



HAL
open science

Friction statique et dynamique sous cisaillement oscillatoire ultrasonore

Guillaume Conrad

► **To cite this version:**

Guillaume Conrad. Friction statique et dynamique sous cisaillement oscillatoire ultrasonore. Physique [physics]. Université Paris-Est, 2014. Français. NNT : 2014PEST1069 . tel-01126988

HAL Id: tel-01126988

<https://theses.hal.science/tel-01126988>

Submitted on 6 Mar 2015

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.

THÈSE

En vue de l'obtention du
DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE PARIS-EST

Délivré par :
Université Paris-Est

Discipline :
Physique

Présentée et soutenue par
Guillaume CONRAD

le :
17 octobre 2014

Titre :
Contribution à l'étude de la friction statique et dynamique sous cisaillement
oscillatoire ultrasonore

École doctorale :
Sciences, Ingénierie et Environnement

Unité de recherche :
LPMDI EA 7264

Directeur de thèse :
M. Xiaoping JIA **Professeur des Universités**

Co-encadrant de thèse :
M. Julien LÉOPOLDÈS **Maître de Conférence**

Rapporteurs :
M. Emmanuel LE CLÉZIO **Professeur des Universités**
M. Jean-Louis IZBICKI **Professeur des Universités**

Président du Jury :
M. Eric FALCON **Directeur de Recherche CNRS**

Remerciements

Ce travail a été réalisé au sein du Laboratoire de Physique des Matériaux Divisés et Interfaces (LPMDI) de l'Université Paris-Est Marne La Vallée.

Je tiens tout d'abord à remercier madame Madame Yamin Leprince-Wang, directrice du LPMDI, pour son accueil au sein du laboratoire. Je remercie Monsieur Xiaoping Jia, directeur de thèse, et Monsieur Julien Léopoldès pour m'avoir encadré et soutenu tout au long de cette thèse, pour avoir fait preuve de patience et pour m'avoir donné des conseils avisés. Je leur exprime ainsi toute ma reconnaissance.

Je remercie également Monsieur Hubert Sizun, responsable de l'atelier mécanique du LPMDI pour son travail lors de la réalisations des différents dispositifs nécessaires au bon déroulement de cette thèse.

Je voudrais exprimer un grand remerciement à Madame Martine Capo-Chichi, ingénieur de recherche, pour le soutien qu'elle m'a apportés aux moments difficiles. Je remercie Monsieur Clotaire Chevalier-César pour son amitié durant ces années.

Je remercie ma famille pour le soutien qui elle m'a apporté tout le long de cette thèse. Je dédie cette thèse à Madame Pique, institutrice de CE1 et de CE2 à l'école primaire Georges Brassens.

Table des matières

1	Le frottement solide	7
1.1	Loi d'Amontons - Coulomb	8
1.1.1	Phénoménologie	8
1.1.2	Éléments de mécanique du contact	8
1.1.3	Vieillissement	11
1.2	Le frottement dynamique : modèle de Rice et Ruina	16
1.3	Dynamique de la jonction	17
1.4	La théorie de Mindlin	20
1.5	Effet des vibrations sur la friction	23
1.6	Contacts élastiques adhésifs	25
1.6.1	Soumis à une force normale	25
1.6.2	Soumis à une force tangentielle	26
2	Dispositif expérimental	27
2.1	Principe de fonctionnement	27
2.1.1	Piézoélectricité	27
2.1.2	La microbalance à cristal de quartz	30
2.1.3	Couplage entre l'oscillateur et une masse inertielle	31
2.2	Elasticité interfaciale	32
2.2.1	Ressorts couplés	32
2.2.2	Films minces	34
2.3	Dissipation	35
2.4	Préparation des films	35
2.4.1	Couches de thiols	35

2.4.2	Films de polymère	36
2.5	Imagerie	39
2.6	Conclusions	41
3	Interfaces contrôlées nanométriques : propriétés mécaniques et vieillissement	43
3.1	Étude d'un film mince vitreux	44
3.1.1	Élaboration et dépôt des film de PMMA	44
3.1.2	Résultats et discussion	44
3.2	Etude d'un film solide viscoélastique	47
3.2.1	Protocole expérimental	47
3.2.2	Rayon de contact	47
3.2.3	"Squeeze flow"	49
3.2.4	Modules dynamiques	51
3.3	Influence de l'humidité relative sur le vieillissement	56
3.3.1	Description des expériences	56
3.3.2	Résultats expérimentaux	57
3.3.3	Interprétation	60
3.4	Conclusions	64
4	Déclenchement du glissement	67
4.1	Détails expérimentaux	67
4.1.1	Plan incliné	67
4.1.2	Interfaces	68
4.1.3	Caractérisation de la résonance.	68
4.2	Angle de repos : affaiblissement élastique et régime intermittent	69
4.3	Déclenchement du glissement à haute amplitude d'oscillation	80
4.3.1	Résultats et discussions	81
4.4	Vieillissement structural	90
4.5	Conclusions	96
5	Glissement stationnaire sous oscillations tangentielles	97
5.1	Interfaces polymère - solide	98
5.1.1	Structure	98

TABLE DES MATIÈRES

5.1.2	Profil d'écoulement et loi constitutive	99
5.2	Contrainte seuil et dissipation à haute amplitude de vibration . . .	101
5.2.1	Réponse ultrasonore	101
5.2.2	Après Mindlin?	104
5.2.3	Fracture	107
5.3	Glissement stationnaire sous vibration	110
5.4	Conclusions	118
A	Données complémentaires	125
A.1	Film de 70 nm	125
A.2	Film de 300 nm	125

TABLE DES MATIÈRES

Introduction

La friction en temps que problème d'ingénierie remonte à la préhistoire, lorsque nos ancêtres produisaient du feu à partir de solides frottants, mettant ainsi à contribution le premier principe de la thermodynamique. Le contrôle de la friction est un enjeu primordial dans la construction d'édifices architecturaux, notamment en Egypte sous l'Ancien Empire, pour acheminer les blocs de calcaire nummulitique extraits des carrières avoisinantes et nécessaires à la réalisation des pyramides.

La première étude scientifique sur la friction a été réalisée par De Vinci au début du 16^{ième} siècle à l'aide d'un patin glissant sur un autre solide. L'ingénieur français Amontons confirma les observations expérimentales de De Vinci et l'exposa à l'Académie Royale Des Sciences, dont les membres furent surpris et sceptiques au sujet de la proportionnalité entre la force de friction et la force normale quelle que soit la surface « apparente » de glissement. Puis, Coulomb mit en évidence que la force nécessaire pour maintenir un solide en mouvement est inférieure à la force nécessaire pour initier le mouvement : concrètement, la force de friction dynamique est inférieure à la force de friction statique. Il fallut attendre le milieu du 20^{ième} siècle pour que les bases de la physique du frottement solide soient établies par Bowden et Tabor. Le frottement solide est alors interprété en termes des propriétés physiques des matériaux en prenant en compte la rugosité des surfaces.

Les avancées les plus récentes ont été obtenues avec les machines à force de surface (SFA) développées notamment par les équipes de J.Israelachvili et de S.Granick dans les années 1990. L'équipe de S.Granick a mis en évidence que les films minces de liquides présentent des propriétés différentes de celle observées en masse. La viscosité effective du film est très supérieure à la viscosité en masse du liquide. L'équipe de J.Israelachvili a de plus montré que les films minces de polymère présentent des caractéristiques différentes selon la fréquence de sollici-

tation et l'épaisseur des films. En dessous d'une épaisseur critique les modules dynamiques augmentent fortement quand l'épaisseur diminue.

A présent, l'étude de la friction est un champ de recherche partagé par de nombreuses disciplines. La synthèse chimique et le greffage de molécules lubrifiantes améliore la performance des machines. De plus, la majeure partie des contacts entre solides s'effectue de part des micro-aspérités, dont le comportement non-linéaire est très spécifique. Enfin, la physique de la jonction est complexe, et similaire à la dynamique des solides amorphes.

Au moment où cette thèse a commencé, le comportement d'un contact sphère-plan soumis à des oscillations tangentielles est compris. Ceci permet de décrire des systèmes complexes composés de multiples contacts, tels que les interfaces multicontacts (T. Baumberger, C. Caroli) ou encore certaines propriétés des milieux granulaires (X. Jia). En revanche, l'interaction entre les vibrations ultrasonores et le mouvement macroscopique est encore peu explorée. Compte-tenu des implications potentielles en physique et en géophysique, nous avons entrepris une série d'expériences dans cette optique.

Dans le cadre de cette thèse, le dispositif expérimental utilisé pour étudier le frottement solide est basé sur les propriétés de la résonance de la microbalance à cristal de quartz. La fréquence de résonance et le facteur de qualité de la microbalance sont modifiés lorsqu'un solide est mis en contact avec celle-ci. La fréquence donne des informations sur l'élasticité du contact tandis que le facteur de qualité nous renseigne sur les processus dissipatifs. Les caractéristiques principales de ce dispositif sont les amplitudes de sollicitation, de l'ordre du nanomètre, ainsi que la gamme de fréquence, située dans le domaine ultrasonore. Ces éléments sont expliqués en détail dans le chapitre 2, en même temps que les modèles nécessaires à l'exploitation des résultats.

Le chapitre 3 regroupe une série de résultats obtenus sur des interfaces de différentes natures, telles que des films de polymère vitreux, viscoélastiques ou encore des films moléculaires. Dans le cas des films moléculaires, la possibilité d'appliquer rigoureusement les modèles de mécanique du contact donne lieu à une évaluation quantitative des propriétés physiques des interfaces. Différents films moléculaires donnent lieu à des réponses frictionnelles clairement distinctes.

Le chapitre 4 met en lumière l'influence des vibrations mécaniques sur le dé-

TABLE DES MATIÈRES

clenchement du glissement macroscopique. Ce chapitre est à considérer dans le contexte des milieux granulaires, pour lesquels l'application d'une vibration mécanique extérieure a pour effet de diminuer l'angle de repos. L'origine de cet effet est encore mal comprise, en partie parce que le comportement des grains soumis à une vibration au niveau local reste peu étudié. Nous avons donc entrepris d'étudier le comportement inter-grain à l'aide d'un système modèle, composé de trois sphères disposées sur un plan incliné soumis à un cisaillement ultrasonore grâce au quartz.

Le quartz oscillant en régime non-linéaire permet d'appliquer des amplitudes de cisaillement suffisantes pour provoquer le glissement macroscopique. Ceci est à mettre en relation avec la nature hétérogène de l'état de la jonction interfaciale nanométrique soumise à une sollicitation ultrasonore et de haute amplitude. Une partie du contact est rendue fluide par les oscillations et ne participe plus à la force de friction macroscopique, ce qui facilite le mouvement global du système. Nous discutons ensuite des conséquences potentielles de ce mécanisme dans les milieux granulaires.

L'état d'un contact sphère plan soumis à une force oscillatoire étant bien décrit par la mécanique jusqu'à la force de friction seuil, nous avons étudié dans le chapitre 5 le régime où la force dépasse cette limite. Le système alterne alors entre des régimes de glissement partiel et de glissement total à des fréquences ultrasonores. La réponse obtenue est bien décrite par des cycles de Mindlin modifiés, aussi bien en dissipation qu'en élasticité. En outre, les très hautes amplitudes d'oscillation provoquent une fracture partielle du contact, interprétée à l'aide d'un modèle moléculaire.

La dernière partie du chapitre 5 est consacrée à la description de l'interaction entre les vibrations et le glissement stationnaire. Le système étudié comporte une interface constituée d'un film mince de polymère. Ces systèmes sont connus pour dissiper l'énergie frictionnelle selon deux sources distinctes, le désenchevêtrement de chaînes courtes et un terme de friction monomérique. La relation contrainte-vitesse est alors linéaire. A force constante, les vibrations ultrasonores provoquent une augmentation significative de la vitesse de glissement. Nous proposons une interprétation basée sur la compétition entre les mouvements diffusifs et ceux provoqués par les oscillations mécaniques.

Avant de présenter ces différents résultats, nous proposons dans le chapitre 1

TABLE DES MATIÈRES

une étude bibliographique sur les notions de physique de la friction et de mécanique du contact nécessaires à la lecture du manuscrit.

Chapitre 1

Le frottement solide

La friction ou frottement solide est un phénomène présent dans la vie de tous les jours. Par exemple le frottement des roues de train sur les rails, le grincement de la craie sur le tableau, etc, sont des illustrations de la friction solide - solide. Les premières expériences sur le frottement solide ont été réalisées par Léonard de Vinci au 16^{ième} siècle à l'aide de patin glissant sur un solide. Guillaume Amontons (1699) et Charles de Coulomb (1781) établirent les lois empiriques du frottement solide. De Vinci et Amontons ont remarqué la proportionnalité entre la force de frottement et la force normale s'exerçant sur le solide. Coulomb introduisit la notion d'adhésion pour expliquer le phénomène d'opposition au glissement. Les bases physiques de la friction solide ont été établies par Bowden et Tabor au milieu du 20^{ième} siècle.

Afin de limiter les effets du frottement solide dans les dispositifs comme les pièces mécaniques dans l'industrie automobile, des films de liquide sont déposés sur la surface des solides en contact : la lubrification. Pour certaines applications comme les dispositifs micro-électromécaniques, l'épaisseur des films lubrifiants déposés est de l'ordre du nanomètre.

Nous aborderons dans un premier temps les lois académiques de la friction puis nous traiterons de la théorie du contact élastique de Hertz ensuite une description de l'action d'une force tangentielle sur un contact élastique sera examinée à l'aide la théorie de Mindlin.

1.1 Loi d'Amontons - Coulomb

1.1.1 Phénoménologie

Une description empirique du frottement solide fut apportée par Amontons en 1699 et par Coulomb en 1781. Soit un patin posé sur une surface soumis à une charge normale et auquel est appliquée une force tangentielle F_T sur la surface de contact d'aire Σ_0 (voir figure 1.1). Le patin se met en mouvement quand la force appliquée F égale ou excède une valeur critique F_s . Lorsque le patin est en mouvement, la force F_d est nécessaire pour maintenir le glissement à vitesse constante. La force tangentielle F_s nécessaire pour provoquer un déplacement est proportionnelle à la charge normale N et est donnée par :

$$F_s = \mu_s N \quad (1.1)$$

où μ_s est un coefficient de proportionnalité appelé coefficient de frottement statique.

Les lois de la friction établies par Amontons et Coulomb ont les propriétés suivantes :

- La force de friction statique F_s dépend de la charge normale N ,
- le coefficient de friction statique ne dépend pas de l'aire de contact Σ_0 ,
- le coefficient de friction augmente logarithmiquement avec le temps d'attente.

