajoutés pour accompagner le mouvement de l’indenteur. Cette procédure est détaillée sur le schéma de la figure A.3, avec  $v_{finale}$ , la vitesse de déplacement approximative en fin de chargement et  $v_1, v_2$  les vitesses transitoires.

Cette procédure a été développée pour rendre possible la mesure en relaxation sur un matériau très plastique. La principale limitation concerne la vitesse maximale atteignable en fin de chargement. En effet, nous n’avons pas pu réaliser de chargement très rapide afin d’obtenir une plus grande contribution viscoplastique en relaxation. Ceci explique en partie les résultats développés dans le chapitre 3.

## 3 Essais à raideur de contact constante – Chapitre 4 –

Les paramètres PID utilisés pour l’asservissement des essais à raideur de contact constante sont détaillés – pour tous les matériaux de l’étude – dans le tableau A.4.

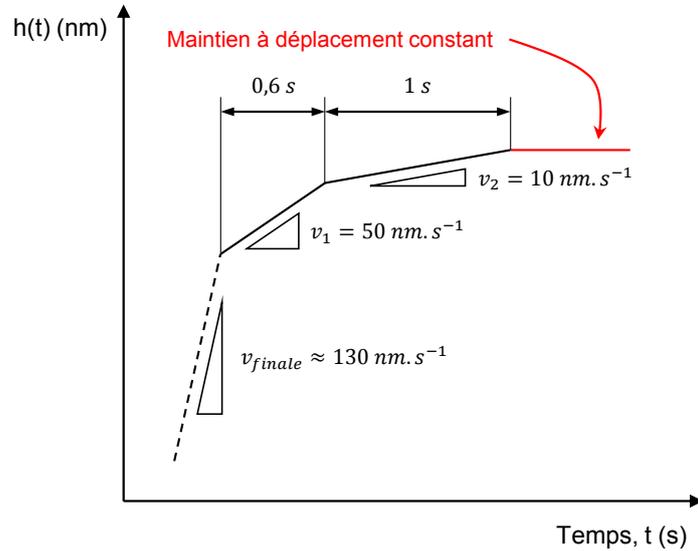


FIGURE A.3 – Schéma de la procédure de transition entre chargement à vitesse de déformation constante et maintien à déplacement constant pour les essais réalisés en température – 100, 200 et 300 °C – sur l’alliage d’aluminium AA1050.

TABLE A.4 – Paramètres d’asservissement PID appliqués pour maintenir la raideur de contact constante. Tous les matériaux de l’étude sont présentés.

Matériaux	$k_P$	$k_I$	$k_D$	$S_{stop}$ (N.m <sup>-1</sup> )	$S_{stab}$ (N.m <sup>-1</sup> )
Silice fondue	$4.10^{-4}$	$1.10^{-6}$	0	$50.10^3$	$50.10^3$
PMMA	$4.10^{-4}$	$3.10^{-4}$	0	$14,1.10^3$	$14,4.10^3$
PC	$6.10^{-4}$	$1.10^{-6}$	0	$8,7.10^3$	$8,8.10^3$
PS	$6.10^{-4}$	$1.10^{-6}$	0	$10,5.10^3$	$10,6.10^3$
Élastomère ( $\alpha = 0,005$ s <sup>-1</sup> )	$8.10^{-4}$	0	0	$0,79.10^3$	$0,8.10^3$
Élastomère ( $\alpha = 0,36$ s <sup>-1</sup> )	$8.10^{-4}$	0	0	$0,75.10^3$	$0,8.10^3$



## Annexe B

# Traitements numériques des données en relaxation

## 1 Essais à déplacement constant

### 1.1 Traitement numérique du segment de relaxation

#### 1.1.1 PMMA – Chapitre 2 –

Dans un premier temps, nous effectuons un ré-échantillonnage des courbes de relaxation sur une échelle logarithmique, avec un espacement de 0,05. Cette étape est réalisée en interpolant les données par une fonction de type "spline cubique" – disponible sur Matlab<sup>®</sup>. Ainsi, pour chaque intervalle entre deux données expérimentales un polynôme de degré 3 est calculé.

Suite à cette opération, nous effectuons une dérivée numérique de chacune des courbes ré-échantillonnées afin d'obtenir l'approximation du premier ordre du spectre de relaxation.

Dans ce mémoire, les approximations des spectres de relaxation sont systématiquement représentés en terme de moyenne et d'écart type. Ces calculs sont effectués sur 5 essais.

#### 1.1.2 Élastomère – Chapitre 2 –

Dans le cas de l'élastomère, une étape de moyenne glissante sur 3 points est ajoutée avant d'effectuer la dérivée numérique. Cette étape permet de limiter l'effet des pentes locales sur la tendance globale de la courbe lors du calcul de la dérivée.

#### 1.1.3 PMMA à hautes températures – Chapitre 3 –

Dans le cas de l'étude du PMMA à hautes températures, une étape de moyenne glissante sur 5 points est ajoutée avant d'effectuer la dérivée numérique. Le nombre de point pour effectuer la moyenne glissante est augmenté car les signaux du nanoindenteur XPCLim<sup>®</sup> sont plus bruités que ceux de la tête DCM<sup>®</sup>.

## 1.2 Obtention de la vitesse de déformation plastique

Dans le chapitre 3 nous évaluons la vitesse de déformation plastique lors des essais effectués en température sur l’alliage d’aluminium AA1050. De la même manière que pour les traitements numériques effectués sur le PMMA, à température ambiante, nous ré-échantillons le signal de force sur le segment de relaxation avec une échelle logarithmique d’espacement 0,05. Les dérivées numériques de chaque segment de relaxation sont ensuite effectuées sur les données ré-échantillonnées.

## 2 Essais à raideur de contact constante – Chapitre 4 –

### 2.1 Traitement numérique du segment de relaxation

#### 2.1.1 Polymères amorphes vitreux

Là encore, le même traitement que celui effectué sur le PMMA à température ambiante, détaillé en section 1.1.1 (p. 135), est effectué pour les essais concernant les matériaux polymères amorphes : PMMA, PC et PS. Une étape de moyenne glissante sur 10 points est ajoutée avant d’effectuer la dérivée numérique.

#### 2.1.2 Élastomère

Dans le cas de l’élastomère, nous effectuons un ré-échantillonnage des courbes de relaxation sur une échelle logarithmique, avec un espacement de 0,02. Une étape de moyenne glissante sur 20 points est ajoutée avant d’effectuer la dérivée numérique.

### 2.2 Obtention de la vitesse de déformation plastique

Afin de pouvoir effectuer une dérivée numérique de la contrainte représentative,  $\sigma_{rM}$ , en fonction du temps – nous réalisons plusieurs étapes de traitement permettant d’éliminer le bruit de mesure sans trop affecter la forme générale des données. Les étapes de traitements sont représentées sur la figure B.1. Dans un premier temps, nous ré-échantillons les données de chaque essai sur une échelle logarithmique avec un espacement de 0,02. La figure B.1.a représente un exemple de traitement sur une courbe obtenue pour un essai de 5 h. Nous pouvons remarquer que le ré-échantillonnage modifie légèrement la courbe lors des 10 premières secondes. Néanmoins nous considérons le résultat comme acceptable au vu du bruit de mesure.

Dans un second temps nous moyennons les données ré-échantillonnées provenant des trois essais – sans dérive – effectués avec un maintien de 5 h sur la silice fondue. La figure B.1.b représente les trois courbes ré-échantillonnées.

Enfin nous effectuons une moyenne glissante sur 50 points afin d’éliminer les pentes locales supérieures à la pente globale de la courbe. figure B.1.c représente – en noir – la moyenne des données représentées en figure B.1.b et – en rouge – la courbe après avoir effectué la moyenne glissante.

C’est à partir de cette dernière que la vitesse de déformation plastique est calculée dans la section 2.3.5 du chapitre 4 (p. 96).

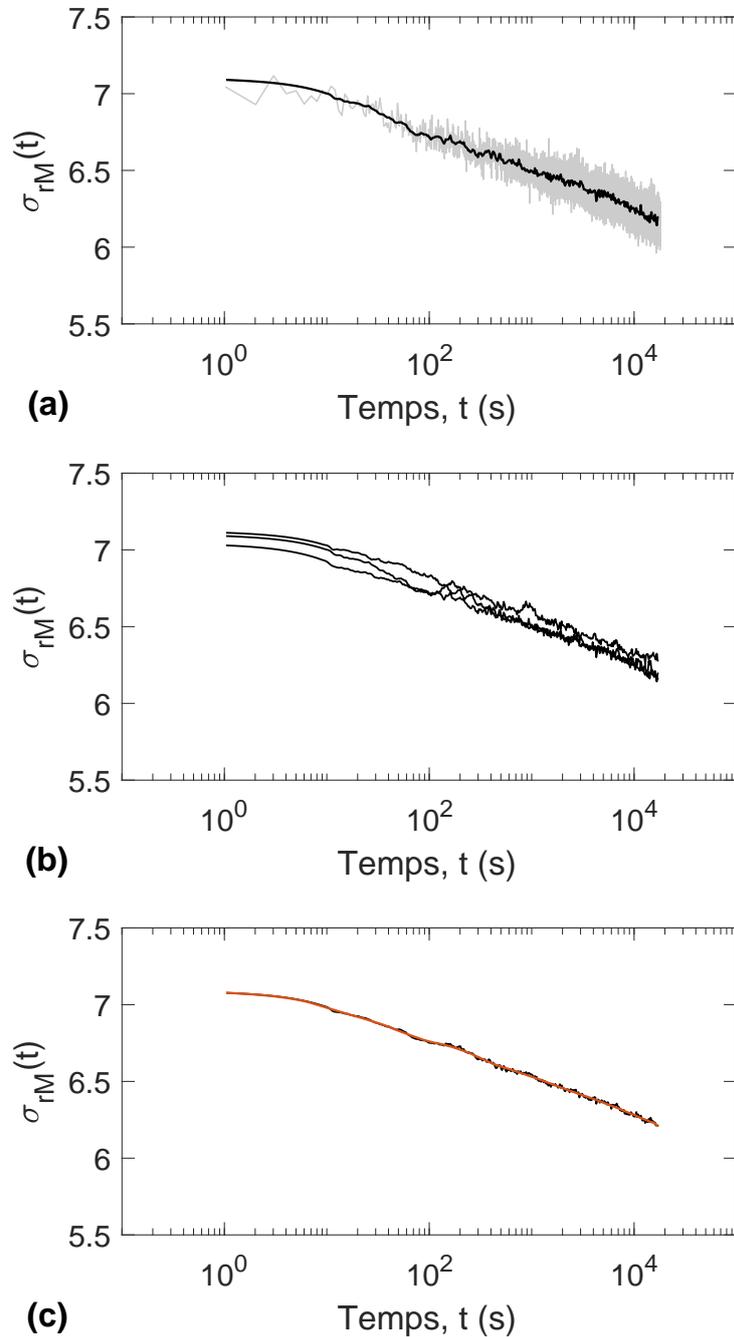


FIGURE B.1 – Étapes de traitement numérique des courbes de relaxation à raideur de contact constante sur la silice fondue.



## Annexe C

# Traitements numérique des images MET et détection des sauts de raideur

## 1 Numérisation de l'image MET

Dans un premier temps l'image en nuance de gris du microscope à transmission est récupérée. Nous notons cette matrice  $A$ . Les étapes suivantes sont ensuite appliquées :

- L'image est transformée en matrice binaire par le biais d'un algorithme de seuillage adaptatif disponible sur Matlab<sup>®</sup>. Le niveau de seuil est modifié en fonction de l'intensité moyenne des pixels voisins. Cette méthode est efficace notamment dans le cas où le fond de l'image n'est pas d'une intensité uniforme. Nous appelons la matrice obtenue,  $B_1$ .
- Une opération morphologique permet par la suite d'isoler les éléments représentatifs d'une particule en spécifiant un rayon minimal de taille d'élément. Nous obtenons alors la matrice  $B$  à partir de  $B_1$ .
- En raison de la présence de "particules" blanches représentant des agrégats ayant été retirés de la lame MET lors de sa fabrication, une nouvelle étape de seuillage est appliquée sur la matrice  $A$  pour isoler ces éléments. Nous obtenons alors la matrice  $C$ .
- La matrice contenant toutes les particules s'écrit alors :  $D = B.\tilde{C}$ . Cette dernière est représentée sur la figure 4.14.b en section 3.2.2 (p. 102).

## 2 Définition de la matrice "pointe"

La matrice de pixels correspondant à la pointe est représentée de manière schématique sur la figure C.1. La matrice "pointe" est successivement agrandie par pas de 1 pixel, perpendiculairement à chacun des cotés du triangle. L'aire du périmètre entrant à une itération  $i$ , défini par la longueur du périmètre multiplié par l'épaisseur équivalente d'un pixel s'écrit :

$$A_{perim}(h_c) = 3.N_i(h_c).e^2 \quad (3.1)$$

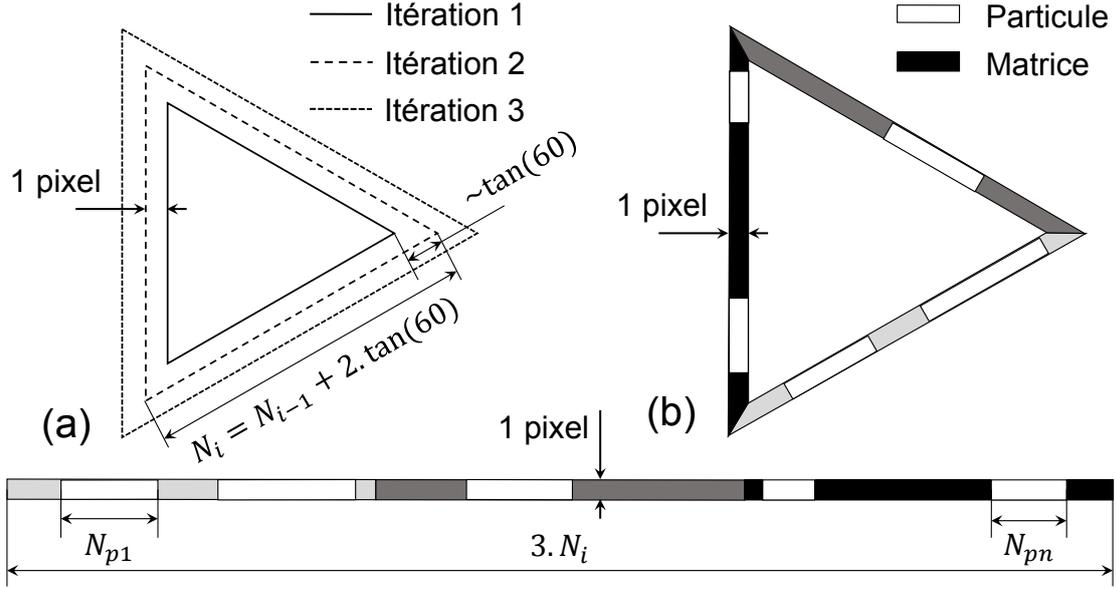


FIGURE C.1 – Illustration de l'algorithme de comptage des particules entrant dans le contact.

Ainsi, l'aire totale des particules entrantes à une itération  $i$  s'écrit :

$$A_{pe}(h_c) = e^2 \cdot \sum_{i=1}^n N_{pi}(h_c) \quad (3.2)$$

Avec  $N_{pi}$  le nombre de pixel correspondant à une "particule" et  $N_i$ , le nombre de pixel définissant un côté du triangle et  $e$ , la dimension élémentaire d'un pixel – pour l'image étudiée au chapitre 4, section 3.2.2 (p. 102), nous obtenons  $e \approx 10,4$  nm.

### 3 Caractérisation des "sauts" sur les courbes de chargements

Les étapes de traitement effectuées sur les courbe de chargements de l'élastomère sont détaillées dans cette section. Celles-ci visent à isoler les segments de courbes correspondant à des "saut" de raideur :

1. Dans un premier temps, nous évaluons une profondeur de pénétration équivalente,  $h_{Raideur}$ , déterminée en fonction de la raideur de contact – en faisant l'hypothèse que le module d'élasticité du matériau est constant :

$$h_{Raideur} = \frac{S}{2E'_c} \tan(\beta) \quad (3.3)$$

Avec  $E'_c$  déterminé pour chaque essai en fin de chargement par la méthode CSM. Cette étape permet de normaliser la raideur pour la rendre comparable à la profondeur de contact. Ainsi, une pente de 1 est équivalente à un chargement homogène et une pente supérieure à 1, est équivalente à un "saut".

2. Dans un second temps, nous effectuons un ré-échantillonnage des données sur la profondeur de contact  $h_c$  afin d'avoir la même fréquence de donnée sur toute le chargement. Originellement

la fréquence d'acquisition est de 5 Hz et étant donné que le déplacement évolue de façon exponentiel avec le temps – chargement à vitesse de déformation constante –, l'intervalle entre deux mesures de pénétration augmente avec la profondeur d'indentation. Le ré-échantillonnage effectué reste du même ordre de grandeur que l'intervalle moyen sur la totalité du chargement, à savoir : 0,8 nm au lieu de 0,4 à 3 nm.

3. Nous effectuons ensuite un ajustement par une fonction affine sur 20 points glissants. Nous obtenons ainsi la dérivée locale – en chaque point de la courbe de chargement. Ce calcul est présenté sur la figure C.2.a. Un paramètre d'évaluation de la qualité de l'ajustement – à savoir  $R^2$  – est calculé à chaque itération. Seuls les paramètres  $R^2 > 0,85$  sont considérés pour la suite de la détection. Cette valeur seuil est prise arbitrairement dans le but d'isoler les "meilleurs" ajustements et éviter de considérer des segments non représentatifs.

De plus, lorsque moins de 3 points satisfont le critère  $R^2 > 0,85$ , ceux-ci ne sont pas considérés pour la suite. La figure C.2.b représente cette étape de traitement, avec en noir la courbe de chargement, en rouge pointillé, le seuil et en bleu, le signal résultant du traitement.

4. Les "ilots" satisfaisants le critère  $R^2 > 0,85$  sont ensuite repérés. Une moyenne des coefficients d'ajustements est effectuée pour chaque "ilot". Cette droite est ensuite soustraite à la courbe expérimentale dans le but de repérer les limites du "saut". Les étapes de ce traitement consistent à :

- soustraire l'ajustement moyen à la courbe expérimentale ;
- calculer la valeur absolue de ce nouveau vecteur ;
- le segments à caractériser est donc proche de 0 en ordonnées. Nous pouvons alors trouver les minimums de la courbe et sélectionner les localisations extrêmes de ceux-ci.
- Les 2 points ainsi déterminés correspondent aux extrémités d'un segment appelé "saut".

5. Enfin, une dernière phase de sélection est effectuée sur le critère de la pente locale des segments caractérisés. Au moins 5 points de la courbe doivent avoir une dérivée supérieure à 2 pour être considéré comme un "saut" – voir figure C.2.a. Ce critère est défini sachant que la moyenne globale de la pente est égale à 1.

Suite à ce traitement, les segments caractérisés sont représentés sur la figure C.2.c. Le nombre de "sauts" ainsi que leur profondeur équivalente et espacement sont calculés.