1.1.2 Éléments de mécanique du contact

1.1.2.1 Bowden et Tabor

La première interprétation du frottement du solide par la prise en compte des propriétés physiques des matériaux en contact a été l'œuvre de Bowden et Tabor dans les années 50. Le modèle consiste à écrire la force de friction à partir d'une contrainte seuil σ_s :

$$F_s = \mu_s N = \sigma_s \Sigma_r \quad (1.2)$$

1.1 Loi d'Amontons - Coulomb

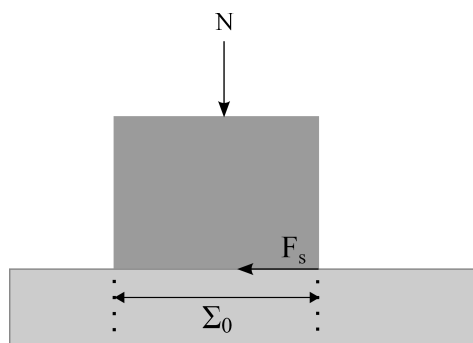


FIGURE 1.1 – Schéma du dispositif mis en place pour décrire les lois du frottement solide avec les forces normale N et de cisaillement F_s appliquées sur une surface Σ_0 .

où Σ_r est l'aire de contact réelle. En effet, les surfaces sont rugueuses (voir 1.1.2.3) et ne sont en contact qu'au niveau d'aspérités dont la taille est $\sim 10 \mu\text{m}$. Comme la force est répartie de manière uniforme sur les aspérités on peut écrire que à cette échelle, la pression est de l'ordre de $P \sim F_N/\Sigma_r$. De plus, les aspérités de l'ordre de la dizaine de microns sont déformées plastiquement et $P \sim H$ ou H est la dureté. On obtient finalement

$$F = \left(\frac{\sigma_s}{H} \right) N \quad (1.3)$$

Le rapport $\sigma_s/H \sim 0,1$ ne varie que très peu d'un métal à l'autre, ce qui explique l'ordre de grandeur du coefficient de friction des métaux. La nature même de σ_c est encore mal comprise et une grande partie de la physique du frottement solide est contenue dans cette équation.

Notons toutefois que la loi 1.2 est observée pour des matériaux ayant des propriétés mécaniques bien différentes des métaux, et pour lesquels l'hypothèse de déformation plastique n'est pas forcément vérifiée.

1.1.2.2 Théorie du contact élastique de Hertz

La déformation élastique d'une aspérité est traitée dans le cadre de la théorie du contact de Hertz [1]. Les hypothèses utilisées pour modéliser le contact sont les suivantes : les surfaces sont continues et non-conformes, les déformations sont

petites et le contact entre les deux solides est sans frottement.

Une sphère de rayon R , de module élastique de Young E en contact un plan est soumis à une charge normale N . La zone de contact entre les deux objets est un cercle de rayon a (voir figure 1.2). La relation reliant la contrainte exercée, le rayon de l'aire de contact et la charge normale s'écrit $p = N/a^2$. La déformation ϵ au niveau de l'aire de contact étant définie par $\epsilon = \delta/a$, où δ est l'enfoncement entre la sphère et le plan, alors la loi de Hooke s'écrit : $P \approx E\delta/a$. Dans l'hypothèse des petites déformations, l'aire de contact a^2 est reliée au rayon de la sphère R et l'enfoncement δ par : $a^2 \approx R\delta$. Le rayon de l'aire de contact se réécrit comme :

$$a \approx \left(\frac{NR}{E} \right)^{1/3} \quad (1.4)$$

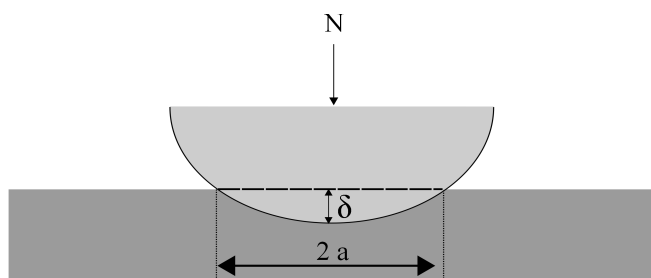


FIGURE 1.2 – Géométrie du contact de Hertz avec δ l'enfoncement et a le rayon de contact.

Un calcul rigoureux dans le cas de deux milieux élastiques de module de Young E_1 et E_2 , de coefficient de Poisson ν_1 et ν_2 , et de rayon de courbure R_1 et R_2 donne :

$$a^2 = \delta R^* \quad (1.5)$$

et

$$a = \left(\frac{3NR^*}{4E^*} \right)^{1/3} \quad (1.6)$$

avec le module élastique effectif E^* défini par $1/E^* = (1 - \nu_1^2)/E_1 + (1 - \nu_2^2)/E_2$ et $1/R^* = 1/R_1 + 1/R_2$.

1.1 Loi d'Amontons - Coulomb

1.1.2.3 Surfaces rugueuses : le modèle de Greenwood

Comme mentionné précédemment, les solides sont en contact *via* des aspérités de taille $\sim 10 \mu\text{m}$ (voir figure 1.3). Lorsqu'elles sont plastiques alors le modèle de Bowden/Tabor mène à un ordre de grandeur satisfaisant du coefficient de friction.

Lorsque les aspérités sont déformées élastiquement, la loi d'Amontons se retrouve à partir de la prise en compte de la géométrie de la surface. Seule une partie des aspérités est en contact car leurs hauteur ne sont pas uniformes, de distribution Φ . En décrivant la compression de chaque aspérité avec la loi de Hertz (1.6) on trouve que le nombre d'aspérités en contact ainsi que la surface réelle de contact est proportionnelle à la charge normale (ceci explique la loi de d'Amontons-Coulomb).

De façon surprenante, le rayon de contact moyen a_m ne dépend que du rayon de courbure des aspérités R et de l'écart type de la distribution s : $a_m \sim (Rs)^{1/2}$. Si les contacts sont plastiques on trouve $a_m \sim (2Rs)^{1/2}$ [2].

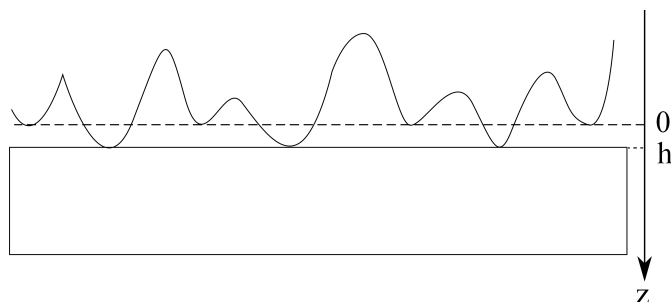


FIGURE 1.3 – Le contact entre une surface rugueuse et une surface lisse s'effectue par l'intermédiaire des aspérités où h représente la distance entre le plan inférieur et le plan dont la cote correspond à la moyenne de la hauteur des aspérités.

1.1.3 Vieillessement

Comme noté par Coulomb, le coefficient de friction évolue dans le temps. On distingue principalement trois mécanismes à l'origine de ce phénomène.

1.1.3.1 Fluage des aspérités

Pour décrire les observations expérimentales faites par Dieterich, Brechet et Estrin proposent de modéliser l'accroissement de l'aire d'un microcontact par un mécanisme de fluage thermiquement activé [3]. Soit deux solides rugueux en contact sous charge normale N . Les microcontacts sont formés par des paires d'aspérités en contact, et chacune d'entre elles se déforme plastiquement jusqu'à ce que la contrainte portée par les microcontacts soit en dessous de la limite élastique. Le nombre de microcontacts formés est donnée par l'expression $n_c = N / (a_0^2 \sigma_Y)$ avec a_0^2 l'aire initiale d'un microcontact et σ_Y la limite élastique. La loi constitutive du fluage d'un microcontact est donnée par :

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_0 \exp\left(\frac{\sigma}{S}\right) \quad (1.7)$$

avec $\dot{\epsilon}_0$ est un facteur dépendant de la température, S est la sensibilité à la vitesse de déformation plastique $\dot{\epsilon}$.

La déformation plastique des aspérités se produit à volume constant alors la variation de l'aire de contact d'un microcontact est donnée par :

$$a^2(t)h(t) = a_0^2 h_0 \quad (1.8)$$

avec $a(t)$ et $h(t)$ respectivement le rayon de contact et la hauteur de l'aspérité à l'instant t .

Le taux de variation de la hauteur des aspérités est donné par $\dot{h}/h_0 = -\dot{\epsilon}$. La charge normale exercée sur une aspérité est constante alors la contrainte agissant sur celle-ci est donnée par $\sigma(t) = \sigma_Y h(t)/h_0$ où $\sigma(t)$.

Donc la variation de l'aire de contact est donnée par l'expression suivante :

$$a^2 = a_0^2 \left[1 + m \ln \left(1 + \frac{t}{\tau} \right) \right] \quad (1.9)$$

où a_0^2 est l'aire de contact initiale, $m = S/\sigma_y$ et $\tau^{-1} = \dot{\epsilon} \exp^{1/m} 1/m$.

L'aire de contact croit logarithmiquement avec le temps t . Les paramètres S et $\dot{\epsilon}_0$ sont dépendants de la température. Le paramètre m est de l'ordre de 10^{-2} .

1.1 Loi d'Amontons - Coulomb

1.1.3.2 Effets de l'humidité sur le contact [4]

L'humidité modifie les propriétés physiques à travers la création de ponts capillaires au niveau du contact. Le nombre de ponts capillaires croit de manière logarithmique avec le temps et avec l'humidité relative définie par P_v/P_{sat} . Les ponts capillaires peuvent augmenter la force normale subie par l'intermédiaire de la force d'adhésion capillaire. De plus une étude récente montre numériquement et expérimentalement qu'un pont capillaire a une raideur latérale lorsqu'il est cisailé. Nous aborderons l'effet des ponts capillaires sur la charge normale à l'aide des modèles développés par le groupe de E. Charlaix puis nous examinerons le modèle de raideur latérale de Lambert.

La contribution des ponts capillaires à la charge normale

L'établissement d'un pont capillaire entre une sphère et une surface plane induit une force d'adhésion $F_{adh} = 2\pi\gamma b_0$ avec b_0 la taille d'un pont capillaire et γ la tension de surface du liquide. Pour déterminer la force d'adhésion totale créée par les ponts capillaires, il est nécessaire d'estimer le nombre de sites favorable à l'apparition des ponts, puis la fraction de ces sites remplis par ces ponts. Le nombre de ponts capillaires présents au niveau du contact est corrélé à l'humidité relative; plus l'humidité relative est grande et plus le nombre de ponts capillaires créés est grand. La fraction de ponts capillaires formés est estimée par l'expression $(k_B T / \rho \Delta \mu) (1 / \Lambda b_0^2) \ln(t_w / t_0)$ où ρ est la densité de la phase liquide, $\Delta \mu = k_B T \ln(P_{sat} / P_V)$ est la différence entre le potentiel chimique de la vapeur et le potentiel chimique de la vapeur saturante, et Λ une distance nanométrique. Le nombre de sites disponibles pour la nucléation des ponts est donné par la rugosité des matériaux en contact et estimé par l'expression $A_r / 4b_0^2$ avec A_r l'aire de contact réelle. Alors la force d'adhésion engendrée par les ponts capillaires est donnée par [4] :

$$F_{adh}(t_w) = \frac{k_B T}{\rho \Delta \mu} \frac{1}{\Lambda b_0^2} \ln\left(\frac{t_w}{t_0}\right) 2\pi\gamma b_0 \frac{A_r}{4b_0^2}. \quad (1.10)$$

L'équation 1.10 montre qu'après un temps attente t_w la force d'adhésion capillaire augmente. Ceci a pour conséquence d'augmenter la charge normale et donc d'augmenter la force de friction. Les ponts capillaires jouent un rôle indirect.

Au niveau du contact, la rugosité moyenne est évalué à 1 *nm* donc la taille d'un pont capillaire de rayon de courbure b est de l'ordre du nanomètre. L'aire de contact réelle entre la lentille de verre et la surface du résonateur est estimée avec le modèle de Hertz. La force d'adhésion s'ajoute à la force normale pour définir une force normale totale. La prise en compte de la force adhésion dans la force normale totale fournit un modèle de rayon de contact qui croit avec le temps. Le modèle de Hertz modifié donne :

$$a = \left(\frac{3PR}{4E^*} \right)^{1/3} \left[1 + \frac{F_{adh}(t_w)}{P} \right]^{1/3} \quad (1.11)$$

Une raideur latérale ?

Un pont capillaire formé entre une sphère et un plan répond élastiquement à l'application d'une déformation en cisaillement. L'estimation de la raideur latérale d'un pont capillaire fournit une relation « simple » impliquant les propriétés géométriques du pont et la tension de surface du liquide [5] :

$$k_{p.c} = \frac{\pi b_0 \gamma}{h} \quad (1.12)$$

avec γ la tension de surface liquide-gaz du fluide, b_0 le rayon et h la hauteur du pont capillaire.

1.1.3.3 Vieillessement structural

Le paragraphe précédent indique que l'interface peut vieillir par l'intermédiaire de ponts capillaires : augmentation de la force normale et/ou changement de ces propriétés physiques en cisaillement. Ce dernier point est observé de manière assez générale dans des conditions où la condensation capillaire est peu probable, par exemple avec des interfaces hydrophobes et à basse humidité. Le vieillissement est alors attribuable à l'évolution d'une couche interfaciale par l'intermédiaire de la grandeur physique σ_c intervenant dans l'équation 1.3.

Lorsque deux solides sont mis en contact les aspérités forment des microcontacts et à l'interface une couche interfaciale apparaît (voir figure 1.4). Cette couche interfaciale est composée de queues et de boucles de chaîne dans le cas de polymères ou de défauts et de molécules adsorbées dans de solides métalliques. Cette

1.1 Loi d'Amontons - Coulomb

couche interfaciale ou jonction adhésive est un milieu « solide » désordonné bi-dimensionnel hautement confiné. Lors d'un cisaillement, le jonction arbore deux

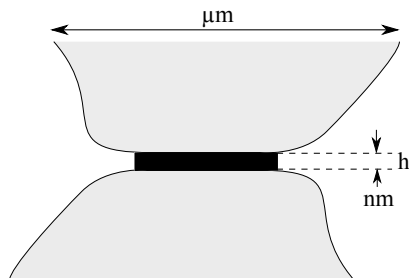


FIGURE 1.4 – Schéma d'une jonction adhésive (en noir) séparant deux aspérités (en gris).

réponses distinctes selon la contrainte cisailante appliquée. Lorsque la contrainte de cisaillement est inférieure à une contrainte σ_s la jonction est dans un état piégé : la couche interfaciale se déforme élastiquement. Au-delà de la contrainte seuil σ_s , la jonction est dans un état dépiégé : la couche interfaciale s'écoule plastiquement et a un comportement analogue à celui d'un fluide à seuil.

En effet, lorsqu'un solide en glissement est stoppé puis, après un temps d'attente t_w est remis en mouvement, le coefficient de friction statique augmente avec t_w (figure 1.5). Durant le glissement, la dynamique du film interfacial dépend principalement de la température et de la vitesse de glissement. Le film est "rajeuni" par le glissement. Lorsque le glissement est stoppé, la structure "vieillit" et tend à retrouver un état de plus basse énergie : c'est un processus lent. Plusieurs mécanismes moléculaires sont possibles en fonction du système étudié : désalignement des chaînes de polymère, ou vieillissement structural à la manière des verres [6, 7].

Bureau et al. ont mis en évidence le vieillissement structural pour une interface multicontact [8]. Un patin de PMMA (rugueux) est posé sur une piste en verre (lisse) formant une interface multicontact. Après un temps d'attente t_w suffisamment grand pour que l'aire de contact soit considérée comme constante, des expériences « de stop and go » ont révélées que le coefficient de friction croît logarithmiquement avec le temps t (telle que $t \ll t_w$). L'augmentation de la force seuil F_s est attribuée à un renforcement de l'interface *via* une augmentation de la limite élastique σ_s en cisaillement de l'interface.

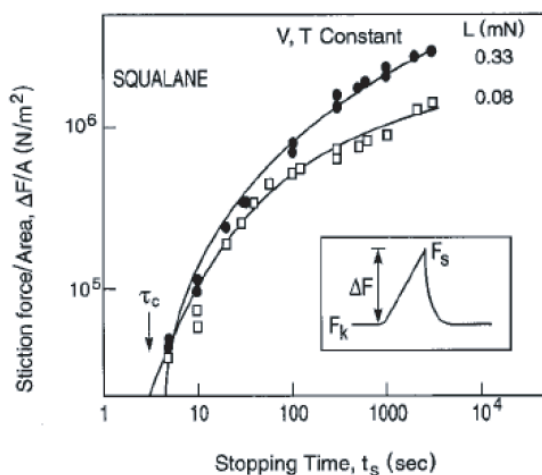


FIGURE 1.5 – Expérience de charge - décharge permettant de mettre en évidence le vieillissement structural. Dans cette figure, L représente la charge normale.

Différentes équipes, notamment celle de Isarelachvili, ont étudié les propriétés mécaniques et frictionnelles de films moléculaires avec des SFA modifiés. Elles ont montré qu'un fluide confiné dont l'épaisseur est $\lesssim 4$ épaisseurs moléculaires se comporte comme un solide et non comme un liquide. Les films confinés affichent une réponse élastique pour des contraintes tangentielles jusqu'à atteindre le seuil statique où se produit le glissement. Les expériences « de stop and go » réalisées avec les SFA modifiés ont montré que le seuil statique des films moléculaires augmente avec le temps d'attente t_w [9].

1.2 Le frottement dynamique : modèle de Rice et Ruina

Une fois le seuil de friction passé, la force nécessaire pour maintenir le glissement à une vitesse V est F_d et on écrit $F_d = \mu_d N$. Rice et Ruina ont proposé une équation phénoménologique pouvant décrire la majeure partie des résultats expérimentaux pour des interfaces multicontacts [10] :

$$\mu_d = \mu_0 + A \ln(V/V_0) + B \ln(\phi V_0/D_0) \quad (1.13)$$

1.3 Dynamique de la jonction

où μ_0 est le coefficient de friction à la vitesse V_0 , ϕ une variable d'état décrivant l'âge géométrique des microcontacts soumis au fluage thermiquement activé et D_0 une distance caractéristique. La variable ϕ vérifie

$$\dot{\phi} = 1 - V\phi/D_0. \quad (1.14)$$

Le troisième terme de l'équation 1.13 décrit la destruction des contacts, en compétition avec leur vieillissement. Le premier terme contient la physique du frottement solide et correspond à la rhéologie de la jonction.

1.3 Dynamique de la jonction

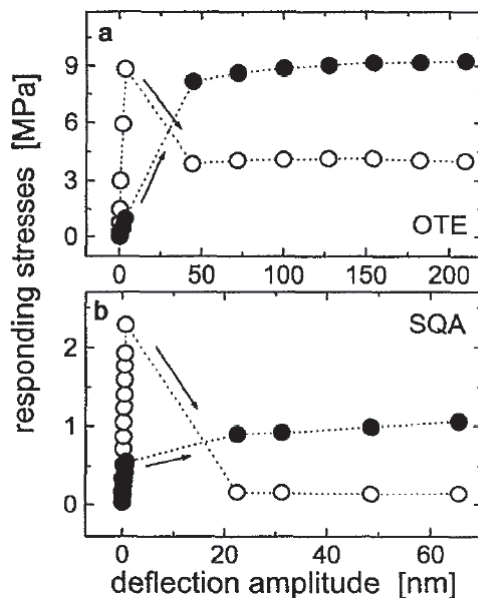


FIGURE 1.6 – Réponse d'une monocouche d'octadecyltroethoxy silane (OTE) et de squalane (SQA) à une déformation oscillatoire d'amplitude croissante [11]. Les points blancs représentent la réponse élastique et les points noirs la réponse dissipative.

Comme mentionné plus haut, l'interface entre deux solides est composée d'un film (ou jonction) pouvant être contrôlé par greffage chimique ou adsorption, dont la structure est modifiée par le glissement. Bien souvent la jonction est composée

de résidus provenant de l'atmosphère (eau, poussière etc.) ou issus du cisaillement en lui-même et de l'endommagement de la surface. La structure de la jonction est donc le plus souvent mal contrôlée et sûrement *amorphe*. Comprendre comment les propriétés viscoélastiques et élastoplastiques de cette couche amorphe sont liées à la nature des surfaces en contact est l'un des enjeux majeurs des études sur la friction. On note que cette couche est nanométrique, que l'on s'attend à des effets de confinement [12, 9], et que la description de la matière amorphe en masse sous cisaillement est elle-même un sujet de recherche en soi. Malgré tout, des lois phénoménologiques sont bien établies.

Le seuil de friction statique peut être décrit à un niveau microscopique en considérant la plasticité de la jonction. Reiter [11] a étudié la réponse de films d'épaisseurs nanométriques sous cisaillement oscillatoire à basse fréquence ($\sim 1-10$ Hz). A basse amplitude, la réponse est viscoélastique linéaire (figure 1.6). A plus haute amplitude, la composante élastique diminue soudainement et la composante visqueuse augmente. La jonction passe d'un état de solide à un état de liquide viscoélastique sous cisaillement. Persson [13] a décrit la transition solide-liquide sous cisaillement en utilisant le concept de température effective : au dessus du seuil statique, la jonction a une structure semblable à celle observée au-dessus du point de fusion.

Cette phénoménologie conduit naturellement à considérer la friction comme le déblocage (ou "unjamming") de la couche interfaciale [14], similaire à d'autres systèmes tels que les grains, mousses ou émulsions.

Briscoe a étudié sous cisaillement stationnaire la réponse de diverses mono- et multicouches de Langmuir-Blodgett [15] dans le cas d'un contact unique sphère-plan. Les mesures étant effectuées à des vitesses très faibles, elles sont indistinguables du seuil de friction statique. Deux tendances sont particulièrement importantes dans le cadre de ce manuscrit (figure 1.7). La relation

$$\sigma = \sigma_0 + \alpha P \tag{1.15}$$

entre la contrainte et la pression, ainsi que

$$\sigma = \sigma'_0 + \Theta \ln V/V_0 \tag{1.16}$$

1.3 Dynamique de la jonction

entre la contrainte et la vitesse.

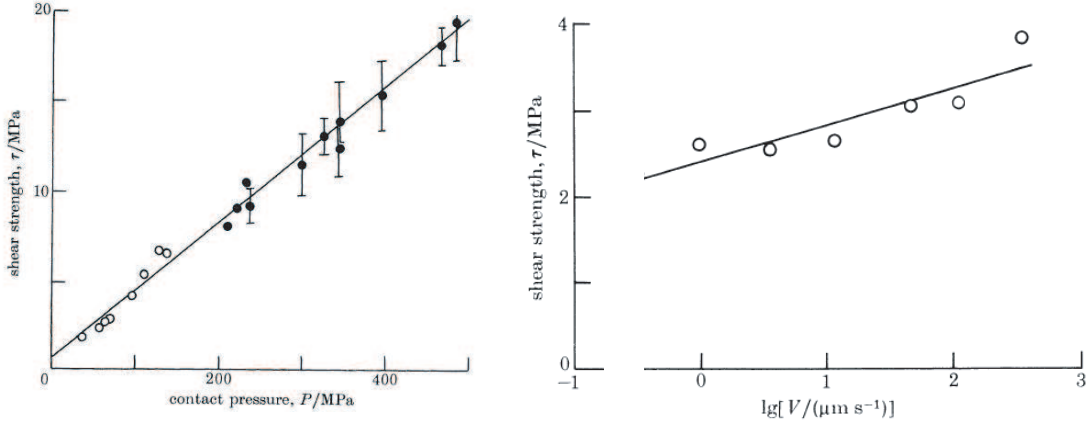


FIGURE 1.7 – Réponse d’une interface composée d’acides gras à une force de cisaillement stationnaire. Gauche : relation contrainte - pression. Droite : relation contrainte - vitesse [15].

Briscoe interprète ces résultats en supposant que la dynamique de la jonction peut être décrite par un mécanisme de sauts thermiquement activés, à la manière d’Eyring [16]. La forme générale d’un processus au cours duquel la matière se réarrange en surmontant des barrières de potentiel est

$$\nu \sim \nu_0 \times \exp(-E_0/kT) \quad (1.17)$$

ou ν_0 est une fréquence d’essai et E_0 est la hauteur de barrière. Lorsqu’une contrainte est appliquée, la barrière d’énergie est abaissée et les sauts sont favorisés dans les deux sens. On obtient :

$$\nu \sim \nu_0 \times \left[\exp\frac{-E_0 + \sigma v_{shear} - P v_{press}}{kT} - \exp\frac{-E_0 - \sigma v_{shear} - P v_{press}}{kT} \right] \quad (1.18)$$

où les volumes v_{shear} et v_{press} sont des volumes caractéristiques constants "sensibles" respectivement à la contrainte de cisaillement σ et à la pression P .

En approximant $\nu/\nu_0 \approx V/V_0$ et si σv_{shear} est grand alors on peut identifier les

paramètres de l'équation 1.15 tels que $\sigma_0 = (kT/v_{shear})\ln(V/V_0) + (E_a/v_{press})$ et $\alpha = v_{press}/v_{shear}$. Finalement, après inversion on obtient :

$$\sigma = \frac{E_0 + P\nu_{press}}{v_{shear}} + \frac{kT}{v_{shear}}\ln\frac{V}{V_0} \quad (1.19)$$

et on peut identifier σ'_0 et Θ de l'équation 1.16. A partir de ses mesures, Briscoe obtient une estimation des volumes caractéristiques $v_{shear} \approx v_{press} \approx 1 \text{ nm}^3$.

Baumberger [17] a adapté cette description au cas des interfaces multicontact, et a montré que le terme de $A \ln(V/V_0)$ donne une identité physique au terme en V/V_0 de la loi phénoménologique de Rice et Ruina. La majeure partie de la dissipation frictionnelle s'effectue dans une bande de cisaillement nanométrique.

1.4 La théorie de Mindlin

Comme déjà mentionné plus haut, les solides sont rugueux avec une rugosité de l'ordre d'une dizaine de microns. De ce fait, les solides en contact le sont par l'intermédiaire d'aspérités et représentent une multitude de microcontact "sphère-plan". Du fait de la géométrie, la contrainte tangentielle au voisinage de la ligne de contact diverge si aucun glissement ne se produit à cet endroit.

Soient deux sphères de rayon R en contact. Le contact entre ces sphères est décrit par le modèle de Hertz en absence de charge tangentielle. Pour décrire l'influence de la charge tangentielle sur le contact, des hypothèses ont été émises par Mindlin [18] :

- la loi de Coulomb est applicable à l'échelle locale,
- les charges normales et tangentielles sont découplées,
- il existe une partie du contact non glissante et une anneau glissant de largeur $a - c$ qui se propage du bord vers le centre du contact quand la charge tangentielle appliquée croît (voir fig 1.8).

Mindlin a établi une relation non-linéaire entre la force tangentielle et le déplacement des centres de masse suivante :

1.4 La théorie de Mindlin

$$u_T = \frac{3\mu N}{16G^*a} \left[1 - \left(1 - \frac{F_T}{\mu N} \right)^{2/3} \right] \quad (1.20)$$

avec μ le coefficient de friction, G^* le module de cisaillement effectif, u_T le déplacement latéral, a le rayon de l'aire de contact de Hertz et N la force normale exercée sur les sphères. L'équation 1.20 est représentée sur la figure 1.9 (courbe bleue). On voit que lorsque $F_T \geq \mu N$, le déplacement diverge (la raideur est nulle) et le système est en régime de glissement "total".

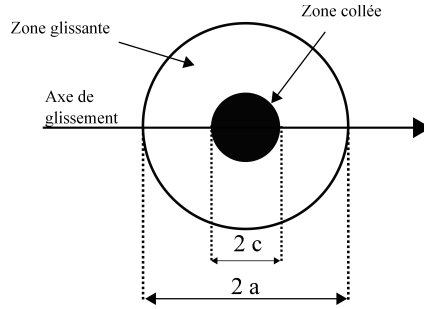


FIGURE 1.8 – Illustration des régions collées et glissantes dans la zone de contact entre une sphère et un plan vu de dessus.

Pour de petites charges tangentielles, la relation 1.20 s'approxime par :

$$u_T = \frac{F_T}{8G^*a} \quad (1.21)$$

Pour des déplacements tangentiels oscillatoires, l'anneau glissant se développe de manière symétrique et la forme de la courbe contrainte-déplacement est illustrée 1.8 (courbe rouge : retour et courbe verte : second aller). Alors l'expression du déplacement relatif pour une diminution de la charge tangentielle est donnée par :

$$u_{T\searrow} = \frac{3\mu N}{16G^*a} \left[2 \left(1 - \frac{F_{Tmax} - F_T}{2\mu N} \right)^{2/3} - \left(1 - \frac{F_T}{\mu N} \right)^{2/3} - 1 \right] \quad (1.22)$$

avec G^* le module de cisaillement équivalent, a l'aire de contact, N la charge normale, F_{max} la force tangentielle maximale appliquée, μ le coefficient de friction.

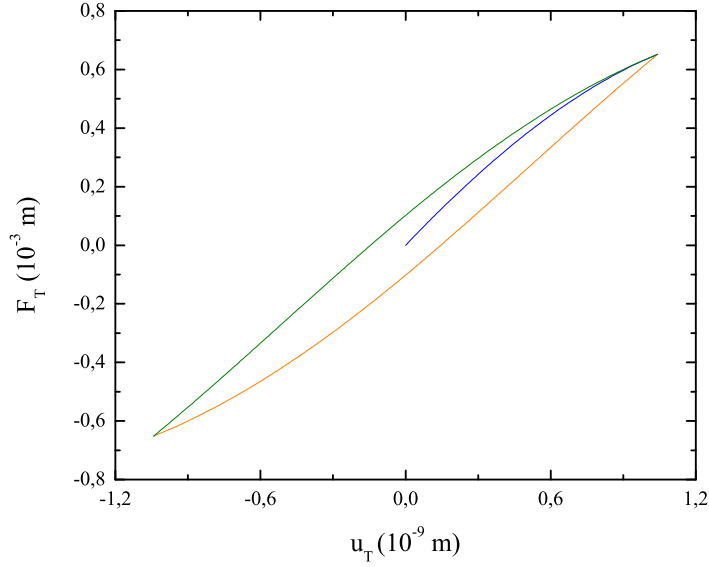


FIGURE 1.9 – Cycle de charge et décharge d'un contact sphère-plan. Les courbes rouge et verte représentent respectivement le déchargement et le second chargement du cycle.