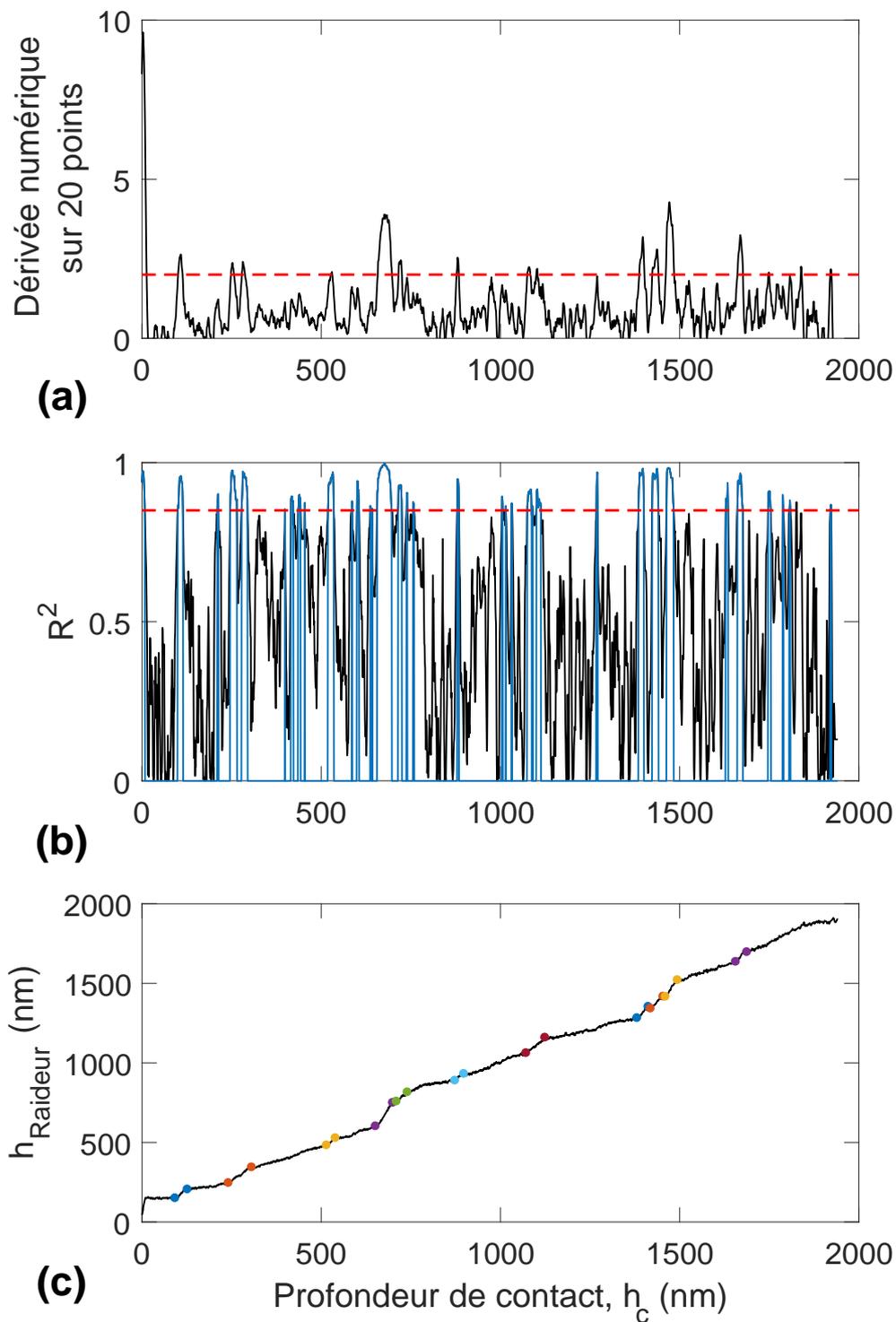


FIGURE C.2 – Étapes de traitement des courbes de chargement pour isoler les segments de type "saut".

# Annexe D

## Notations

$\sigma_{ij}$	Tenseur des contraintes de Cauchy
$\epsilon_{ij}$	Tenseur des déformations
$C_{ijkl}$	Tenseur d'élasticité du 4 <sup>ime</sup> ordre
$S_{ijkl}$	Tenseur de complaisance du 4 <sup>ime</sup> ordre
$\lambda, \mu$	Coefficients de Lamé
$E$	Module d'élasticité
$G$	Module de cisaillement
$\nu$	Coefficient de Poisson
$\tau_{ij}$	Tenseur des contraintes de cisaillement
$\gamma_{ij}$	Tenseur des déformations en cisaillement
$\eta$	Constante de viscosité
$\dot{\epsilon}$	Vitesse de déformation
$E_\infty$	Module d'élasticité relaxé
$t$	Temps
$\lambda_i$	Temps de relaxation du modèle de Maxwell généralisé
$\omega$	Fréquence de sollicitation
$\delta$	Angle de perte
$G^*$ et $J^*$	Modules de cisaillement et de complaisance complexes
$G'$ et $J'$	Modules de restitution
$G''$ et $J''$	Modules de perte
$H_s$ et $H_{si}$	Spectre de relaxation et approximation du i <sup>ime</sup> ordre
$L_s$ et $L_{si}$	Spectre de fluage et approximation du i <sup>ime</sup> ordre
$a_T$	Facteur de translation
$C_1$ et $C_2$	Constantes de l'équation de Williams - Landel - Ferry
$A$	Constante de la loi d'Arrhénius
$E_a$	Énergie d'activation de la loi d'Arrhénius – utilisée pour les polymères –
$Q$	Énergie d'activation – utilisée pour les métaux –
$R$	Constante des gaz parfaits
$\sigma_y$	Limite d'élasticité

$K$	Constante du modèle de Bingham - Norton
$n$	Indice de viscoplasticité
$m$	Sensibilité à la vitesse de déformation
$\dot{\epsilon}_p$	Vitesse de déformation plastique
$\vec{t}$ et $\vec{b}$	Direction d'une ligne de dislocation et vecteur de Burgers
$T_m$	Température de fusion
$\beta$	Angle entre la face inclinée du cône équivalent et la surface
$H$	Dureté du matériau – équivalent à $pm$ au sens de Tabor –
$F$	Force d'indentation
$A_c$	Aire de contact
$S$	Raideur de contact
$E'_c$	Module réduit de contact du matériau
$E'^*$	Module réduit du matériau
$E'$	Module d'élasticité du matériau
$E'_p$ et $\nu_p$	Module d'élasticité et coefficient de Poisson du matériau de la pointe
$a$	Rayon de contact
$h_e$	Déplacement élastique de la pointe dans le matériau
$B$ et $q$	Paramètres de la loi puissance décrivant la courbe de décharge en indentation
$F_{osc}$ et $h_{osc}$	Amplitudes de force et de déplacement en mode CSM
$m_{col}$	Masse de la colonne
$K_{equ}$ et $C_{equ}$	Raideur et amortissement équivalents de la colonne d'indentation
$h$	Profondeur de pénétration de la pointe
$h_c$	Profondeur de contact
$\epsilon$	Facteur géométrique d'Oliver et Pharr
$h'_r$	Profondeur plastique d'indentation
$\alpha_L$	Coefficient de Loubet pour la détermination de la profondeur de contact
$h_0$	Hauteur du défaut de pointe
$h_{ini}$ et $F_{ini}$	Déplacement et force initiaux lors d'un chargement exponentiel
$\sigma_r$	Contrainte représentative en indentation
$\alpha$	Vitesse de déformation en indentation, définie par $\dot{h}/h$
$m_v$	Sensibilité à la vitesse de déformation viscoplastique en indentation
$m_{ev}$	Sensibilité à la vitesse de déformation élastique - viscoplastique en indentation
$\Upsilon(t)$	Échelon unité
$\phi$	Fonction de fluage en indentation
$\psi$	Fonction de relaxation en indentation
$\delta(t)$	Impulsion de Dirac
$K_p, T_i$ et $T_d$	Paramètres PID
$f_a$	Fonction d'atténuation
$f_{ak}$	Fonction d'atténuation modifiée
$\sigma_{Gi\ norm}$	Propagation d'erreur sur la fonction d'atténuation expérimentale
$\Sigma_e$ et $\Sigma_{vp}$	Contrainte élastique et viscoplastique équivalentes sous la pointe

---

$D_{eff}$	Coefficient de diffusion effectif
$\sigma_{rM}$	Contrainte représentative de Maier
$A_{pe}$	Aire de particules entrantes
$A_{prim}$	Aire du périmètre entrant autour de la pointe
$Nb_{pc}$	Nombre de particules entrées dans le contact
$X_{REX}$	Fraction recristallisée
$H_{def}$	Dureté du matériau à l'état déformé
$H_{REX}$	Dureté du matériau à l'état recristallisé
$H_t$	Dureté à l'instant $t$
$M$ et $n_R$	Constante du modèle JMAK et Exposant d'Avrami
$h_{Raideur}$	Profondeur de contact équivalente



# Bibliographie

- [1] S. Timoshenko and N. J. Goodier. *Theory of elasticity*. New York, 2nd editio edition, 1951. 3, 4, 159
- [2] J.-M. Bergheau. *Cours de mécanique des matériaux*. Ecole Nationale d'Ingénieurs de Saint Etienne, 2018. 3, 4, 12
- [3] F. Sidoroff. Mécanique des milieux continus. 1980. URL : <https://cel.archives-ouvertes.fr/cel-00530377>. 4
- [4] M. Reiner. The Deborah Number. *Physics Today*, 17(1) :62–62, jan 1964. doi:10.1063/1.3051374. 8, 12
- [5] T. Osswald and N. Rudolph. *Polymer Rheology*. Carl Hanser Verlag GmbH & Co. KG, München, nov 2014. doi:10.3139/9781569905234. 8, 64, 159
- [6] W. Findley. *Creep and relaxation of nonlinear viscoelastic materials*. Dover Publications, Inc., New York, 1978. doi:10.1016/0032-3861(78)90187-8. 9, 30, 31
- [7] F. Schwarzl and A. J. Staverman. Higher approximations of relaxation spectra. *Physica*, 18(10) :791–798, 1952. doi:10.1016/S0031-8914(52)80267-8. 9, 53, 165
- [8] N. W. Tschoegl. *The Phenomenological Theory of Linear Viscoelastic Behavior*. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1989. doi:10.1007/978-3-642-73602-5. 10
- [9] K. Ninomiya and J. D. Ferry. Some approximate equations useful in the phenomenological treatment of linear viscoelastic data. *Journal of Colloid Science*, 14(1) :36–48, feb 1959. doi:10.1016/0095-8522(59)90067-4. 10
- [10] J. D. Ferry. *Viscoelastic Properties of Polymers*. John Wiley and sons, Inc., 1970. 10
- [11] S. W. Park and R. A. Schapery. Methods of interconversion between linear viscoelastic material functions. Part I—a numerical method based on Prony series. *International Journal of Solids and Structures*, 36(11) :1653–1675, 1999. doi:10.1016/S0020-7683(98)00055-9. 10
- [12] M. L. Williams, R. F. Landel, and J. D. Ferry. The Temperature Dependence of Relaxation Mechanisms in Amorphous Polymers and Other Glass-forming Liquids. *Journal of the American Chemical Society*, 77(14) :3701–3707, jul 1955. doi:10.1021/ja01619a008. 11
- [13] J. H. Westbrook. Microhardness testing at high temperature. In *American Society for Testing Materials*, pages 873–895, 1957. 14
- [14] A. G. Atkins and D. Tabor. Hardness and deformation properties of solids at very high temperatures. *Proc. R. Soc. Lond. A*, 292(1273) :441–459, 1966. 14