Par symétrie quand la charge tangentielle augmente alors le déplacement relatif s'écrit $u_{T \nearrow}(F_T) = -u_{T \searrow}(-F_T)$.

L'énergie dissipée ΔW au cours d'un cycle de déplacement tangentiel ΔW est donnée par l'expression suivante :

$$\Delta W = \frac{9\mu^2 N^2}{10aG^*} \left[1 - \left(1 - \frac{F_{max}}{\mu N} \right)^{5/3} - \frac{5F_{max}}{6\mu N} \left\{ 1 - \left(1 - \frac{F_{max}}{\mu N} \right)^{3/2} \right\} \right] \quad (1.23)$$

avec G^* le module de cisaillement équivalent, a l'aire de contact, N la charge normale, F_{max} la force tangentielle maximale appliquée, μ le coefficient de friction.

Notons que l'approche de Mindlin a été récemment généralisée à une interface multicontact [7]. Avant le seuil de glissement, chaque aspérité développe, selon sa hauteur, un anneau glissant. Lorsque la plus haute aspérité est en glissement total, toute l'interface l'est aussi.

A noter que l'approche de Mindlin ne prend pas en compte l'adhésion. Pour de faibles charges normales ou dans le cas de matériaux mous (élastomères) la partie adhésive augmente l'aire de contact de manière significative (voir la partie 1.6).

1.5 Effet des vibrations sur la friction

La description de la dynamique frictionnelle ci-dessus par des lois "state and rate" prend en compte l'âge de l'interface ainsi que sa rhéologie. Une technique bien connue pour maîtriser la rhéologie interfaciale est d'ajouter un film, liquide ou solide, dont l'épaisseur et la structure sont contrôlées. Le contrôle de l'interface par greffage ou dépôt d'un film n'est cependant pas toujours désirable.

Un autre moyen pour limiter la friction est d'appliquer des vibrations externes au système, ce qui facilite notamment des procédés industriels tels que la découpe, le perçage, le tréfilage, ou le transport de matériaux granulaires. Récemment, le couplage entre les vibrations et la friction a suscité un regain d'intérêt dans le domaine des micro-technologies [19, 20], notamment dans le but d'améliorer le comportement des systèmes micro-électro-mécaniques. Enfin à des échelles géologiques, les contraintes exercées sur les failles sont sujettes à des fluctuations (marée terrestre, fluidisation acoustique [21]), ce qui pourrait avoir une influence sur le déclenchement des tremblements de terre.

Effet mécanique

Perfettini [22] et al. ont étudié l'effet de variation de charge normale sur la friction, en introduisant une faible perturbation de la charge normale sous la forme $\sigma = \sigma_0 + \sigma_1 \sin \omega t$ dans l'équation de Rice et Ruina. Le comportement obtenu est typique d'un système masse-ressort dissipatif sous oscillations forcées. De plus, les oscillations permettent de stabiliser le système vis-à-vis du stick slip.

Une analyse expérimentale complète a été réalisée récemment. Une modulation de charge normale [23] provoque une diminution des coefficients de friction statiques et dynamiques, et les effets sur le stick slip sont comparables à l'étude théorique de [22]. Cependant, les effets observés expérimentalement ne peuvent pas être pris en compte par un calcul de perturbation. Il faut des modulations de charge importantes pour observer un effet. Il faut prendre en compte l'élasticité interfaciale. En glissement stationnaire, la modulation de charge déforme *élastiquement* les microcontacts, ce qui entraîne une modification de la raideur interfaciale et donc le couplage avec la jonction.

Avec cette approche, la structure de la couche interfaciale n'est pas affectée de manière spécifique par les vibrations et la structure de la couche interfaciale dé-

pend principalement de la vitesse de glissement. En revanche, dans certaines zones de l'espace (fréquence, amplitude) les vibrations pourraient modifier la dynamique locale, avec des conséquences encore mal comprises.

Physique de la jonction [24]

Comme le montre la figure 1.10 a), un système frictionnel soumis à des vibrations

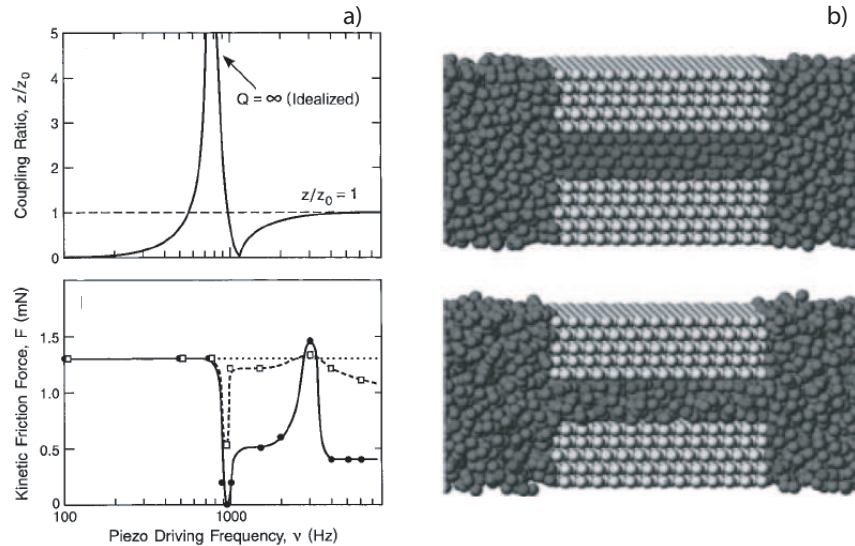


FIGURE 1.10 – a) Évolution de l'amplitude d'oscillation (en haut) et du coefficient de friction (en bas) en fonction de la fréquence d'oscillation [24]. b) Structure de l'interface sans vibrations (en haut) et avec vibrations (en bas) [25].

normales possède un spectre de réponse complexe. La résonance est observée pour une fréquence correspondant à la fréquence propre du ressort assurant la transmission de la vibration. A cette fréquence, le coefficient de friction est très faible. A des plus hautes fréquences, l'évolution du coefficient de friction est complexe et peut résulter d'autres couplages. Lorsque la fréquence des oscillations est proche de la résonance, l'amplitude de vibration est telle qu'elle modifie la structure interfaciale. D'autre part, cette fréquence de résonance est élevée et ne permet pas à la jonction de relaxer. L'effet de "fluidisation acoustique" est alors maximal.

Ces résultats sont interprétés en termes de dynamique moléculaire par des simulations [gao] (figure 1.10 b)). On voit que les vibrations augmentent le désordre structural de la jonction. Gao [gao] propose aussi de modifier l'équation d'évo-

1.6 Contacts élastiques adhésifs

lution de la variable d'état en y insérant un terme dépendant de l'accélération oscillatoire.

Notons toutefois que à faible charge normale, les effets adhésifs sont présents, ce qui n'est pas discuté.

1.6 Contacts élastiques adhésifs

1.6.1 Soumis à une force normale

Des observations expérimentales effectuées à faibles charges normales ont mis en évidence que l'aire de contact mesurée est beaucoup plus grande que celle prévue par la théorie de Hertz et l'aire de contact a une valeur non nulle pour une charge normale nulle. Pour des surfaces propres et sèches une forte adhésion est observée.

Les forces de surfaces attractives doivent être prises en comptes à faible charge normale. Un raisonnement énergétique [26] établi par Johnson, Kendall et Roberts (JKR) est utilisé pour déterminer l'expression analytique du rayon de contact a ; l'énergie totale du contact entre deux sphères élastiques doit être évaluée. L'énergie totale U_T du contact est la somme des contributions suivantes :

$$U_T = U_E + U_P + U_S \quad (1.24)$$

où U_E est l'énergie élastique, U_P est l'énergie potentielle et U_S énergie de surface, ce dernier terme décrivant l'adhésion. Les conditions d'équilibre mécanique $\frac{dU_T}{dN_1} > 0$ et de stabilité de l'équilibre $\frac{d^2U_T}{dN_1^2} > 0$ donnent :

$$a^3 = R/K \left(N_0 + 3\pi\gamma R + \sqrt{(3\pi\gamma R)^2 + 6\pi\gamma RN_0} \right) \quad (1.25)$$

avec N_0 est la charge normale appliquée, $K = 4E^*/3$, $E^{*-1} = [(1 - \nu_1^2)/E_1 + (1 - \nu_2^2)/E_2]^{-1}$ est le module d'Young équivalent, et γ la tension de surface.

L'analyse de JKR montre comment les forces dispersives contribuent au rayon de contact de deux sphères soumises à une charge normale. Des expériences plus récentes montrent qu'une charge tangentielle est aussi susceptible de modifier cette aire de contact adhésive. En effet, la ligne de contact peut être décrite comme un

élément de fracture et il faut introduire un terme "à la Mindlin" permettant de décrire le contact pour des charges tangentielles infinitésimales.

1.6.2 Soumis à une force tangentielle

Savkoo et Briggs ont décrit l'interaction de la charge tangentielle sur un contact adhésif [27] en utilisant le raisonnement thermodynamique pour décrire un contact élastique de deux sphères en contact JKR [26].

Soit deux sphères élastiques et adhésives en contact sous une charge normale N_0 , l'aire de contact formée par les forces d'adhésion est dans un état d'équilibre stable et l'énergie totale du contact $U_{T,JKR}$ est donnée par l'expression 1.24. La charge tangentielle provoque un déplacement u_T qui diminue l'énergie totale $U_{T,JKR}$ par la quantité $1/2 F_T u_T$: $U_T = U_{T,JKR} - 1/2 F_T u_T$.

Après minimisation de l'énergie on obtient :

$$N_1 = N_0 + 3\pi\gamma R + \sqrt{(3\pi\gamma R)^2 + 6\pi\gamma R N_0 - \frac{3KF_T}{16G^*}} \quad (1.26)$$

avec $G^{*-1} = [(1 - \nu_1)/G_1 + (1 - \nu_2)/G_2]^{-1}$ le module de cisaillement équivalent et F_T la charge tangentielle.

L'équation du rayon de contact en fonction de la charge normale et tangentielle s'écrit :

$$a^3 = R/K \left(N_0 + 3\pi\gamma R \sqrt{(3\pi\gamma R)^2 + 6\pi\gamma R N_0 - \frac{3KF_T}{16G^*}} \right) \quad (1.27)$$

Dans l'équation 1.27 l'expression sous la racine doit être supérieure ou égale à zéro pour avoir une solution réelle à l'équation du rayon de contact. Le contact entre les deux sphères est dans un état d'équilibre stable pour $F_T \leq F_{T0}$ avec la force critique

$$F_{T0} = 4/\sqrt{KG^{*-1}} \sqrt{2\pi\gamma R N_0 + 3\pi^2\gamma^2 R^2} \quad (1.28)$$

Au delà de la charge F_{T0} , le rayon de contact diminue pour atteindre le rayon de Hertz ($a^3 = RN_0/K$).

Chapitre 2

Dispositif expérimental

Le dispositif expérimental utilisé pour mener à bien nos expériences est basé sur le couplage mécanique, lors de leur mise en contact, entre un matériau piézo-électrique polarisé à l'aide d'un signal alternatif et une sonde. Les caractéristiques de la résonance permettent d'obtenir des informations sur l'élasticité et les processus dissipatifs dus à l'établissement du contact, pouvant être altéré ou non. Nous décrivons en premier lieu les aspects techniques liés au dispositif expérimental. En second lieu, on montre comment établir le lien entre les caractéristiques de la résonance et les éléments de mécanique du contact mentionnés au chapitre précédent.

2.1 Principe de fonctionnement

Le dispositif est composé d'un résonateur à cristal de quartz placé dans une cellule d'acquisition. La cellule d'acquisition est reliée à un analyseur de réseau pour acquisition du spectre de résonance permettant ainsi de déterminer la fréquence de résonance f et le facteur de qualité Q du quartz.

2.1.1 Piézoélectricité

Les matériaux piézoélectriques ont la particularité de présenter un couplage entre le champ élastique et le champ électrique. Ce couplage introduit des termes électriques dans le développement des équations de la dynamique et des termes

Formule chimique	Réseau de Bravais	Groupe	Structure Cristalline
SiO_2	Hexagonal	32	Trigonal

TABLE 2.1 – Les propriétés cristallines du quartz

élastiques dans le développement des équations de Maxwell. Nous présenterons les équations constitutives d'un solide piézoélectrique, puis nous appliquerons ce résultat sur le quartz et nous exposerons une application pratique de l'effet piézoélectrique [28].

Un solide piézoélectrique se polarise sous l'action d'une contrainte (effet direct) et se déforme sous l'action d'un champ électrique (effet inverse). La description des effets piézoélectriques implique le couplage entre la contrainte, la déformation, le champ électrique et la polarisation *via* les constantes piézoélectriques. La polarisation du cristal induit la déformation s'écrit $D = \epsilon E + e S$ où ϵ est la permittivité diélectrique, e la constante piézoélectrique, D l'induction électrique, E le champ électrique et S la déformation.

De même, la contrainte dans le cristal induite par le champ électrique s'écrit $T = cS - eE$ avec c la constante de rigidité. En généralisant les expressions ci-dessus à trois dimensions nous obtenons les équations décrivant la piézoélectricité.

Les équations constitutives de la piézoélectricité s'écrivent :

$$T_{jk} = -e_{ijk} E_i + c_{jklm}^E S_{lm} \quad (2.1)$$

et

$$D_i = \epsilon_{ij} E_j + e_{ijk} S_{jk} \quad (2.2)$$

avec S le tenseur des déformations, E le champ électrique, D le déplacement électrique, T_{jk} le tenseur des contraintes, c_{jklm}^E le tenseur des constantes de raideur et e_{ijk} le tenseur des constantes piézoélectriques de rang 3.

Le matériau piézoélectrique utilisé dans cette thèse est le quartz, solide cristallin de composition chimique SiO_2 dont les propriétés cristallines sont présentées dans le tableau 2.1.

Le contrôle de la déformation issue de l'induction électrique nécessite de couper le cristal selon une direction particulière par rapport aux axes principaux. La coupe

2.1 Principe de fonctionnement

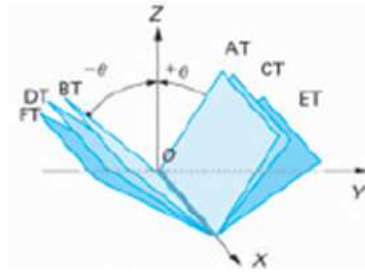


FIGURE 2.1 – Les différentes coupes pour un cristal de quartz.