- [15] D. Tabor. The hardness of solids. *Review of Physics in Technology*, 1(3) :145, 1970. doi: 10.1088/0034-6683/1/3/I01. 14, 16, 17, 18, 76, 104, 118, 162
- [16] H. J. Frost and M. F. Ashby. *Deformation-mechanism maps : The plasticity and creep of metals and ceramics*. Pergamon Press, 1982. 14, 15, 159
- [17] M. E. Kassner and M.-T. Pérez-Prado. *Fundamentals of Creep in Metals and Alloys*. Elsevier, 3rd edition, 2015. 16, 64
- [18] A. Cornet and J.-P. Deville. *Physique et ingénierie des surfaces*. EDP Sciences, Les Ulis, Janvier 1998. 16
- [19] M. F. Doerner and W. D. Nix. A method for interpreting the data from depth-sensing indentation instruments. *Journal of Materials Research*, 1(04) :601–609, aug 1986. doi: 10.1557/JMR.1986.0601. 17, 18, 19
- [20] J.-L. Loubet, J.-M. Georges, O. Marchesini, and G. Meille. Vickers Indentation Curves of Magnesium Oxide (MgO). *Journal of Tribology*, 106(1) :43, 1984. doi:10.1115/1.3260865. 17
- [21] G. Kermouche, J.-L. Loubet, and J.-M. Bergheau. Extraction of stress-strain curves of elastic-viscoplastic solids using conical/pyramidal indentation testing with application to polymers. *Mechanics of Materials*, 40(4-5) :271–283, 2008. doi:10.1016/j.mechmat.2007.08.003. 17, 27, 55, 59, 64, 159
- [22] A. E. H. Love. Boussinesq’s problem for a rigid cone. *Quarterly Journal of Mathematics*, os-10(1) :161–175, 1939. doi:10.1093/qmath/os-10.1.161. 18
- [23] I. N. Sneddon. Boussinesq’s problem for a rigid cone. *Mathematical Proceedings of the Cambridge Philosophical Society*, 44(04) :492–507, 1948. doi:10.1017/S0305004100024518. 18, 19
- [24] I. N. Sneddon. The relation between load and penetration in the axisymmetric boussinesq problem for a punch of arbitrary profile. *International Journal of Engineering Science*, 3(1) :47–57, 1965. doi:10.1016/0020-7225(65)90019-4. 19
- [25] G. M. Pharr, W. C. Oliver, and F. R. Brotzen. On the generality of the relationship among contact stiffness, contact area, and elastic-modulus during indentation. *Journal of Materials Research*, 7(3) :613–617, 1992. doi:10.1557/JMR.1992.0613. 19
- [26] R. B. King. Elastic analysis of some punch problems for a layered medium. *International Journal of Solids and Structures*, 23(12) :1657–1664, 1987. doi:10.1016/0020-7683(87)90116-8. 19
- [27] G. Guillonneau. *Nouvelles techniques de nano-indentation pour des conditions expérimentales difficiles : très faibles enfoncements, surfaces rugueuses, température*. PhD thesis, Ecole Centrale de Lyon, 2012. 19, 25
- [28] W. C. Oliver and G. M. Pharr. An improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments, 1992. doi:10.1557/JMR.1992.1564. 20, 21, 23, 24, 88, 159

- [29] J.-L. Loubet, J.-M. Georges, and G. Meille. Vickers Indentation Curves of Elastoplastic Materials. In *Microindentation Techniques in Materials Science and Engineering*, pages 72–72–18. ASTM International, 100 Barr Harbor Drive, PO Box C700, West Conshohocken, PA 19428-2959, 1986. doi:10.1520/STP32952S. 20
- [30] A. H. W. Ngan and B. Tang. Viscoelastic effects during unloading in depth-sensing indentation. *Journal of Materials Research*, 17(10) :2604–2610, 2002. doi:10.1557/JMR.2002.0377. 20
- [31] G. M. Pharr, J. H. Strader, and W. C. Oliver. Critical issues in making small-depth mechanical property measurements by nanoindentation with continuous stiffness measurement. *Journal of Materials Research*, 24(3) :653–666, 2009. doi:10.1557/jmr.2009.0096. 21, 22, 159
- [32] K.W. Siu and A.H.W. Ngan. The continuous stiffness measurement technique in nanoindentation intrinsically modifies the strength of the sample. *Philosophical Magazine*, 93(5) :449–467, feb 2013. doi:10.1080/14786435.2012.722234. 22
- [33] M. J. Cordill, N. R. Moody, and W. W. Gerberich. Effects of dynamic indentation on the mechanical response of materials. *Journal of Materials Research*, 23(6) :1604–1613, 2008. doi:10.1557/jmr.2008.0205. 22
- [34] G. Hochstetter, A. Jimenez, and J. L. Loubet. Strain-rate effects on hardness of glassy polymers in the nanoscale range. Comparison between quasi-static and continuous stiffness measurements. *Journal of Macromolecular Science, Part B*, 38(5-6) :681–692, 1999. doi:10.1080/00222349908248131. 23
- [35] J. L. Loubet, M. Bauer, A. Tonck, S. Bec, and B. Gauthier-Manuel. Nanoindentation with a Surface Force Apparatus. In *Mechanical Properties and Deformation Behavior of Materials Having Ultra-Fine Microstructures*, volume 233, pages 429–447. Springer Netherlands, Dordrecht, 1993. doi:10.1007/978-94-011-1765-4\_28. 25, 52, 111, 159
- [36] G. Kermouche, J. L. Loubet, and J. M. Bergheau. Cone indentation of time-dependent materials : The effects of the indentation strain rate. *Mechanics of Materials*, 39(1) :24–38, 2007. doi:10.1016/j.mechmat.2006.02.005. 26, 42, 43
- [37] B. N. Lucas, W. C. Oliver, G. M. Pharr, and J.-L. Loubet. Time Dependent Deformation During Indentation Testing. *MRS Proceedings*, 436(1) :233–238, 1997. doi:10.1557/PROC-436-233. 26, 27, 28, 45
- [38] M. J. Mayo and W. D. Nix. A micro-indentation study of superplasticity in Pb, Sn, and Sn-38 wt% Pb. *Acta Metallurgica*, 36(8) :2183–2192, aug 1988. doi:10.1016/0001-6160(88)90319-7. 27
- [39] G. Kermouche, J. L. Loubet, and J. M. Bergheau. A new index to estimate the strain rate sensitivity of glassy polymers using conical/pyramidal indentation. *Philosophical Magazine*, 86(33-35) :5667–5677, 2006. doi:10.1080/14786430600778682. 28
- [40] V. Maier, K. Durst, J. Mueller, B. Backes, H. W. Höppel, and M. Göken. Nanoindentation strain-rate jump tests for determining the local strain-rate sensitivity in nanocrystalline Ni and ultrafine-grained Al. *Journal of Materials Research*, 26(11) :1421–1430, 2011. doi:10.1557/jmr.2011.156. 28, 29, 160

- [41] V. Maier, B. Merle, M. Göken, and K. Durst. An improved long-term nanoindentation creep testing approach for studying the local deformation processes in nanocrystalline metals at room and elevated temperatures. *Journal of Materials Research*, 28(09) :1177–1188, 2013. doi:10.1557/jmr.2013.39. 28, 87, 95, 96
- [42] J.-L. Loubet, B. N. Lucas, and W. C. Oliver. Some measurements of viscoelastic properties with the help of nanoindentation. In *NIST Special Publication*, volume 896, page 31, San Diego, 1995. 29
- [43] E. G. Herbert, W. C. Oliver, A. Lumsdaine, and G. M. Pharr. Measuring the constitutive behavior of viscoelastic solids in the time and frequency domain using flat punch nanoindentation. *Journal of materials research*, 24(3) :626–637, 2009. doi:10.1557/JMR.2009.0089. 29
- [44] E. G. Herbert, P. S. Phani, and K. E. Johanns. Nanoindentation of viscoelastic solids : A critical assessment of experimental methods. *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, 19(6) :334–339, 2015. doi:10.1016/j.cossms.2014.12.006. 29
- [45] J. L. Loubet, W. C. Oliver, and B. N. Lucas. Measurement of the loss tangent of low-density polyethylene with a nanoindentation technique. *Journal of Materials Research*, 15 :1195–1198, 2000. doi:10.1557/JMR.2000.0169. 29
- [46] M. J. Mayo, R. W. Siegel, a. Narayanasamy, and W. D. Nix. Mechanical properties of nanophase TiO<sub>2</sub> as determined by nanoindentation. *Journal of Materials Research*, 5 :1073–1082, 1990. doi:10.1557/JMR.1990.1073. 29
- [47] V. Raman and R. Berriche. An investigation of the creep processes in tin and aluminum using a depth-sensing indentation technique. *Journal of Materials Research*, 7(03) :627–638, mar 1992. doi:10.1557/JMR.1992.0627. 29
- [48] C. Su, E. G. Herbert, S. Sohn, J. A. LaManna, W. C. Oliver, and G. M. Pharr. Measurement of power-law creep parameters by instrumented indentation methods. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 61(2) :517–536, 2013. doi:10.1016/j.jmps.2012.09.009. 29
- [49] P. Sudharshan Phani and W. C. Oliver. A direct comparison of high temperature nanoindentation creep and uniaxial creep measurements for commercial purity aluminum. *Acta Materialia*, 111 :31–38, 2016. doi:10.1016/j.actamat.2016.03.032. 29, 30, 33, 35, 71, 76, 77, 80, 81, 82, 83, 84, 116, 162
- [50] R. Goodall and T. W. Clyne. A critical appraisal of the extraction of creep parameters from nanoindentation data obtained at room temperature. *Acta Materialia*, 54(20) :5489–5499, 2006. doi:10.1016/j.actamat.2006.07.020. 30
- [51] T. C. T. Ting. The Contact Stresses Between a Rigid Indenter and a Viscoelastic Half-Space. *Journal of Applied Mechanics*, 33(4) :845–854, 1966. doi:10.1115/1.3625192. 31, 32, 33
- [52] G. A. C. Graham. The contact problem in the linear theory of viscoelasticity. *International Journal of Engineering Science*, 3(1) :27–46, 1965. doi:10.1016/0020-7225(65)90018-2. 31
- [53] M. Sakai and S. Shimizu. Indentation rheometry for glass-forming materials. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 282(2-3) :236–247, 2001. doi:10.1016/S0022-3093(01)00316-7. 31

- [54] C. A. Tweedie and K. J. Van Vliet. Contact creep compliance of viscoelastic materials via nanoindentation. *Journal of Materials Research*, 21(06) :1576–1589, 2006. doi:10.1557/jmr.2006.0197. 31
- [55] S. Yang, Y. W. Zhang, and K. Zeng. Analysis of nanoindentation creep for polymeric materials. *Journal of Applied Physics*, 95(7) :3655–3666, 2004. doi:10.1063/1.1651341. 31
- [56] W. R. Lafontaine, B. Yost, and R. D. Black. Indentation load relaxation experiments with indentation depth in the submicron range. *Journal of Materials Research*, 5(10) :2100–2106, 1990. 31
- [57] M. R. Vanlandingham, N. K. Chang, P. L. Drzal, C. C. White, and S. H. Chang. Viscoelastic characterization of polymers using instrumented indentation. I. Quasi-static testing. *Journal of Polymer Science, Part B : Polymer Physics*, 43(14) :1794–1811, 2005. doi:10.1002/polb.20454. 31, 49, 54, 55, 57, 98
- [58] C. Y. Zhang, Y. W. Zhang, K. Y. Zeng, L. Shen, and Y. Y. Wang. Extracting the elastic and viscoelastic properties of a polymeric film using a sharp indentation relaxation test. *Journal of Materials Research*, 21(12) :2991–3000, 2006. doi:10.1557/JMR.2006.0395. 31
- [59] K. I. Schiffmann. Nanoindentation creep and stress relaxation tests of polycarbonate : Analysis of viscoelastic properties by different rheological models. *International Journal of Materials Research*, 97(9) :1199–1211, 2006. doi:10.3139/146.101357. 31, 32, 53, 99
- [60] S. Shimizu, T. Yanagimoto, and M. Sakai. Pyramidal indentation load-depth curve of viscoelastic materials. *Journal of Materials Research*, 14(10) :4075–4096, 1999. doi:10.1557/JMR.1999.0550. 32
- [61] Y.-T. Cheng and F. Yang. Obtaining shear relaxation modulus and creep compliance of linear viscoelastic materials from instrumented indentation using axisymmetric indenters of power-law profiles. *Journal of Materials Research*, 24(10) :3013–3017, 2009. doi:10.1557/jmr.2009.0365. 32
- [62] B. N. Lucas and W. C. Oliver. Time Dependent Indentation Testing at Non-Ambient Temperatures Utilizing the High Temperature Mechanical Properties Microprobe. *MRS Proceedings*, 356 :645–650, 1995. doi:doi:10.1557/PROC-356-645. 33
- [63] J.F. Smith and S. Zheng. High temperature nanoscale mechanical property measurements. *Surface Engineering*, 16(2) :143–146, 2000. doi:10.1179/026708400101517044. 33, 35
- [64] J. S.K.L. Gibson, S. Schröders, C. Zehnder, and S. Korte-Kerzel. On extracting mechanical properties from nanoindentation at temperatures up to 1000 °C. *Extreme Mechanics Letters*, 17 :43–49, 2017. doi:10.1016/j.eml.2017.09.007. 33
- [65] N.M. Everitt, M.I. Davies, and J.F. Smith. High temperature nanoindentation – the importance of isothermal contact. *Philosophical Magazine*, 91(April 2015) :1221–1244, 2011. doi:10.1080/14786435.2010.496745. 33, 34, 35, 71
- [66] X. Huang, J. Nohava, B. Zhang, and A. G. Ramirez. Nanoindentation of NiTi shape memory thin films at elevated temperatures. *International Journal of Smart and Nano Materials*, 2(1) :39–49, 2011. doi:10.1080/19475411.2011.558179. 34

- [67] C. A. Schuh, C. E. Packard, and A. C. Lund. Nanoindentation and contact-mode imaging at high temperatures. *Journal of Materials Research*, 21(03) :725–736, 2006. doi:10.1557/jmr.2006.0080. 34, 69, 70, 71
- [68] Y. Li, X. Fang, S. Lu, Q. Yu, G. Hou, and X. Feng. Effects of creep and oxidation on reduced modulus in high-temperature nanoindentation. *Materials Science and Engineering : A*, 678 :65–71, 2016. doi:10.1016/j.msea.2016.09.039. 34, 36, 69, 110, 160
- [69] J. M. Wheeler and J. Michler. Elevated temperature, nano-mechanical testing in situ in the scanning electron microscope. *Review of Scientific Instruments*, 84(4), 2013. doi:10.1063/1.4795829. 35
- [70] S. Korte and W. J. Clegg. Micropillar compression of ceramics at elevated temperatures. *Scripta Materialia*, 60(9) :807–810, 2009. doi:10.1016/j.scriptamat.2009.01.029. 35
- [71] J. M. Wheeler, D. E. J. Armstrong, W. Heinz, and R. Schwaiger. High temperature nanoindentation : The state of the art and future challenges. *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, 19(6) :354–366, 2015. doi:10.1016/j.cossms.2015.02.002. 35, 36
- [72] S. Korte, R. J. Stearn, J. M. Wheeler, and W. J. Clegg. High temperature microcompression and nanoindentation in vacuum. *Journal of Materials Research*, 27(1) :167–176, 2012. doi:10.1557/jmr.2011.268. 36
- [73] B. D. Beake and J. F. Smith. High-temperature nanoindentation testing of fused silica and other materials. *Philosophical Magazine A*, 82(10) :2179–2186, 2002. doi:10.1080/01418610210134387. 36, 70
- [74] J. M. Wheeler and J. Michler. Invited article : Indenter materials for high temperature nanoindentation. *Review of Scientific Instruments*, 84(10), 2013. doi:10.1063/1.4824710. 36, 37, 38, 160, 165
- [75] A. F. Yee and M. T. Takemori. Dynamic Bulk and Shear Relaxation in Glassy Polymers. I. Experimental Techniques and Results on PMMA. *Journal of Polymer Science : Polymer Physics Edition*, 20(2) :205–224, 1982. doi:10.1002/pol.1982.180200204. 44, 53
- [76] L. Odoni. *Propriétés Mécaniques Et Effets D ' Echelle*. PhD thesis, Ecole Centrale de Lyon, 1999. 46, 59, 64, 127
- [77] G. Guillonéau, G. Kermouche, J.-M. Bergheau, and J.-L. Loubet. A new method to determine the true projected contact area using nanoindentation testing. *Comptes Rendus Mécanique*, 343(7-8) :410–418, 2015. doi:10.1016/j.crme.2015.06.004. 52, 88
- [78] G. Petitet and M. Barquins. *Matériaux caoutchouteux : Morphologies, formulations, adhérence, glissance et usure*. PPUR, 1st edition, 2008. 53
- [79] P. Fernández, D. Rodríguez, M. J. Lamela, and A. Fernández-Canteli. Study of the interconversion between viscoelastic behaviour functions of PMMA. *Mechanics of Time-Dependent Materials*, 15(2) :169–180, 2011. doi:10.1007/s11043-010-9128-3. 55, 57, 60, 61, 98
- [80] H. Lu, X. Zhang, and W. G. Knauss. Uniaxial, shear, and poisson relaxation and their conversion to bulk relaxation : Studies on poly(methyl methacrylate). *Polymer Engineering & Science*, 37(6) :1053–1064, 1997. doi:10.1002/pen.11750. 55, 57, 98

- [81] M. Cizmecioglu, R. F. Fedors, S. D. Hong, and J. Moacanin. Effect of physical aging on stress relaxation of poly(methyl methacrylate). *Polymer Engineering and Science*, 21(14) :940–942, 1981. doi:10.1002/pen.760211412. 55, 57, 98
- [82] A. Hernandez-Jimenez, J. Hernandez-Santiago, A. Macias-Garcia, and J. Sanchez-Gonzalez. Relaxation modulus in PMMA and PTFE fitting by fractional Maxwell model. *Polymer Testing*, 21(3) :325–331, 2002. doi:10.1016/S0142-9418(01)00092-7. 55, 57
- [83] J. J. C. Cruz Pinto and J. R. S. André. Toward the Accurate Modeling of Amorphous Nonlinear Materials—Polymer Stress Relaxation (I). *Polymer Engineering & Science*, 56(3) :348–360, 2016. arXiv:0406218, doi:10.1002/pen. 55
- [84] U. Eisele. *Introduction to Polymer Physics*. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1st edition, 1990. doi:10.1007/978-3-642-74434-1. 64
- [85] W. C. Oliver and G. M. Pharr. Measurement of hardness and elastic modulus by instrumented indentation : Advances in understanding and refinements to methodology. *Journal of Materials Research*, 19(01) :3–20, 2004. doi:10.1557/jmr.2004.19.1.3. 66
- [86] K. Demmou. *Nanoindentation, viscoplasticité et piézo-mécanique de films de dithio-phosphate de zinc triboformés*. PhD thesis, Université de Lyon, Ecole Centrale de Lyon, 2007. 68
- [87] J. C. Trenkle, C. E. Packard, and C. A. Schuh. Hot nanoindentation in inert environments. *Review of Scientific Instruments*, 81(7) :073901, jul 2010. doi:10.1063/1.3436633. 70, 71
- [88] S. Spinner. Elastic Moduli of Glasses at Elevated Temperatures by a Dynamic Method. *Journal of the American Ceramic Society*, 39(3) :113–118, 1956. doi:10.1111/j.1151-2916.1956.tb15634.x. 70, 71
- [89] J. W. Marx and J. M. Sivertsen. Temperature dependence of the elastic moduli and internal friction of silica and glass. *Journal of Applied Physics*, 24(1) :81–87, 1953. doi:10.1063/1.1721138. 70, 71
- [90] K. L. Johnson. The correlation of indentation experiments. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 18(2) :115–126, apr 1970. doi:10.1016/0022-5096(70)90029-3. 75, 104
- [91] C. H. Solunov and C. H. Ponevsky. A Method for the Evaluation of the Activation Energy from Relaxation Experiments. *Journal of Polymer Science Polymer Physics Edition*, 14 :1801–1812, 1976. 78
- [92] R. Bergman, F. Alvarez, A. Alegria, and J. Colmenero. The merging of the dielectric  $\alpha$ - and  $\beta$ -relaxations in poly-(methyl methacrylate). *The Journal of Chemical Physics*, 109(17) :7546–7555, nov 1998. doi:10.1063/1.477376. 78
- [93] E. V. Thompson. Secondary processes of poly(methyl methacrylate) and their activation energies as determined by shear and tensile creep compliance measurements. *Journal of Polymer Science Part A-2 : Polymer Physics*, 6(3) :433–449, mar 1968. doi:10.1002/pol.1968.160060301. 78
- [94] S. Iwayanagi and T. Hideshima. Dynamical Study on the Secondary Anomalous Absorption Region of Polymethyl Methacrylate. *Journal of the Physical Society of Japan*, 8(3) :368–371, may 1953. doi:10.1143/JPSJ.8.368. 78