"AT" consiste à couper le cristal d'un angle de $35^{\circ}15'$ par rapport au plan de symétrie (x,z) (figure 2.1). On obtient ainsi un mode de déformation de cisaillement, représenté figure 2.2 par une onde stationnaire telle que le déplacement

$$u_T = u_{T0} \cos(k_N y) e^{j\omega t} \quad (2.3)$$

avec $k_N = N\pi/h_q$. Pour le mode fondamental on a $k = \omega/V_s$ ou $V_s = (G_q/\rho_q)^{1/2} \approx 3.34 \times 10^5 \text{ cm/s}$ est la vitesse des ondes de cisaillement ($G_q = 2.95 \times 10^{10} \text{ Pa}$ et $\rho_q = 2.65 \text{ g/cm}^3$ sont le module de cisaillement et la densité du quartz). En prenant une épaisseur de $h_q = 330 \text{ }\mu\text{m}$ on trouve $f \sim 5 \text{ MHz}$, qui est la fréquence typique des quartz utilisés dans ce travail.

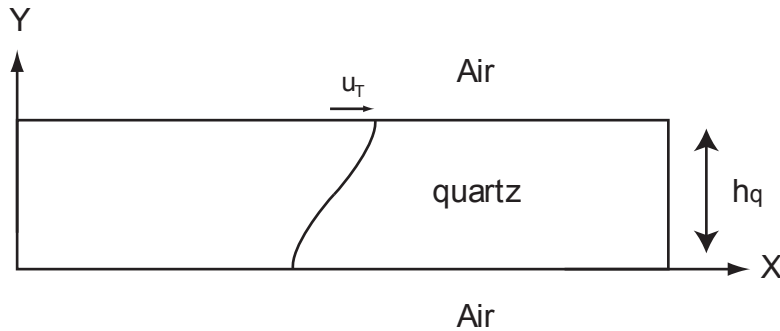


FIGURE 2.2 – Mode de vibration de la coupe "AT" pour la fréquence fondamentale.

L'amplitude de cisaillement est déterminée à partir de l'équation 2.1 page 28. La constante piezoélectrique du quartz dans ce mode de vibration est $d_{AT} = 3.1 \times 10^{-12} \text{ m/V}$ et $u_{T0} = Sh_q = d_{AT} E h_q = d_{AT} \Delta V$ avec le champ électrique $E = \Delta V/h_q$. Le

déplacement effectif dépend du facteur de qualité $u_{T0,eff} = Qu_{T0}$ [29]. Pour un facteur de qualité typique $Q \sim 50000$ on obtient $0.1 < u_{T0,eff} < 100$ nm pour une différence de potentiel $1 \times 10^{-3} < \Delta V < 1$ V accessible avec notre système.

Compte tenu des amplitudes de cisaillement, le résonateur peut être utilisé comme une sonde linéaire à basse amplitude de cisaillement, ou comme un "actuateur" aux plus hautes amplitudes.

2.1.2 La microbalance à cristal de quartz

Comme mentionné dans le chapitre précédent, la friction et l'adhésion sont souvent déterminés en partie par une jonction, que l'on peut contrôler par dépôt d'un film nanométrique. Nous avons procédé au dépôt de divers films minces et mesuré leur épaisseur en mode "balance à quartz", c'est à dire en mode "sonde" [28].

L'ajout d'une masse à la surface du quartz modifie la fréquence résonance selon le principe suivant. On définit respectivement l'énergie cinétique et l'énergie potentielle du pic pour la microbalance à quartz par :

$$U_k = \frac{\omega^2 u_{x0}^2}{2} \left(\rho_s + \frac{\rho_q h_s}{2} \right) \quad (2.4)$$

et

$$U_p = \frac{G_q k^2 u_{x0}^2 h_s}{4} \quad (2.5)$$

avec ω est la pulsation, u_{x0} le déplacement à la surface, ρ_q la masse volumique du quartz, ρ_s la masse par unité de surface du film déposé, h_s l'épaisseur du quartz. Ainsi le décalage de la fréquence de résonance Δf est relié à l'épaisseur du film h_f par :

$$\frac{\Delta f}{f_0} = -\frac{\rho_f h_f}{\rho_q h_s} \quad (2.6)$$

avec ρ_f la masse volumique et h_f l'épaisseur du film déposé. L'expression ci-dessus peut se récrire de la manière suivante :

$$\Delta f = -2f_0^2 \frac{\rho_f h_f}{\sqrt{G_q \rho_q}} \quad (2.7)$$

2.1 Principe de fonctionnement

avec G_q le module de cisaillement élastique du quartz. Par la mesure du décalage en fréquence du pic de résonance, la masse d'un film peut être déterminée avec une erreur de 2%. Le résonateur a été utilisée comme une microbalance à cristal de quartz pour déterminer l'épaisseur des films déposés.

2.1.3 Couplage entre l'oscillateur et une masse inertielle

Comme indiqué plus haut, l'ajout d'un film mince rigide sur la surface du quartz diminue la fréquence de résonance, provoquant un déplacement négatif (équation 2.7). Ceci est illustré sur la figure 2.3. Lors de l'ajout d'une masse iner-

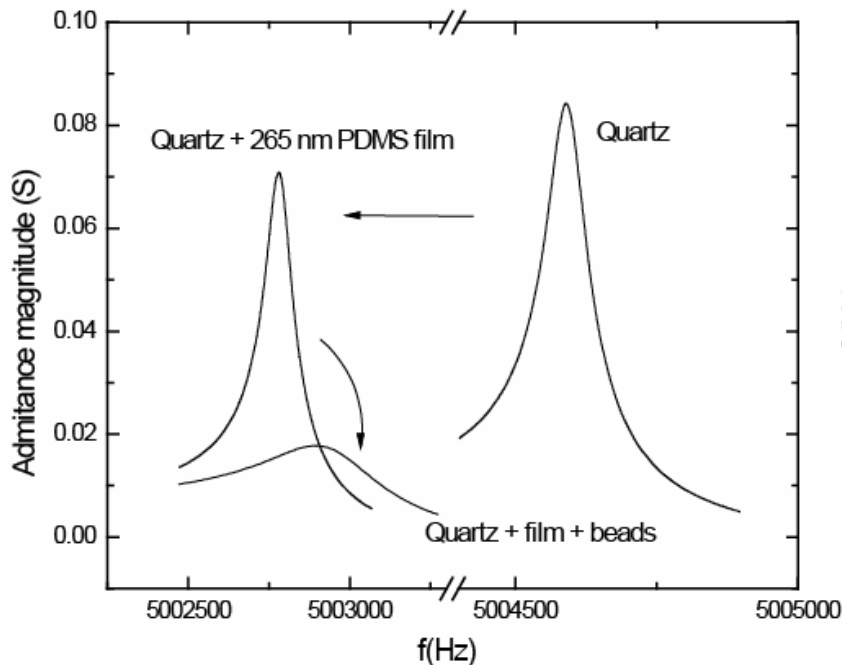


FIGURE 2.3 – Evolution de la fréquence de résonance du quartz en fonction de la perturbation. L'ajout d'un film rigide diminue la fréquence de résonance sans modifier la dissipation outre mesure. L'ajout d'une masse inertielle augmente la fréquence de résonance et modifie de manière la dissipation [30].

tielle, la fréquence de résonance augmente et l'amplitude du pic diminue fortement. Ceci est le reflet du couplage mécanique entre la surface du quartz et la masse inertielle, à l'origine d'une raideur et d'une dissipation en série avec le résonateur. Afin

d'obtenir des informations physiques sur le contact formé, il convient tout d'abord de déduire des mesures la raideur du contact.

2.2 Elasticité interfaciale

2.2.1 Ressorts couplés

Le modèle proposé par Dybwad [31] consiste à décrire l'interaction entre une masse inertielle et le résonateur à l'aide de deux oscillateurs couplés. Le résonateur est caractérisé par sa masse M et sa raideur K , et la masse inertielle par m (voir figure 2.4). L'établissement du contact se traduit par une raideur k , qu'il faut ajouter en série au ressort constitué par l'oscillateur. Le principe fondamental de

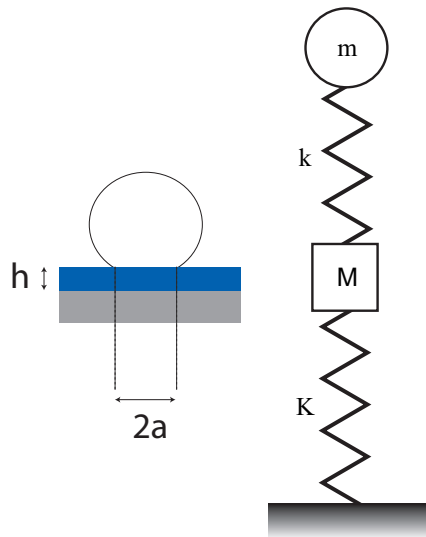


FIGURE 2.4 – A gauche : une bille sur substrat sur lequel a été déposé un film mince d'épaisseur h . A droite : analogie mécanique : le système {masse M -ressort K } représente le résonateur à quartz ; La bille ou lentille est représenté par la masse m et la raideur latérale du contact entre la bille et le film est représenté par le ressort k .

la dynamique permet d'obtenir deux équations du mouvement pour respectivement

2.2 Elasticité interfaciale

les masses M (résonateur) et m (la masse inertielle) :

$$\begin{cases} m \frac{d^2 x_A}{dt^2} = k [(x_{A0} - x_{B0}) - (x_A - x_B)] \\ M \frac{d^2 x_B}{dt^2} = -K(x_B - x_{B0}) + k [(x_{A0} - x_{B0}) - (x_A - x_B)] \end{cases} \quad (2.8)$$

Nous procédons à des changements de variables suivants :

$$\xi_1 = x_B - x_{B0}$$

et

$$\xi_2 = x_A - x_{A0}$$

alors le système d'équation 2.8 s'écrit :

$$\begin{cases} \frac{d^2 \xi_2}{dt^2} = -\frac{k}{m}(\xi_2 - \xi_1) \\ \frac{d^2 \xi_1}{dt^2} = -\frac{K}{M}\xi_1 - \frac{k}{M}(\xi_1 - \xi_2) \end{cases} \quad (2.9)$$

En posant $\xi_i = X_i \exp(i(\omega t + \phi))$ alors nous obtenons le système d'équation :

$$\begin{cases} -\frac{k}{m}X_1 + (\frac{k}{m} - \omega^2)X_2 = 0 \\ (\frac{k}{M} + \frac{K}{M} - \omega^2)X_1 + \frac{k}{M}X_2 = 0 \end{cases} \quad (2.10)$$

avec la pulsation propre ω du système.

La détermination de pulsation propre nécessite de calculer le déterminant de ce système et de l'annuler. On trouve que la pulsation propre s'écrit :

$$2\omega^2 = \left(\frac{K}{M} + \frac{k}{M} + \frac{k}{m}\right) \pm \sqrt{\left(\frac{K}{M} + \frac{k}{M} + \frac{k}{m}\right)^2 - 4\frac{K}{M}\frac{k}{m}} \quad (2.11)$$

L'un des deux modes propres ω^- correspond au mouvement en phase de la particule avec le résonateur où le résonateur permet de déterminer la masse déposée tandis que l'autre mode ω^+ correspond à un mouvement en opposition de phase de la particule par rapport au résonateur. Une approximation du premier ordre en

k du mode ω^+ fournit une relation entre ω^+ , K,M et k suivante :

$$k = 2 \Delta\omega^+ \sqrt{MK} \quad (2.12)$$

où $\Delta\omega^+ = \omega^+ - \omega_0$ et ω_0 la pulsation propre du résonateur.

2.2.2 Films minces

Lorsque la masse est posée sur une surface couverte d'un film, comment évalue-t-on les propriétés physiques du film mince? Pour répondre à cette question, il est nécessaire de poser les hypothèses suivantes :

- seule la partie du film en contact avec la masse est cisailée,
- le film est supposé se comporter comme un ressort élastique en négligeant les effets de bords,
- la déformation du substrat provoquée par le contact est donnée par la théorie de Mindlin.
- la contrainte appliquée est entièrement transmise au substrat, le film et le substrat se comportent comme des raideurs en série.

La raideur du film élastique est $k_f = \frac{\pi a^2 G'}{h}$ avec a le rayon de contact, h l'épaisseur du film et G' le module élastique en cisaillement du film. À l'aide de la théorie de Mindlin, la raideur du substrat est donnée par $k_s = 8G^*a$ où G^* est le module de élastique de cisaillement équivalent. La raideur du contact est la somme des contributions des deux raideurs k_f et k_s en série alors nous exprimons la raideur k_c comme :

$$\frac{1}{k_c} = \frac{1}{8G^*a} + \frac{h}{\pi a^2 G'} \quad (2.13)$$

Si la raideur du film est grande, on mesure l'élasticité des deux solides en contact. Dans le cas où la raideur latérale du film est petite par rapport à la raideur du substrat, la mesure de la raideur du contact donne accès au module élastique du film.

2.3 Dissipation

La dissipation est donnée par la variation du facteur de qualité après établissement du contact. L'obtention d'une relation pour la dissipation [30] se fait en évaluant deux quantités énergétiques : l'énergie dissipée par cycle d'oscillation E_{film} et l'énergie stockée par le résonateur E_{re} .

L'énergie dissipée par cycle E_{film} s'écrit $E_{film} = \pi(\omega^+\eta)(\pi a^2/h)u_T^2$ avec η la viscosité du film, h l'épaisseur du film, a le rayon de contact et u_T l'amplitude de cisaillement du résonateur. L'énergie stockée par le résonateur est donnée par l'expression suivante $E_{re} = (1/2)Ku_T^2$ avec K la raideur du quartz.

Le facteur de qualité Q est une quantité mesurable du résonateur, la dissipation due au contact entre la particule et le résonateur est caractérisée par l'inverse du facteur de qualité ΔQ^{-1} . Nous pouvons écrire l'inverse du facteur de qualité ΔQ^{-1} comme le rapport de l'énergie dissipée par le film E_{film} sur l'énergie stockée par le résonateur E_{re} :

$$\Delta Q^{-1} = \frac{\pi a^2}{hK}G'' \quad (2.14)$$

où G'' est le module de dissipation en cisaillement avec $G'' = \omega^+\eta$.

2.4 Préparation des films

Nous avons utilisé deux types de films au cours de cette étude, des films de thiol greffés ainsi que des films de polymère spin-coatés.

2.4.1 Couches de thiols

Les électrodes d'or des résonateurs que nous avons utilisés se prêtent idéalement au greffage de monocouches de thiol en raison de leur forte affinité avec les métaux (voir figure 2.5).

Le quartz est d'abord nettoyé avec un flux d'air comprimé, puis immergé quelques minutes dans une solution de 1/3 d'eau oxygénée et 2/3 d'acide sulfurique portée à 100°. Puis, le quartz est plongé pendant 24h dans une solution à 1 mmol/l de thiol dans l'éthanol. Les thiols utilisés sont de l'octadecanethiol

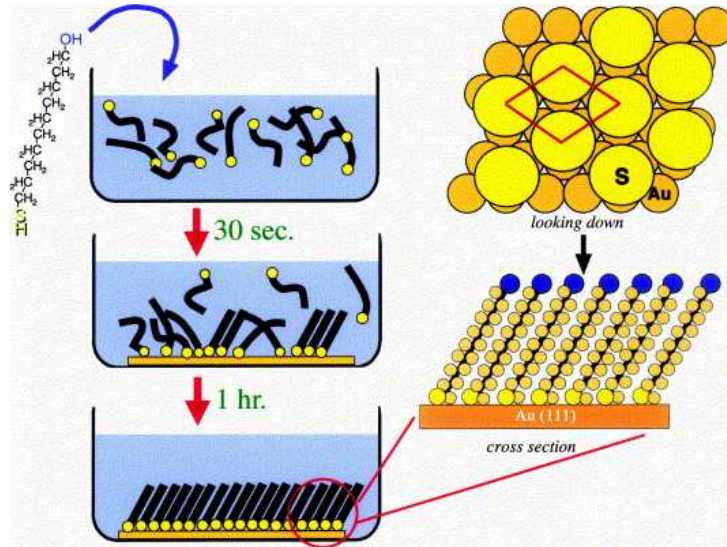


FIGURE 2.5 – Processus de dépôt des thiols et structure de la couche greffée. La structure résultante est dense [32].

$CH_3(CH_2)_{17}SH$ et mercapto-undecanoic acide $HS(CH_2)_{10}CO_2H$, ce qui permet d'obtenir différentes énergies de surface. La structure de couche greffée évolue rapidement et s'auto-organise en raison du caractère labile de la liaison $S - Au$, et au bout de 24h on obtient une monocouche dense représentée figure 2.5.

Ces monocouches ont l'avantage de ne pas se dégrader sous l'effet de pressions assez élevées et ou sous l'action de forces de friction .

2.4.2 Films de polymère

Les films de polymère sont préparés avec la technique de spin coating schématisée sur la figure 2.6. Une solution de polymère est préparée dans un bon solvant, puis déposée sur le substrat. Celui-ci est mis en rotation à des vitesses de 1000 à 4000 tours/min. La force centrifuge tend à expulser une partie du liquide, tandis que le solvant s'évapore, ce qui a augmente la viscosité. Lorsque les forces visqueuses sont supérieures à la force centrifuge l'écoulement est bloqué et on obtient un film d'épaisseur homogène. En fonction de la concentration de la solution et de la vitesse de rotation, on obtient des films de 10 à plusieurs centaines de

2.4 Préparation des films

nanomètres d'épaisseur, de manière assez reproductible.

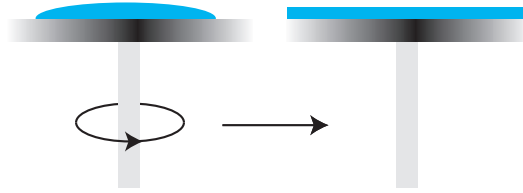


FIGURE 2.6 – Processus d'un film mince de polymère Après dépôt d'une goutte de solution (en bleu), le quartz est mis en rotation.

Emslie et al. ont décrit l'écoulement d'un liquide visqueux sur une surface circulaire soumis à une force centrifuge [33]. Ils émettent les hypothèses suivantes :

- le plan de rotation est horizontal donc il n'y a pas de composante radiale pour la gravité,
- la couche liquide est symétrique radialement et si fine que les différences d'énergie potentielle de pesanteur perpendiculaire à la surface sont négligeables par rapport aux effets de la force centrifuge,
- la viscosité est indépendante du taux de cisaillement : le liquide est Newtonien,
- la vitesse radiale est assez petite pour négliger les forces de Coriolis.
- le plan de rotation est infini,
- la couche de liquide est si fine que la résistance aux cisaillements est importante seulement dans le plan horizontal.

Les hypothèses énoncées précédemment permettent d'écrire et de simplifier l'équation de Navier-Stokes :

$$-\eta \frac{\partial^2 v}{\partial z^2} = \rho \omega^2 r \quad (2.15)$$

où η est la viscosité, ρ est la masse volumique du liquide, ω est la vitesse angulaire et v est la vitesse radiale du liquide.

Le profil des vitesses est obtenu à partir de l'équation 2.15 avec les conditions aux limites suivantes : la vitesse du liquide est nulle à la surface du disque et les forces de cisaillement sont nulles à la surface du liquide :

$$v = \frac{1}{\eta} \left(-\frac{1}{2}\rho\omega^2 r z^2 + \rho\omega^2 r h z \right) \quad (2.16)$$

avec h l'épaisseur de la couche liquide.

L'intégration du profil des vitesses dans la direction z et l'utilisation de l'équation de continuité donnent une équation différentielle de l'épaisseur h de la couche liquide en fonction du temps suivante :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -\frac{\rho\omega^2}{3\eta} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r^2 h^3). \quad (2.17)$$

L'équation 2.17 peut être réécrite sous la forme suivante suivante :

$$\frac{\partial h}{\partial t} = -2\frac{\rho\omega^2}{3\eta} h^3 - 3\frac{\rho\omega^2}{3\eta} r h^2 \frac{\partial h}{\partial r}. \quad (2.18)$$

En comparant l'équation 2.18 à la dérivée totale de l'épaisseur h , on obtient :

$$\frac{d h}{d t} = -2\frac{\rho\omega^2}{3\eta} h^3 \quad (2.19)$$

et

$$\frac{d r}{d t} = 3\frac{\rho\omega^2}{3\eta} r h^2. \quad (2.20)$$

La solution à l'équation 2.19 est donnée par :

$$h = \frac{h_0}{\left(1 + 4\frac{\rho\omega^2}{3\eta} h_0^2 t\right)^{1/2}}. \quad (2.21)$$

Les auteurs montrent que l'épaisseur finale h ne dépend pas de la longueur r de la couche de liquide ; par contre l'obtention d'un film liquide uniforme nécessite une distribution initiale de l'épaisseur h_0 uniforme avant spincoating.

2.5 Imagerie

Comme nous l'avons vu plus haut, les mesures de shift en fréquence et facteur de qualité dus à l'établissement d'un contact apportent des informations sur la raideur et la dissipation locale, dont l'interprétation directe nécessite toutefois de connaître la topologie du contact. Une partie des expériences présentées dans cette thèse a donc été réalisée en caractérisant la résonance du quartz de manière simultanée avec la visualisation du contact. Le dispositif optique utilisé est composé d'un système coaxial composé d'un objectif de microscope, d'une caméra et d'une source lumineuse.

Le contact est établi grâce à une sonde représentée figure 2.7. La sonde est composée d'une lame de verre circulaire (de diamètre 12 mm et d'épaisseur 1 mm) sur laquelle sont fixées trois lentilles identiques de diamètre 4 mm et de rayon de courbure $R = 3.1$ mm. Pour fixer les lentilles, on nettoie la lame de verre grâce à un plasma oxygène pendant 1 min, puis on dépose par spin-coating un film de polydiméthylsiloxane réticulable (Sylgard 184 Dow Corning). Le nettoyage plasma permet une bonne adhésion entre le film et la lame de verre. Avant que le film ne réticule, on place une pièce métallique perforée de trois orifices de même diamètre que la base des lentilles.

Enfin, on dépose les lentilles (BK7, Melles Griot) sur la plaque et on réticule le film pendant une heure à 100° . La sonde est ensuite plongée rapidement dans une solution acide bouillante afin d'éliminer les pollutions déposées pendant l'assemblage de la sonde. Après rinçage à l'eau et séchage sous gaz inerte, la sonde est laissée 24 h au repos afin de permettre aux liaisons Si-O de se reformer pour obtenir une surface de basse énergie.

Grâce à une pièce métallique calibrée, la sonde est placée sur le quartz de manière à ce que leur centres coïncident, ce qui permet d'assurer une bonne reproductibilité¹.

Le principe expérimental du dispositif est le suivant (voir figure 2.8) : une source lumineuse de type LED produit un faisceau de lumière blanche, ce faisceau passe par un filtre passe-bande de longueur d'onde $\lambda = 536$ nm produisant un faisceau

1. En effet, l'amplitude de vibration n'est pas constante sur toute la surface du quartz et diminue selon une gaussienne dont le maximum est au centre du quartz.

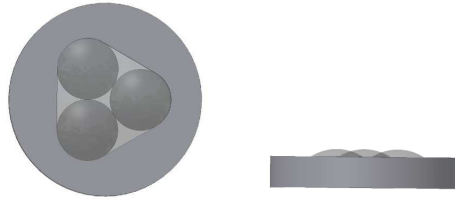


FIGURE 2.7 – Schéma de la sonde : vue de haut (à gauche) et de profil (à droite). On distingue les trois lentilles circulaires (gris foncé), la pièce métallique qui permet d’ajuster leur position (gris clair), ainsi que la lame de verre sous jacente (gris très clair). Le dimensionnement a été réalisé afin d’obtenir un centre de gravité le plus bas possible.

monochromatique; celui-ci atteint la lame séparatrice inclinée à 45° produit un faisceau se propageant à angle droit par rapport au faisceau initial puis atteint la sonde translucide; le faisceau est réfléchi sur la surface du substrat et récupéré grâce à une caméra CCD.

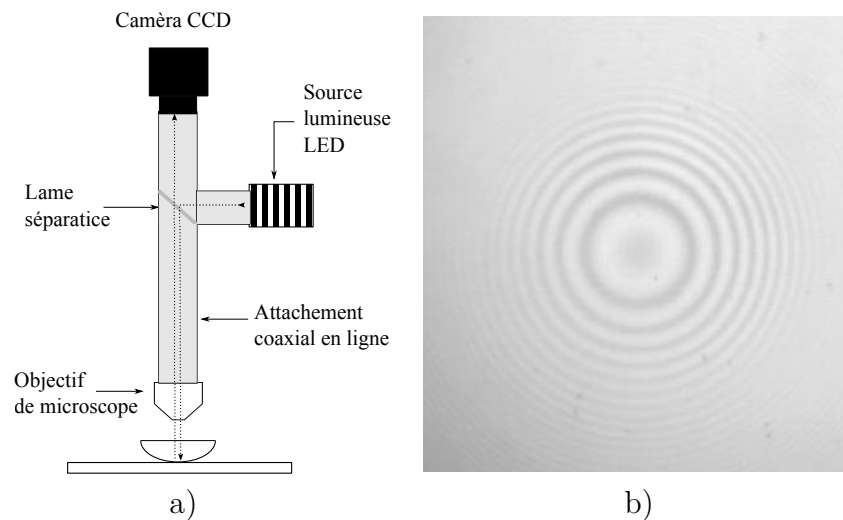


FIGURE 2.8 – a) Dispositif optique élaboré pour visualiser l’air de contact, b) Anneaux de Newton.

Les anneaux de Newton sont produits par le dispositif optique, la tache centrale sombre donne l’aire de contact et les autres anneaux (sombres et lumineux) permettent de déterminer le rayon de courbure de la sonde. Le rayon d’un anneau

2.6 Conclusions

sombre est donnée par : $x_k = \sqrt{k \lambda R}$ où R est le rayon de courbure de la lentille, λ la longueur d'onde de la source lumineuse et k l'ordre d'interférence.

À partir de cette relation, nous avons déterminé le rayon de courbure en mesurant les rayons des anneaux sombres pour $k = 1$ à 6 (voir figure 2.9). Le rayon de courbure de la lentille est estimé à $R = 3,1 \text{ mm} \pm 0,1 \text{ mm}$ correspondant à la courbure donnée par le fournisseur. La détermination précise de la courbure de la lentille avec cette méthode permet la comparaison rigoureuse entre l'aire de contact mesurée et celle estimée par le modèle de Hertz.

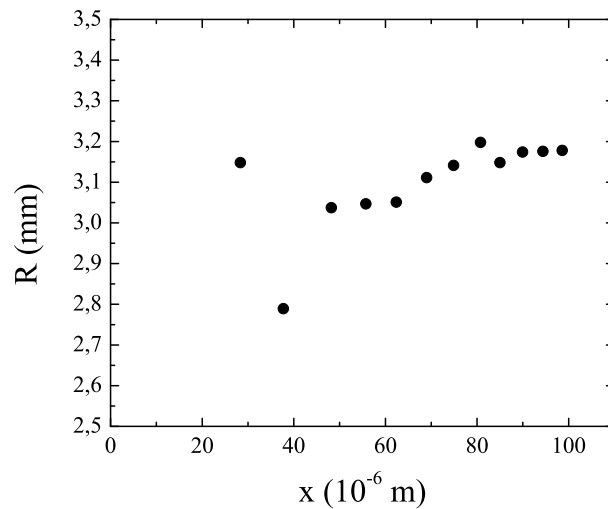


FIGURE 2.9 – Le rayon R de la lentille en fonction du rayon x des anneaux sombres et lumineux pour les ordre d'interférence $k = 0$ à $k = 6$.

2.6 Conclusions

Nous avons fonctionnalisé les interfaces en déposant soit des films minces de polymère par spincoating soit des monocouches de thiol par adsorption. Le déplacement du pic de résonance vers la gauche après dépôt permet de déterminer la masse déposée et d'évaluer ainsi l'épaisseur du film ou de la monocouche.

Lorsque nous effectuons le contact en déposant la sonde sur la surface du résonateur, la fréquence de résonance augmente et le facteur de qualité diminue. L'écart de fréquence Δf_R quantifie la raideur latérale du contact créée par le couple entre

la sonde et le résonateur dans le mode « opposition de phase ». L'inverse du facteur de qualité ΔQ^{-1} mesure l'énergie dissipée par le contact normalisée par l'énergie stockée par le résonateur.

Le profil de la lentille obtenu à partir de la figure d'interférence (les anneaux de Newton dans notre cas) corrobore avec les données fournies par le fabricant. L'aire de contact est évaluée par la tâche centrale de la figure d'interférence.

Les mesures acoustiques (Δf_R et ΔQ^{-1}) couplées aux mesures optiques donnent accès aux modules dynamiques de cisaillement G' et G'' pour les films minces de polymère. L'évaluation des modules G' et G'' pour différents épaisseurs peut mettre en lumière un effet de confinement dans les films de polymères à haute fréquence (~ 5 MHz).

Chapitre 3

Interfaces contrôlées nanométriques : propriétés mécaniques et vieillissement

Les propriétés de la matière confinée mettent en évidence des effets de taille bien connus. Par exemple, les études menées dans le groupe de S. Granick et J. Israelachvili montrent comment des liquides sous forme de films nanométriques ont en réalité des propriétés similaires à des solides viscoélastiques. Plus récemment, des études réalisées grâce à un microscope à force atomique suggèrent que l'eau à température ambiante et sous forme de gouttes nanométriques pourrait avoir des propriétés mécaniques similaires à de la glace. Enfin, la température de transition vitreuse de films minces de polymère diminue avec l'épaisseur [34].

Comme indiqué dans le chapitre 1, la majeure partie des processus dissipatifs dus au frottement proviennent d'une bande de cisaillement nanométrique à l'interface entre les deux solides. Il est alors légitime de se demander quelles sont les éventuelles conséquences des effets de confinement sur nos expériences, et quel est l'état des diverses interfaces utilisées. Le mode "sonde" du résonateur à des amplitudes de vibrations de l'ordre de l'angström est bien adapté.