- [95] B. E. Read. Influence of stress state and temperature on secondary relaxations in polymeric glasses. *Polymer*, 22(11) :1580–1586, nov 1981. doi:10.1016/0032-3861(81)90335-9. 78
- [96] B. E. Read. Dynamic birefringence of poly(methyl methacrylate). *Journal of Polymer Science Part C : Polymer Symposia*, 16(4) :1887–1902, mar 1967. doi:10.1002/polc.5070160405. 78
- [97] H. Luthy, A. K. Miller, and O. D. Sherby. The stress and temperature dependence of steady-state flow at intermediate temperatures for pure polycrystalline aluminum. *Acta Metallurgica*, 28(2) :169–178, feb 1980. doi:10.1016/0001-6160(80)90066-8. 80, 82, 83, 84
- [98] S. L. Robinson and O. D. Sherby. Mechanical behavior of polycrystalline tungsten at elevated temperature. *Acta Metallurgica*, 17(2) :109–125, feb 1969. doi:10.1016/0001-6160(69)90132-1. 82
- [99] A. K. Miller and O. D. Sherby. A simplified phenomenological model for non-elastic deformation : Predictions of pure aluminum behavior and incorporation of solute strengthening effects. *Acta Metallurgica*, 26(2) :289–304, feb 1978. doi:10.1016/0001-6160(78)90129-3. 83, 116
- [100] S. Asif and J. B. Pethica. Nanoindentation creep of single-crystal tungsten and gallium arsenide. *Philosophical Magazine A*, 76(6) :1105–1118, 1997. doi:10.1080/01418619708214217. 87
- [101] D. L. Goldsby, A. Rar, G. M. Pharr, and T. E. Tullis. Nanoindentation creep of quartz, with implications for rate- and state-variable friction laws relevant to earthquake mechanics. *Journal of Materials Research*, 19(01) :357–365, jan 2004. doi:10.1557/jmr.2004.0041. 87, 96
- [102] J. K. Deuschle, M. H. Deuschle, S. Enders, and E. Arzt. Contact area determination in indentation testing of elastomers. *Journal of Materials Research*, 24(03) :736–748, mar 2009. doi:10.1557/jmr.2009.0093. 88
- [103] C. R. Siviour, S. M. Walley, W. G. Proud, and J. E. Field. The high strain rate compressive behaviour of polycarbonate and polyvinylidene difluoride. *Polymer*, 46(26) :12546–12555, dec 2005. doi:10.1016/j.polymer.2005.10.109. 89
- [104] J. Rieger. The glass transition temperature of polystyrene. *Journal of Thermal Analysis*, 46(3-4) :965–972, mar 1996. doi:10.1007/BF01983614. 89
- [105] J. L. Hay, W. C. Olive, A. Bolshakov, and G. M. Pharr. Using the Ratio of Loading Slope and Elastic Stiffness to Predict Pile-Up and Constraint Factor During Indentation. *MRS Proceedings*, 522 :101, jan 1998. doi:10.1557/PROC-522-101. 95
- [106] A. A. Elmustafa and D. S. Stone. Strain rate sensitivity in nanoindentation creep of hard materials. *Journal of Materials Research*, 22(10) :2912–2916, oct 2007. doi:10.1557/JMR.2007.0374. 96, 105
- [107] R. Limbach, B. P. Rodrigues, and L. Wondraczek. Strain-rate sensitivity of glasses. *Journal of Non-Crystalline Solids*, 404 :124–134, nov 2014. doi:10.1016/j.jnoncrysol.2014.08.023. 96

- [108] D. M. Colucci, P. A. O'Connell, and G. B. McKenna. Stress relaxation experiments in polycarbonate : A comparison of volume changes for two commercial grades. *Polymer Engineering & Science*, 37(9) :1469–1474, 1997. doi:10.1002/pen.11794. 99
- [109] J. S. Bergström and M. C. Boyce. Mechanical Behavior of Particle Filled Elastomers. *Rubber Chemistry and Technology*, 72(4) :633–656, 1999. doi:10.5254/1.3538823. 101
- [110] I. Jenei, F. Dassenoy, T. Epicier, A. Khajeh, A. Martini, D. Uy, H. Ghaednia, and A. Gangopadhyay. Mechanical characterization of diesel soot nanoparticles : in situ compression in a transmission electron microscope and simulations. *Nanotechnology*, 29(8) :085703, feb 2018. doi:10.1088/1361-6528/aaa2aa. 101
- [111] D. Berthier, M.-P. Deffarges, N. Berton, M. Venin, F. Lacroix, B. Schmaltz, Y. Tendron, E. Pestel, F. Tran-Van, and S. Méo. POSS Nanofiller-Induced Enhancement of the Thermo-mechanical Properties in a Fluoroelastomer Terpolymer. *Materials*, 11(8) :1358, aug 2018. doi:10.3390/ma11081358. 101
- [112] B. Vrancken, L. Thijs, J.-P. Kruth, and J. Van Humbeeck. Heat treatment of Ti6Al4V produced by Selective Laser Melting : Microstructure and mechanical properties. *Journal of Alloys and Compounds*, 541 :177–185, 2012. doi:10.1016/j.jallcom.2012.07.022. 107
- [113] L. Thijs, K. Kempen, J.-P. Kruth, and J. Van Humbeeck. Fine-structured aluminium products with controllable texture by selective laser melting of pre-alloyed AlSi10Mg powder. *Acta Materialia*, 61(5) :1809–1819, 2013. doi:10.1016/j.actamat.2012.11.052. 107
- [114] G. Kermouche, G. Jacquet, C. Courbon, J. Rech, Y.Y. Zhang, and R. Chromik. Microstructure Evolution Induced by Sliding-Based Surface Thermomechanical Treatments - Application to Pure Copper. *Materials Science Forum*, 879 :915–920, 2016. doi:10.4028/www.scientific.net/MSF.879.915. 107
- [115] D. Tumbajoy-Spinel, X. Maeder, G. Guillonneau, S. Sao-Joao, S. Descartes, J.-M. Bergheau, C. Langlade, J. Michler, and G. Kermouche. Microstructural and micromechanical investigations of surface strengthening mechanisms induced by repeated impacts on pure iron. *Materials & Design*, 147 :56–64, 2018. doi:10.1016/j.matdes.2018.03.014. 107
- [116] P. Baral, M. Laurent-Brocq, G. Guillonneau, J.-M. Bergheau, J.-L. Loubet, and G. Kermouche. In situ characterization of AA1050 recrystallization kinetics using high temperature nanoindentation testing. *Materials & Design*, apr 2018. doi:10.1016/j.matdes.2018.04.053. 107
- [117] F. Humphreys and M. Hatherly. *Recrystallization and Related Annealing Phenomena : Second Edition*. Elsevier, 2004. doi:10.1016/B978-0-08-044164-1.X5000-2. 107, 118, 120
- [118] L. H. Liao, H. Jin, M. Gallerneault, and S. Esmaeili. Through-thickness recrystallization characteristics of a laminated AA3xxx-AA6xxx aluminum alloy system. *Materials Characterization*, 101 :71–77, 2015. doi:10.1016/j.matchar.2015.01.007. 107
- [119] M. M. Miszczyk, H. Paul, J. H. Driver, and J. Poplewska. The influence of deformation texture on nucleation and growth of cube grains during primary recrystallization of AA1050 alloy. *Acta Materialia*, 129 :378–387, 2017. doi:10.1016/j.actamat.2017.03.004. 107, 112

- [120] Z. Ren, G. Hu, R. Ma, J. Wu, Z. Wang, and C. Luo. Recrystallization and grain growth of U-5.5 wt%Nb alloy. *Journal of Nuclear Materials*, 494 :284–293, oct 2017. doi:10.1016/j.jnucmat.2017.07.050. 107
- [121] F. Christien, M. T. F. Telling, K. S. Knight, and R. Le Gall. A method for the monitoring of metal recrystallization based on the in-situ measurement of the elastic energy release using neutron diffraction. *Review of Scientific Instruments*, 86(5) :053901, 2015. doi:10.1063/1.4919414. 107
- [122] A. Lens, C. Maurice, and J. H. Driver. Grain boundary mobilities during recrystallization of Al-Mn alloys as measured by in situ annealing experiments. *Materials Science and Engineering A*, 403(1-2) :144–153, 2005. doi:10.1016/j.msea.2005.05.010. 107
- [123] N. Bozzolo, S. Jacomet, and R. E. Logé. Fast in-situ annealing stage coupled with EBSD : A suitable tool to observe quick recrystallization mechanisms. *Materials Characterization*, 70(Supplement C) :28–32, 2012. doi:https://doi.org/10.1016/j.matchar.2012.04.020. 107
- [124] E. M. Lauridsen, H. F. Poulsen, S. F. Nielsen, and D. Juul Jensen. Recrystallization kinetics of individual bulk grains in 90% cold-rolled aluminium. *Acta Materialia*, 51(15) :4423–4435, 2003. doi:10.1016/S1359-6454(03)00278-7. 107
- [125] E. M. Lauridsen, S. Schmidt, S. F. Nielsen, L. Margulies, H. F. Poulsen, and D. Juul Jensen. Non-destructive characterization of recrystallization kinetics using three-dimensional X-ray diffraction microscopy. *Scripta Materialia*, 55(1 SPEC. ISS.) :51–56, 2006. doi:10.1016/j.scriptamat.2006.02.028. 107
- [126] R. A. Vandermeer and N. Hansen. Recovery kinetics of nanostructured aluminum : Model and experiment. *Acta Materialia*, 56(19) :5719–5727, 2008. doi:10.1016/j.actamat.2008.07.038. 111
- [127] M. H. Alvi, S. W. Cheong, J. P. Suni, H. Weiland, and A. D. Rollett. Cube texture in hot-rolled aluminum alloy 1050 (AA1050)-nucleation and growth behavior. *Acta Materialia*, 56(13) :3098–3108, 2008. doi:10.1016/j.actamat.2008.02.037. 112, 120, 121
- [128] J. Hirsch, E. Nes, and K. Lücke. Rolling and recrystallization textures in directionally solidified aluminium. *Acta Metallurgica*, 35(2) :427–438, 1987. doi:10.1016/0001-6160(87)90249-5. 112
- [129] K. Durst, B. Backes, O. Franke, and M. Göken. Indentation size effect in metallic materials : Modeling strength from pop-in to macroscopic hardness using geometrically necessary dislocations. *Acta Materialia*, 54(9) :2547–2555, 2006. doi:10.1016/j.actamat.2006.01.036. 114, 118, 122
- [130] W. D. Nix and H. J. Gao. Indentation size effects in crystalline materials : A law for strain gradient plasticity. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 46(3) :411–425, 1998. doi:10.1016/s0022-5096(97)00086-0. 114, 118
- [131] A. Barnoush. Correlation between dislocation density and nanomechanical response during nanoindentation. *Acta Materialia*, 60(3) :1268–1277, 2012. doi:10.1016/j.actamat.2011.11.034. 119

- [132] A. Montagne, V. Audurier, and C. Tromas. Influence of pre-existing dislocations on the pop-in phenomenon during nanoindentation in MgO. *Acta Materialia*, 61(13) :4778–4786, 2013. doi:10.1016/j.actamat.2013.05.004. 119
- [133] F. J. Humphreys. The nucleation of recrystallization at second phase particles in deformed aluminium. *Acta Metallurgica*, 25(11) :1323–1344, 1977. doi:10.1016/0001-6160(77)90109-2. 121, 122, 164
- [134] R. A. Vandermeer and D. Juul Jensen. Recrystallization in hot vs cold deformed commercial aluminum : A microstructure path comparison. *Acta Materialia*, 51(10) :3005–3018, 2003. doi:10.1016/S1359-6454(03)00112-5. 121



# Table des figures

1.1	Composantes des contraintes appliquées à un volume élémentaire représentatif – VER – d’après Timoshenko et Goodier [1]. . . . .	4
1.2	Solide élémentaire sollicité en traction et en cisaillement. . . . .	5
1.3	Éléments rhéologique simples : (a) le ressort et (b) l’amortisseur. . . . .	6
1.4	Cartographie schématique des comportements mécanique d’un polymère en fonction de son niveau de déformation, $\gamma_0$ , et du nombre de Deborah, $De$ – d’après [5]. . . . .	8
1.5	Schéma de l’évolution du module d’élasticité et du facteur de perte d’un polymère en fonction de la température. . . . .	11
1.6	Patin, défini par une limite d’élasticité $\sigma_y$ . . . . .	12
1.7	Schéma des mouvements possibles d’une dislocation. . . . .	14
1.8	Schéma explicatif de la diffusion : Dans le réseau (a) ; aux joints de grains (b) et le long d’une dislocation (c). . . . .	14
1.9	Cartographie du comportement en fluage en fonction de la température normalisée $T/T_m$ et de la contrainte de cisaillement normalisée $\tau/\mu$ , inspirée des travaux réalisés par Frost et Ashby pour de l’aluminium pur – grain de diamètre $10 \mu m$ – [16]. . . . .	15
1.10	Comportement classique d’un matériau soumis à une contrainte constante – fluage. . . . .	16
1.11	Exemple d’isocontours de déformation plastique cumulée obtenus lors de l’indentation d’un solide élastoplastique par une pointe conique d’angle au sommet équivalent à une pointe Berkovich [21]. . . . .	17
1.12	Schéma des sources d’erreurs possibles lors de l’utilisation du mode CSM selon Pharr <i>et al.</i> [31] . . . . .	22
1.13	Topographies et profils d’indents effectués par le module d’imagerie – "Scanning Probe Microscopy" – du nanoindenteur Hysitron Ti950. Illustration des phénomènes de bourrelet et d’affaissement. . . . .	24
1.14	Schéma de la géométrie de contact entre une pointe conique et un matériau, définie par Oliver et Pharr [28] – à gauche – et Loubet – à droite. . . . .	24
1.15	Illustration du défaut de pointe, $h_0$ ; (a) schéma du défaut sur une pointe axisymétrique ; (b) estimation du défaut de pointe par la méthode de Loubet [35] sur un échantillon de Polyméthacrylate de méthyle – PMMA – à température ambiante. . . . .	25

1.16	Evolution de la vitesse de déformation aux coordonnées réduites $\rho = r/a$ et $\zeta = z/a$ , lors de l'indentation d'un solide élastique semi-infini par un cône rigide d'angle au sommet équivalent à une pointe Berkovich. Deux types de chargement en déplacement sont représentés. . . . .	27
1.17	Evolution de la dureté et du module d'élasticité lors d'un essai de nanoindentation de type "strain rate jump" [40]. . . . .	29
1.18	Essai de fluage. (a) principe de l'essai uniaxial, la contrainte est maintenue constante et la déformation mesurée augmente. (b) principe de l'essai en indentation : la force est maintenue constante et l'augmentation du déplacement est mesurée. . . . .	30
1.19	Essai de relaxation. (a) principe de l'essai uniaxial, la déformation est maintenue constante et la contrainte mesurée diminue. (b) principe de l'essai en indentation : le rayon de contact est maintenu constant et la baisse d'effort est mesurée. . . . .	32
1.20	Schéma de principe du nanoindenteur Ti950 <sup>®</sup> développé par Bruker <sup>®</sup> – d'après [68].	34
1.21	Image MEB d'une pointe en diamant après une indentation effectuée sur un acier à 500 °C [74]. . . . .	38
2.1	Module de relaxation obtenu via les équations 2.3 et 1.67 pour des chargements à une vitesse de déplacement constante et différentes profondeur de pénétration. (a) Cinétiques de chargement utilisées ; (b) modules de relaxation obtenus. . . . .	41
2.2	Module de relaxation obtenu via les équations 2.8 et 1.67 pour des chargements à une vitesse de déformation constante et différentes profondeur de pénétration. (a) Cinétiques de chargement utilisées ; (b) modules de relaxation obtenus. . . . .	42
2.3	Calculs analytiques de l'effet de la vitesse de déformation lors du chargement sur la mesure du module de relaxation. . . . .	43
2.4	Image par microscopie électronique en transmission de l'élastomère étudié. . . . .	45
2.5	Exemple de procédure de chargement sur du PMMA avec une vitesse de déformation $\dot{h}/h = 0,025 \text{ s}^{-1}$ : Courbe de force et de déplacement en fonction du temps (a) et courbe classique force-déplacement (b). . . . .	46
2.6	Vitesses de déformation $-\dot{h}/h$ – obtenues expérimentalement en indentant du PMMA à température ambiante sur le nanoindenteur SA2 <sup>®</sup> . . . . .	47
2.7	Vitesses de déformation $-\dot{h}/h$ – obtenues expérimentalement en indentant l'élastomère à température ambiante sur le nanoindenteur SA2 <sup>®</sup> . . . . .	48
2.8	Transition entre chargement à vitesse de déformation constante et maintien à déplacement constant sur du PMMA : (a) Dépassement de la consigne en déplacement en fin de chargement ; (b) évolution de la charge lors de la transition d'asservissement. . . . .	49
2.9	Exemple d'un asservissement à déplacement constant sur le PMMA à température ambiante : Profondeur de pénétration (a) et charge (b) – en fonction du temps. . . . .	50
2.10	Exemple d'un asservissement à déplacement constant sur l'élastomère à température ambiante : Profondeur de pénétration (a) et charge (b) – en fonction du temps. . . . .	51
2.11	Dérives thermiques estimées par la mesure en continu de la raideur de contact. . . . .	52
2.12	Modules de relaxation du PMMA pour : (a) une vitesse de déformation de $0,15 \text{ s}^{-1}$ ; (b) une vitesse de chargement à $0,45 \text{ mN.s}^{-1}$ et pour deux profondeurs de pénétration. . . . .	54

2.13	Résultats des essais de relaxation en indentation sur du PMMA pour une profondeur de pénétration de 500 nm. . . . .	55
2.14	Approximation du premier ordre des spectres de relaxation du PMMA pour des indentations effectuées à 500 et 1000 nm de profondeur. . . . .	56
2.15	Comparaison des données d'indentation avec la littérature pour le PMMA : (a) Module de relaxation et (b) approximation du premier ordre du spectre de relaxation. . . . .	57
2.16	Résultats des essais de relaxation en indentation sur l'élastomère pour une profondeur de pénétration de 2000 nm. . . . .	58
2.17	Spectres de relaxation du PMMA ajustés par un modèle de Maxwell généralisé à trois temps de relaxation. (a) $ISR = 0,005 \text{ s}^{-1}$ et (b) $ISR = 0,15 \text{ s}^{-1}$ . . . . .	59
2.18	Fonction d'atténuation expérimentale, évaluée sur les spectres de relaxation du PMMA. . . . .	60
2.19	Correction de la contribution visqueuse du PMMA par la fonction d'atténuation – déterminée par l'équation 2.14. . . . .	61
2.20	Spectres de relaxation de l'élastomère ajustés par un modèle de Maxwell généralisé à trois temps de relaxation. (a) $ISR = 0,006 \text{ s}^{-1}$ et (b) $ISR = 0,364 \text{ s}^{-1}$ . . . . .	61
2.21	Fonction d'atténuation expérimentale, évaluée sur les spectres de relaxation de l'élastomère. . . . .	62
2.22	Évolution de la vitesse de déformation en fonction de la résistance à la pénétration, $pm$ , sur de l'élastomère à température ambiante. . . . .	63
3.1	Exemple d'un asservissement à déplacement constant sur le PMMA à 60 °C : Profondeur de pénétration (a) et charge (b). . . . .	67
3.2	Exemple d'un asservissement à déplacement constant sur l'alliage d'aluminium AA1050 à 300 °C : Profondeur de pénétration (a) et charge (b) – en fonction du temps. Le symbole ● marque la localisation du début du segment de relaxation. . . . .	68
3.3	Mesures des dérives obtenues à haute température : (a) pour le PMMA et (b) pour l'alliage AA1050. . . . .	69
3.4	Erreur faite sur le calcul de l'aire de contact – due à la dérive thermique – tracée en fonction du temps de maintien et du rapport taux de dérive sur profondeur d'indentation maximum. . . . .	70
3.5	Résultats et littérature sur la silice fondue : (a) Module d'élasticité réduit de contact, $E_c^*$ , normé sur le module mesuré à température ambiante et (b) Dureté normée sur la dureté mesurée à température ambiante. . . . .	71
3.6	Évolution de l'effort lors du maintien à déplacement constant sur la silice – axe de gauche, en bleu – et des températures mesurées au dessus et en dessous de l'échantillon – axe de droite, en rouge – pour une consigne à 100 °C. . . . .	72
3.7	Évolution de l'effort lors du maintien à déplacement constant sur la silice – axe de gauche, en bleu – et des températures mesurées au dessus et en dessous de l'échantillon – axe de droite, en rouge – pour une consigne à 400 °C. . . . .	72
3.8	Modules et spectres de relaxation du PMMA sollicité à différentes vitesses de déformation lors du chargement et à différentes température. . . . .	74
3.9	Contrainte représentative définie par l'équation 1.57 en fonction du temps de relaxation. . . . .	75