3.1 Étude d'un film mince vitreux

3.1.1 Élaboration et dépôt des film de PMMA

La surface de l'électrode dorée du résonateur est nettoyée avec une solution de mélange piranha. La masse moléculaire du polyméthyl(métacrylate) (PMMA) est $M_w = 119\,000$ g/mol. Quatre films d'épaisseurs différentes ont été fabriqués. Une solution mère S_0 de PMMA a été réalisée avec une masse $m \simeq 0,14$ g de PMMA dans 10 mL de toluène, puis diluée selon des proportions renseignées dans le tableau 3.1, et spin-coatée à 2000 tours/min. Un quatrième film de PMMA d'épaisseur $h = 112$ nm a été obtenu à partir de la solution S_0 et une vitesse de rotation plus faible (1700 tours/min).

dilution	S_0	$\frac{S_0}{2}$	$\frac{S_0}{4}$
h (nm)	85	37	13

TABLE 3.1 – Dilutions réalisées à partir de la solution mère et épaisseurs correspondantes. Les épaisseurs ont été évaluées grâce au mode "balance à quartz, voir paragraphe 2.1.2 page 30.

3.1.2 Résultats et discussion

Quelle que soit l'épaisseur du film, la raideur mesurée k_c en régime linéaire reste constante entre $1,9$ et $2,1 \times 10^6$ N/m et la dissipation ΔQ^{-1} en régime linéaire des lentilles sur le film de PMMA demeure invariable (fig. 3.1).

Des tests à haute amplitude de cisaillement ont été réalisés afin d'analyser la réponse frictionnelle de ces films. Dans le graphe 3.2, nous traçons la différence $\Delta f_r - \Delta f_{r_0}$ et $\Delta Q^{-1} - \Delta Q_0^{-1}$ avec Δf_r , ΔQ^{-1} , Δf_{r_0} et ΔQ_0^{-1} qui sont respectivement le shift en fréquence instantané, le shift en dissipation instantané, le shift en fréquence à basse amplitude et le shift en dissipation à basse amplitude. La réponse est linéaire jusqu'à 1 nm, puis la fréquence de résonance diminue de ~ 30 Hertz $\sim 0,4 \times 10^6$ N.m⁻¹. Là non plus, à haute amplitude l'épaisseur n'a aucune influence sur les mesures.

3.1 Étude d'un film mince vitreux

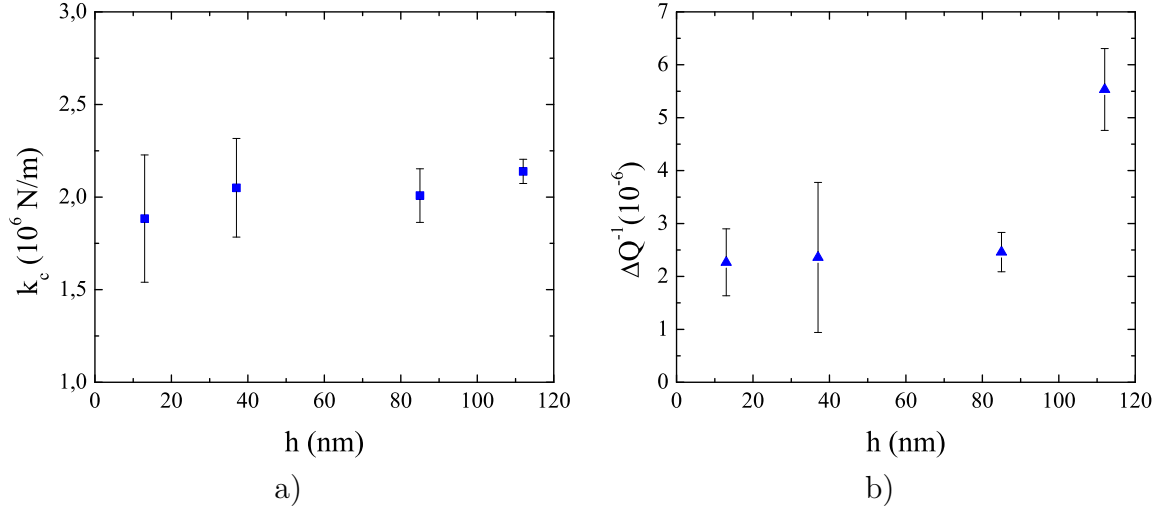


FIGURE 3.1 – Variation de a) k_c et b) ΔQ^{-1} en fonction de l'épaisseur h du film pour la sonde (3 contacts). Le système sondé est un film mince de polymère vitreux (PMMA, voir texte).

Le modèle de raideur latérale employé pour décrire les données expérimentales est donné en 2.2.2 page 34. La raideur latérale totale du contact k_c s'écrit :

$$k_c = \frac{k_s}{1 + \frac{k_s}{k_f}} = \frac{k_s}{1 + \frac{8G^*h}{\pi G'a}} \quad (3.1)$$

où $k_s = 8G^*a$ est la raideur du substrat et $k_f = \pi a^2 G'/h$ est la raideur du film avec G^* et G' qui sont respectivement le module de cisaillement équivalent du substrat et le module élastique de cisaillement du film. Avec $a \sim 10 \mu\text{m}$ (non affecté par la présence du film vitreux), $h \sim 50 \text{ nm}$, $G^* \sim 13 \text{ GPa}$, on obtient $8G^*h/\pi a \sim 10^8 \text{ Pa}$. Comme le module du PMMA est de l'ordre du GPa, on voit que la présence d'un film mince vitreux ne peut modifier la raideur mesurée de plus de 10%, ce qui est de l'ordre de la reproductibilité de nos mesures.

L'application du modèle de MindLin à ce système de film mince permet d'évaluer un coefficient de friction effectif, sous doute révélateur de la surface du film mince vitreux. La réponse élastique est modélisée par l'équation

$$k_T = k_{T0} (1 - F_T/6 \mu P) \quad (3.2)$$

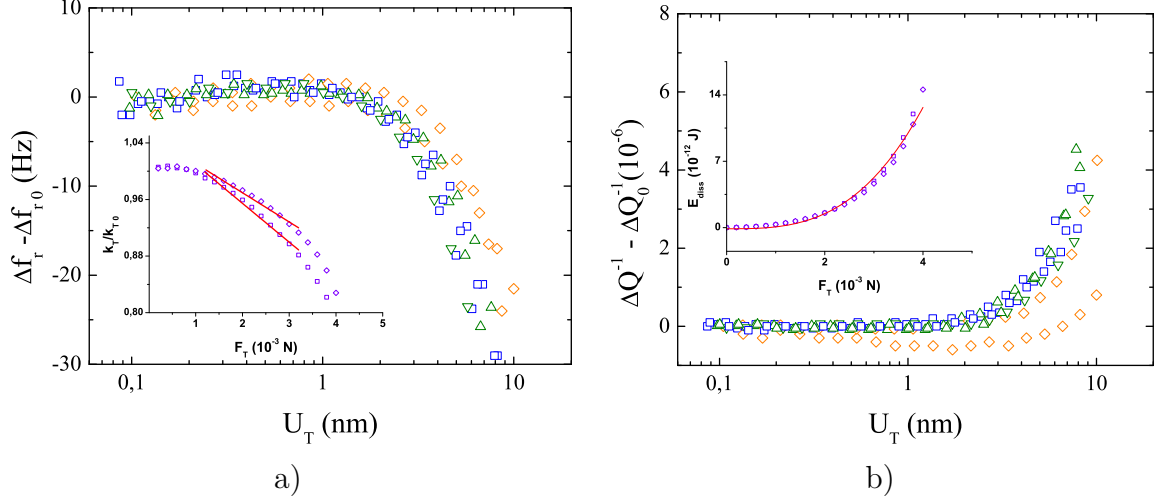


FIGURE 3.2 – Variation de a) $\Delta f_r - \Delta f_{r0}$ et b) $\Delta Q^{-1} - \Delta Q_0^{-1}$ en fonction de l'amplitude de cisaillement u_T pour différentes épaisseurs h de PMMA. Les points bleus, oranges et verts correspondent respectivement à $h = 112, 85$ et 37 nm. Les lignes correspondent à un ajustement des données expérimentales par l'équation 3.2 pour l'inset du graphe a) et par l'équation 3.3 pour l'inset du graphe b).

et donne un coefficient μ_s de $1,13 \pm 0,22$ indépendamment de l'épaisseur du film. La dissipation du contact est modélisé par l'équation

$$E_{diss} = (36G^*a\mu N)^{-1} F_T^3 \quad (3.3)$$

et le coefficient de friction μ_s évalué par ce modèle est de $0,32 \pm 0,02$ quelle que soit l'épaisseur. En revanche, l'analyse des données en régime non-linéaire permet de déduire le coefficient de friction μ_s en surface qui ne varie pas avec l'épaisseur.

Notre système de mesure présente donc des limites qu'il convient de préciser. Tout d'abord, le paramètre G^* n'est pas modifiable car il contient la réponse élastique du quartz combinée à celle de la sonde. Ensuite, la fréquence caractéristique de notre système correspond forcément la partie basse du spectre des temps de relaxation, avec des modules élevés. Dans la présente configuration, le quartz est particulièrement adapté à l'analyse de matériaux "mous" à température ambiante, typiquement avec un module de cisaillement $\lesssim 10^8$ Pa.

3.2 Etude d'un film solide viscoélastique

3.2.1 Protocole expérimental

De même que précédemment, le quartz est nettoyé par immersion dans de l'acide bouillant, puis spin coaté avec une solution de polyisobutylène (PIB, Acros organics, $M_w = 1,7 \cdot 10^6 \text{ g/mol}$) dans le toluène. Les solutions de PIB élaborées pour cette étude ont été réalisées avec une masse moléculaire de $M_w = 1,6 \cdot 10^6 \text{ g/mol}$. Pour réaliser les films, une solution mère A_0 de PIB a été réalisée avec une masse $m = 0,2209 \text{ g}$ de PIB dilué dans 10 mL de toluène ; cette solution mère A_0 donne un film de PIB d'épaisseur $h = 344 \text{ nm}$. Puis des dilutions de la solution A_0 ont été réalisées pour obtenir des films de PIB d'épaisseur plus faible.

Avant chaque mesure, la sonde est plongée dans de l'éthanol absolu pendant $\sim 5 \text{ min}$ puis rincée abondamment avec de l'eau distillée et séchée avec flux d'air sec. L'immersion dans l'éthanol permet de faire démouiller des résidus. Les lentilles sont inspectées au microscope optique. Si les lentilles ne sont pas propres alors nous effectuons un nettoyage « mécanique » avec du papier optique puis nous réitérons le protocole de nettoyage à l'éthanol jusqu'à obtenir une surface dénuée de résidus repérables au microscope optique avec un objectif $\times 10$.

Une fois la sonde déposée sur le film, la fréquence de résonance, le facteur de qualité ainsi que l'aire de contact évoluent dans le temps. Nous avons étudié ce régime à l'aide de faibles amplitudes d'oscillation. Au bout de $\sim 20 \text{ min}$ la réponse est stabilisée et nous caractérisons alors le film par des mesures à amplitude d'oscillation croissante.

3.2.2 Rayon de contact

Sans film, le rayon de contact entre les sphères composant la sonde et l'électrode d'or est $a \sim 9 \mu\text{m}$. Lorsqu'un film solide viscoélastique est intercalé, le rayon de contact croît (voir paragraphe suivant) de manière significative durant $\sim 20 \text{ min}$ pour atteindre $a \geq 20 \mu\text{m}$. Le rayon de contact mesuré dans cette configuration "film mince solide viscoélastique" est dominé par la conservation de volume impliquant la partie du film localisée à l'interface.

La figure 3.3 montre l'évolution du rayon de contact mesuré 20 min après

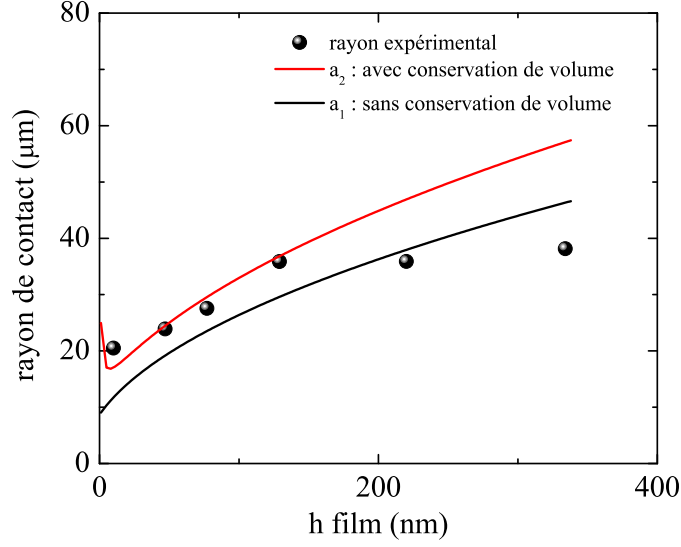


FIGURE 3.3 – Rayon de contact stabilisé en fonction de l'épaisseur du film initial. Les points expérimentaux sont en noir.

l'établissement du contact en fonction de l'épaisseur initiale du film.

Le volume de la calotte sphérique correspondant au volume déplacé est :

$$V_{cal} = \frac{\pi}{3}(h + \delta)^2(3R - h - \delta) \quad (3.4)$$

(voir figure 3.4) ou h est l'épaisseur du film. δ est l'enfoncement du au contact de Hertz, et est obtenu à partir de la mesure du rayon de contact sans film, $a_H \sim 9\mu m \sim (R\delta)^{1/2}$.

En première approximation, lorsque la sonde s'est enfoncée dans le film, le volume déplacé est supposé être redistribué dans un ruban de même épaisseur que le film initial, et dont le volume s'écrit

$$V_{cal} = \pi(a_2^2 - a_1^2)h \quad (3.5)$$

où a_2 est le rayon obtenu après redistribution du volume expulsé et $a_1 \sim 2R(\delta + h)$ est le rayon de contact géométrique sans conservation de volume. On voit figure 3.3 un calcul numérique de a_1 et a_2 avec h l'épaisseur du film et δ l'enfoncement de Hertz. L'approximation de conservation de volume n'est pas appropriée pour les

3.2 Etude d'un film solide viscoélastique

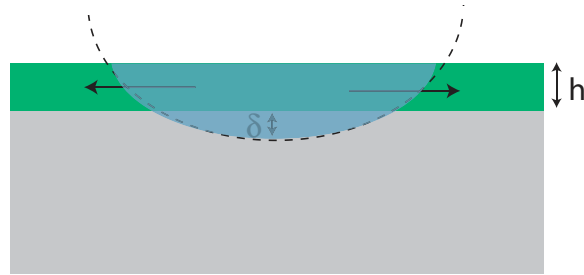


FIGURE 3.4 – Contact sphère plan avec un film. Le contour de la sphère est en pointillé, le film en vert et le substrat en gris. Le film est expulsé et un volume équivalent à une calotte sphérique (partie gris clair) est redistribué, ce qui augmente l'aire de contact apparente.

épaisseurs de l'ordre du nanomètre, car cela résulte en un ruban de largeur infinie. En revanche pour $h \geq 10$ nm la largeur du contact est assez bien prise en compte par la conservation de volume.