3.10	(a) Schéma représentatif de l'indentation d'un solide viscoplastique, d'après [15]. (b) Évolution des contraintes élastiques et viscoplastiques dans le repère cylindrique. . . . .	76
3.11	Vitesse de déformation plastique en fonction de la dureté en log-log pour l'alliage AA1050 en température. . . . .	77
3.12	Module de relaxation du PMMA en fonction du logarithme en base 10 du temps, obtenu par transposition temps-température (a) et fonction d'Arrhenius, $\ln(a_T)$ vs. $1/T$ obtenue pour $T_0 = 22$ °C (b). . . . .	77
3.13	Module de relaxation du PMMA en fonction du logarithme en base 10 de la fréquence de sollicitation, obtenu par transposition temps-température. . . . .	79
3.14	Vitesse de déformation plastique en fonction de la dureté en log-log pour l'alliage d'aluminium AA1050 en température (a) et évolution du logarithme népérien de la vitesse de déformation plastique en fonction de l'inverse de la température, en Kelvin (b). . . . .	81
3.15	Vitesse de déformation plastique compensée par la température en fonction du rapport dureté sur module d'élasticité. Les points de couleurs correspondent à notre étude et les symboles $\circ$ représentent les résultats de Phani <i>et al.</i> [49]. . . . .	82
3.16	Vitesse de déformation plastique normée par le coefficient de diffusion effectif, $D_{eff}$ , en fonction du rapport contrainte représentative sur module d'élasticité (a) et vitesse de déformation en écoulement stationnaire normé par la température en fonction du rapport contrainte d'écoulement stationnaire sur module d'élasticité (b) . . . . .	83
4.1	Dépassement de la consigne de raideur (a) et son implication sur le signal de force (b) pour un essai de relaxation sur du PMMA. . . . .	90
4.2	Dépassement de la consigne de raideur (a) et son implication sur le signal de force (b) pour un essai de relaxation sur l'élastomère. . . . .	91
4.3	Raideur de contact, force et déplacement en fonction du temps de relaxation pour des essais à déplacement constant sur le PMMA. . . . .	92
4.4	Raideur de contact, force et déplacement en fonction du temps de relaxation pour des essais à raideur de contact constante sur le PMMA. . . . .	92
4.5	Force et déplacement en fonction du temps de relaxation pour des essais à raideur de contact constante maintenue de 2 à 5 h sur de la silice fondue. . . . .	93
4.6	Courbe force - déplacement pour deux cas de maintien pendant 5 h de la raideur de contact constante. . . . .	94
4.7	Évolution de $\sigma_{rM}$ normalisée par la contrainte représentative de Maier déterminée lors du chargement (a) et courbe de vitesse de déformation en fonction de la contrainte représentative de Maier normée (b). . . . .	95
4.8	Module de relaxation (a) et approximations du premier ordre des spectres de relaxation calculés (b) pour le PMMA, le PC et le PS. . . . .	97
4.9	Comparaison des données d'indentation avec la littérature pour le PMMA : Le module de relaxation (a) et l'approximation du premier ordre du spectre de relaxation (b). . . . .	98

4.10	Comparaison des données d'indentation avec la littérature pour le PC : Le module de relaxation (a) et l'approximation du premier ordre du spectre de relaxation (b).	99
4.11	Comparaison entre mesures de modules de relaxation du PMMA obtenus à déplacement constant et raideur de contact constante. . . . .	100
4.12	Comparaison entre mesures de modules (a) et de spectres de relaxation (b) de l'élastomère – obtenus à déplacement constant et raideur de contact constante. . . . .	100
4.13	Évolution de la raideur mesurée par le mode CSM avec la profondeur de contact. . . . .	102
4.14	Étapes du traitement de l'image de l'élastomère obtenue par microscopie à transmission (a). Les particules plus foncées représentent les agrégats de noir de carbone. Isolement des agglomérats de charge par traitement d'image (b); Comptage du nombre d'agrégat à l'intérieur du contact lors de l'indentation (c) et évolution de l'aire de contact pointe-agrégat avec la profondeur de pénétration (d). . . . .	103
4.15	Rapport de l'aire des agrégats entrants dans le contact sur le totale de l'aire entrante, en fonction de la profondeur de contact. . . . .	104
4.16	Nombre d'agrégats entrés dans sous la pointe en fonction de la profondeur de contact.	105
5.1	Image en contraste de bande de l'échantillon 2. (a) Image complète de la grille d'indents Vickers réalisés pour repérer la surface. (b) Agrandissement d'une zone dans laquelle nous remarquons la présence de grains non-écrouis – indiqués en partie par les flèches blanches. . . . .	109
5.2	Procédure de chargement et cinétique de chauffage pour la réalisation des mesures de recristallisation <i>in situ</i> . Les courbes noires représentent la charge appliquée et la courbe rouge la température. . . . .	110
5.3	Topographie et profil d'un indent effectués par le module d'imagerie – "Scanning Probe Microscopy" – du nanoindenteur Hysitron Ti950 <sup>®</sup> . (a) Topographie d'une indentation Berkovich sur un alliage d'aluminium corroyé AA1050, en cours de recuit. (b) Profil mesuré au niveau de la ligne noire sur (a); Nous notons la présence de bourrelets à la périphérie du contact. . . . .	111
5.4	Cartographies EBSD de l'échantillon 1 effectuées à la même position : (a,b) avant revenu et (c,d) après 2h45 à 300 °C. (a,c) donnent les orientations des grains par rapport à la normale à la surface en IPF – "Inverse Pole Figure" – et (b,d) sont les mêmes cartographies affichées en contraste de bande. . . . .	113
5.5	Figures de pôle représentant la texture de l'alliage d'aluminium (a) écroui et (b) recuit pendant 2h45 à 300 °C dans le plan DL - DT – Directions de laminage et transversale, respectivement. . . . .	114
5.6	Courbes de chargement obtenues à 300 °C sur l'échantillon 2. Pour des raison de lisibilité, seules les courbes de chargement sont affichées. L'échelle de couleur représente le temps de recuit. Une vue détaillée des mécanismes de déformation sous faible charge est donnée. . . . .	115
5.7	Propriétés mécaniques mesurées par le mode CSM en fonction de la profondeur d'indentation : (a) Module d'élasticité et (b) dureté. . . . .	116

5.8	Nanodureté moyenne – calculée entre 850 et 900 nm – à 300 et 325 °C et dureté Vickers, en bleue (a). Amplitude maximum des pop-in après différents temps de recuit (b). . . . .	117
5.9	Indice de viscoplasticité en fonction du temps de recuit. . . . .	118
5.10	Cinétique de recristallisation évaluée à partir des mesures de nanodureté et de dureté Vickers. . . . .	120
5.11	Schéma explicatif de la cinétique de recristallisation autour d’une particule rigide, d’après [133]. . . . .	122
A.1	Schéma d’une boucle de correction PID. . . . .	129
A.2	Illustration de l’algorithme de la fenêtre de réglage des paramètres PID sur le logiciel MTS TestWorks 4 <sup>®</sup> . . . . .	130
A.3	Schéma de la procédure de transition entre chargement à vitesse de déformation constante et maintien à déplacement constant pour les essais réalisés en température – 100, 200 et 300 °C – sur l’alliage d’aluminium AA1050. . . . .	133
B.1	Étapes de traitement numérique des courbes de relaxation à raideur de contact constante sur la silice fondue. . . . .	137
C.1	Illustration de l’algorithme de comptage des particules entrant dans le contact. . .	140
C.2	Étapes de traitement des courbes de chargement pour isoler les segments de type "saut". . . . .	142

# Liste des tableaux

1.1	Assemblages d'éléments rhéologiques simples. Modèle de Maxwell : ressort et amortisseur en série, avec $\epsilon_i$ , la déformation associée à chacun des éléments et $\sigma$ , la contrainte appliquée au montage; modèle de Kelvin-Voigt : ressort et amortisseur en parallèle, avec $\epsilon$ ; modèle de Maxwell généralisé : association en parallèle de $n$ modèles de Maxwell et d'un ressort de raideur $E_\infty$ . . . . .	7
1.2	Approximations du premier et du second ordre des spectres de relaxation – colonne de gauche – et de fluage – colonne de droite [7]. . . . .	9
1.3	Assemblages d'éléments rhéologiques simples. Modèle de Prandtl : ressort et patin en série, avec $\epsilon_e$ , la déformation élastique, $\epsilon_p$ , la déformation plastique et $\sigma$ , la contrainte appliquée au montage; modèle de Bingham : ressort en série avec un patin et un amortisseur montés en parallèle; modèle de Bingham-Norton : équivalent à Bingham avec deux paramètres pour l'amortisseur. . . . .	13
1.4	Ordre de grandeur des duretés des matériaux potentiellement utilisés pour la fabrication des pointes d'indentation, à différentes températures [74]. . . . .	37
1.5	Température au delà de laquelle une oxydation se produit à l'air [74]. . . . .	37
2.1	Paramètres du modèle de Maxwell généralisé à deux temps de relaxation utilisé en exemple dans les sections 1.1 et 1.2 (p. 39 et 41). . . . .	40
2.2	Procédures expérimentales développées pour les essais d'indentation à température ambiante. $h_1$ correspond à la profondeur de maintien. . . . .	46
2.3	Paramètres du mode CSM utilisés dans les différentes configurations. . . . .	47
2.4	Estimation des paramètres PID optimaux par la méthode du point critique. . . . .	48
3.1	Paramètres du mode CSM utilisés dans les différentes configurations pour les mesures à hautes températures. . . . .	66
3.2	Composition chimique de l'alliage d'aluminium AA1050. . . . .	66
3.3	Procédures expérimentales développées pour les essais d'indentation à hautes températures. $h_1$ et $t_m$ correspondent à la profondeur et au temps de maintien, respectivement. . . . .	68
3.4	Indice de viscoplasticité $n$ en fonction de la température pour les alliages d'aluminium AA1100 et AA1050. Les valeurs relatives à l'alliage AA1100 sont estimées à partir des données présentées dans la figure 3.11 . . . . .	80

4.1	Procédures expérimentales développées pour les essais d'indentation à hautes températures. $h_1$ correspond à la profondeur de maintien. . . . .	89
4.2	Fréquences et amplitudes de sollicitations appliquées au mode CSM du nanoindenteur SA2 <sup>®</sup> pour les différents matériaux étudiés. . . . .	89
5.1	Procédure de polissage. . . . .	109
5.2	Description des échantillons et des procédures utilisées. . . . .	110
A.1	Paramètres d'asservissement PID appliqués pour maintenir le déplacement constant à 500 et 1000 nm pour les essais réalisés sur le PMMA – à température ambiante. . .	131
A.2	Paramètres d'asservissement PID appliqués pour maintenir le déplacement constant à 2000 nm pour les essais réalisés sur l'élastomère – à température ambiante. . . .	131
A.3	Paramètres d'asservissement PID appliqués pour maintenir le déplacement constant à 2000 nm pour les essais réalisés en température sur le PMMA. . . . .	132
A.4	Paramètres d'asservissement PID appliqués pour maintenir la raideur de contact constante. Tous les matériaux de l'étude sont présentés. . . . .	133