On peut donc supposer que pour des épaisseurs de film $10 < h \leq 100$ nm, le rayon de contact se stabilise lorsque les sphères sont en contact avec le quartz et qu'une bonne partie du film s'est écoulé par "squeeze flow". C'est sur cette base que nous formulerons des hypothèses sur la forme de l'interface afin de calculer les modules dynamiques du film à partir des mesures de raideur et de dissipation. Pour $h \geq 100$ nm, le rayon de contact se stabilise à une valeur non triviale, lorsque la contrainte normale exercée est trop faible et provoque une cinétique de "squeeze flow" négligeable.

3.2.3 "Squeeze flow"

Au cours des premiers instants après établissement du contact, l'aire de contact augmente en raison de l'expulsion progressive du polymère viscoélastique en dehors du contact. La dynamique de ce processus permet d'estimer la viscosité extensionnelle du polymère [35].

Compte tenu de son haut poids moléculaire, la longueur de glissement du PIB (voir partie sur le glissement) est beaucoup plus grande que l'épaisseur du film, et on admet que le "squeeze flow" s'effectue avec la condition de glissement (total) à

la paroi. La déformation de Hencky dans la direction verticale s'écrit

$$\epsilon = \ln(h_i/h_0) \quad (3.6)$$

ou h_i est l'épaisseur instantanée. La vitesse de cisaillement est donc $\dot{\epsilon} = \dot{h}_i/h_i$ et la vitesse de cisaillement radiale est $\dot{\epsilon}_r = -\frac{1}{2}\dot{\epsilon}$. La contrainte de cisaillement donnée par

$$\sigma_i = F_N/\pi a_i^2 \quad (3.7)$$

où F_N est la force normale due au poids de la sonde et a_i rayon de contact instantané, est reliée à la vitesse de cisaillement par la loi de Newton $\sigma = \frac{1}{2}\eta_e\dot{\epsilon}_r$ ou η_e est la viscosité élongationnelle $\sim 6\eta$. Il faut donc pouvoir obtenir une estimation de la vitesse de diminution de l'épaisseur à partir de la mesure du rayon de contact. Pour

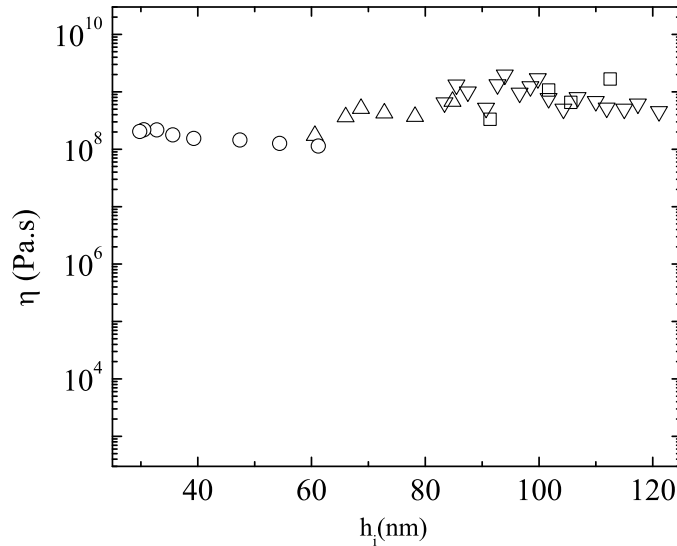


FIGURE 3.5 – Viscosité du PIB en fonction de l'épaisseur instantanée $h_i(t)$ au cours du squeeze flow. La charge normale est $N = 3.6 \times 10^{-3}$ N et l'épaisseur initiale est de 220 nm.

estimer l'épaisseur cisailée, nous appliquons le même type de raisonnement qu'au paragraphe précédent. En effet, l'enfoncement provoque l'expulsion d'un volume de matière tel qu'il diminue l'épaisseur cisailée apparente. Avant que le contact solide-solide ne soit établi, l'enfoncement δ' donne lieu à un volume déplacé V_d

3.2 Etude d'un film solide viscoélastique

exprimé par

$$V_d = \frac{\pi}{3} \delta'^2 (3R - \delta'). \quad (3.8)$$

De même que précédemment, ce volume est redistribué selon un ruban de même épaisseur tel que

$$\pi(a_2^2 - 2R\delta')h = V_d. \quad (3.9)$$

La mesure de $a_{2,i}$ permet, pour une épaisseur initiale donnée, de déterminer numériquement δ' et donc l'épaisseur cisailée $h_i = h - \delta'$.

On voit figure 3.5 que les valeurs obtenues sont telles que $\eta \sim 10^8 - 10^9$ Pa.s. Un ordre de grandeur pour viscosité des fondus est $\eta \sim \eta_0 \frac{N^3}{N_e^2}$ où $N \sim 1000$ et $N_e \sim 10$ sont le nombre de monomères de la chaîne et le nombre de monomères entre enchevêtrements et $\eta_0 \sim \zeta/b$ est la viscosité d'un fluide composé de monomères ($\zeta = 4.5 \times 10^{-8}$ N.s.m⁻¹ est le coefficient de friction hydrodynamique et $b \sim 1$ nm est la taille d'un monomère). On obtient $\eta \sim 5 \times 10^8$, en accord avec les résultats de la figure 3.5 et d'autres mesures expérimentales sur le même système [36].

En résumé, la formation du contact s'effectue par "squeeze flow" au cours duquel la viscosité élongationnelle domine la dissipation. Si l'épaisseur initiale du film est en dessous de 100 nm, le contact entre les sphères et la surface du quartz est très rapide et le rayon de contact est dominé par la conservation de volume.

3.2.4 Modules dynamiques

Au cours des expériences de "squeeze flow" décrites précédemment, nous avons mesuré la raideur et la dissipation du contact par l'intermédiaire des shifts en fréquence et facteur de qualité. Pour obtenir les forces élastiques on tient compte de l'épaisseur locale entre les lentilles et le quartz, en prenant les mêmes valeurs que précédemment dans le cas du calcul de la viscosité.

La contrainte élastique de cisaillement est :

$$\sigma(r) = G' \frac{U_d}{e_m + \frac{r^2}{2R}} \quad (3.10)$$

où e_m est l'épaisseur minimale et r la coordonnée axiale. En admettant que G' ne

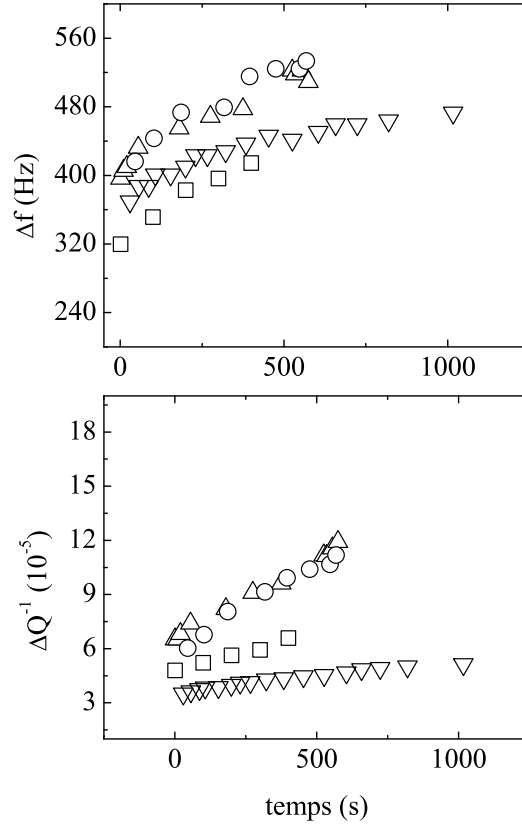


FIGURE 3.6 – Shift en fréquence et en dissipation au cours du squeeze flow. Les légendes et conditions de mesures sont les mêmes qu’en figure 3.5.

varierait que peu sur l’épaisseur¹. On en déduit la force :

$$F_{elas} = G'U_d \int_0^a 2\pi r \sigma(r) dr = G'U_d \times 2\pi R \ln\left(1 + \frac{a^2}{2Re_m}\right). \quad (3.11)$$

Or la force correspond aussi à

$$F_{elas} = kU_d \quad (3.12)$$

où k est mesuré expérimentalement. En égalisant les équations 3.11 et 3.12 on peut obtenir le module dynamique G' .

1. On fait ici allusion aux effets de confinement caractéristiques des films minces. Pour rencontrer de tels effets il faut des épaisseurs plus faibles que celles que nous considérons ici.

3.2 Etude d'un film solide viscoélastique

En intégrant la contrainte visqueuse on obtient de la même manière

$$F_{vis} = 2\pi R\eta v \ln\left(1 + \frac{a^2}{2Re_m}\right) \quad (3.13)$$

Où $v = U_d\omega$ est la vitesse de déplacement (ω est la fréquence d'oscillation). Or la puissance dissipée est $P_{vis} \sim F_{vis}v$ ce qui permet de calculer l'énergie dissipée par cycle $\Delta E \approx P_{vis} \frac{\pi}{\omega}$ et donc le facteur de qualité $\Delta Q^{-1} = \frac{1}{2\pi} \frac{\Delta E}{E_{elas,q}}$ où $E_{elas,q} = 1/2Ku_T^2$ est l'énergie stockée par le quartz. Finalement,

$$G'' = \frac{K\Delta Q^{-1}}{2\pi R \ln\left(1 + \frac{a^2}{2Re_m}\right)} \quad (3.14)$$

où \ln est la même fonction logarithmique que dans l'équation 3.13.

La dissipation engendrée par le PIB est très importante et est typiquement au moins 10 fois supérieure à ce qui est observé sans film. On admettra donc que la majeure partie de la dissipation est due au film.

Pour l'élasticité il faut prendre en compte le fait que la raideur mesurée est parallèle avec la raideur due au substrat de même qu'en 3.1.2.

$$k_c = \frac{k_s}{1 + \frac{k_s}{k_f}} \quad (3.15)$$

où $k_s = 8G^*a$ la raideur du substrat et k_f la raideur du film, avec G^* . A l'aide d'expériences séparées nous avons déterminé un rayon de contact sans film $a \sim 9 \mu\text{m}$ et un module $G^* \sim 13 \text{ GPa}$. Pour chaque acquisition, on calcule la raideur due au cisaillement du film grâce à l'équation 3.15 et on remonte au module élastique de cisaillement $G' = k/2\pi R \ln\left(1 + \frac{a^2}{2Re_m}\right)$.

Les valeurs des modules obtenus sont représentés figure 3.7. On voit que les valeurs sont compatibles avec la littérature à la fréquence d'oscillation $\omega = 3,3 \times 10^7 \text{ rad.s}^{-1}$. Étant données les approximations effectuées pour calculer l'épaisseur, pour laquelle nous n'avons pas de mesure directe, ainsi que pour la forme du volume de matériau cisailé², nous concluons que nos résultats ne mettent pas en évidence d'effet de confinement.

2. Il est possible qu'il y ait formation d'un bourrelet, que nous ne prenons pas en compte car son profil n'est pas connu.

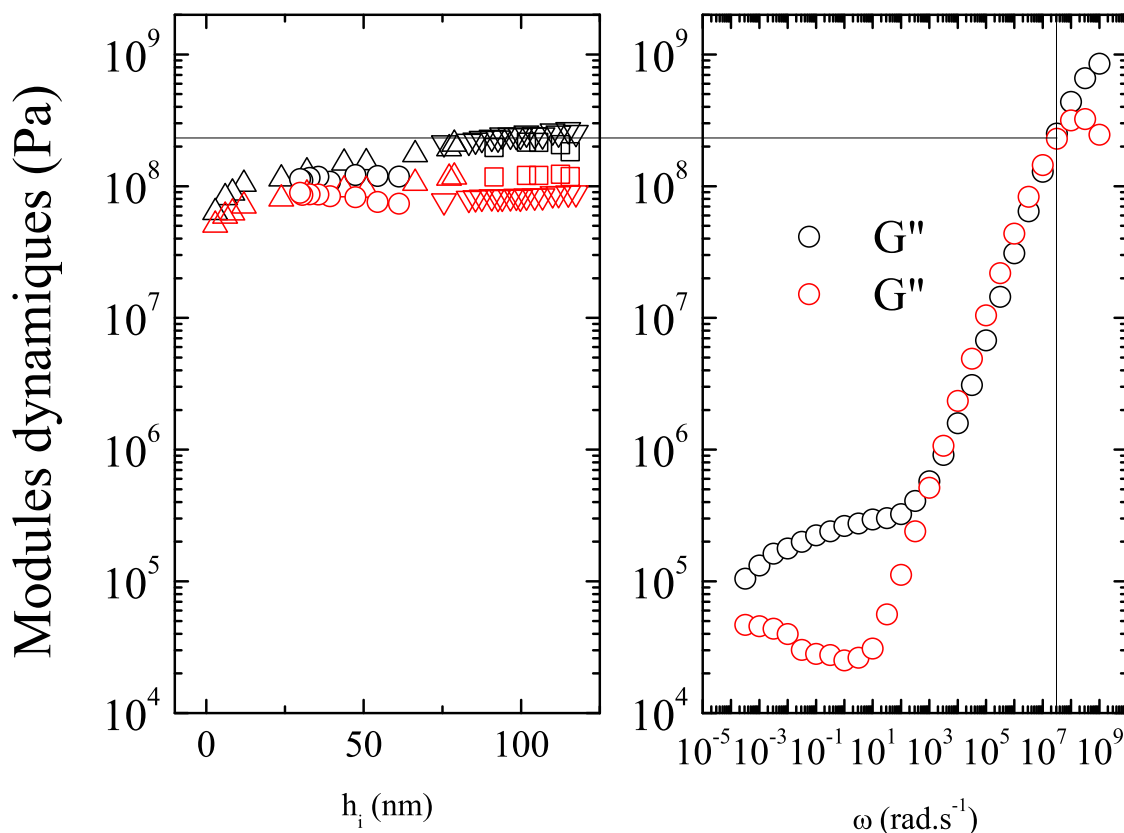


FIGURE 3.7 – Modules dynamiques du polyisobutylene. A gauche : mesures issues des shifts en fréquence et en dissipation en fonction de l'épaisseur cisailée. A droite, données issues de [37] en fonction de la fréquence à température ambiante.

Pourtant, à la fréquence d'oscillation, notre mesure sonde une dynamique correspondant à la relaxation α du PIB, c'est à dire la zone de transition vitreuse. Ceci est illustré figure 3.8. Or le rayon de giration du polyisobutylene est $R_g \approx \frac{bN^{1/2}}{6} = 50$ nm, c'est à dire du même ordre de grandeur que les épaisseurs durant le "squeeze flow".

C'est justement dans cette configuration que les effets de taille sur la transition vitreuse sont observés [39]. Une différence importante est que les effets de confinement sont les plus notables dans des systèmes vitreux à température ambiante. Mais lors de leur préparation par spin-coating, ces systèmes sont dans un état assez loin de l'équilibre. En raison de leur nature vitreuse tout d'abord, mais aussi en

3.2 Etude d'un film solide viscoélastique

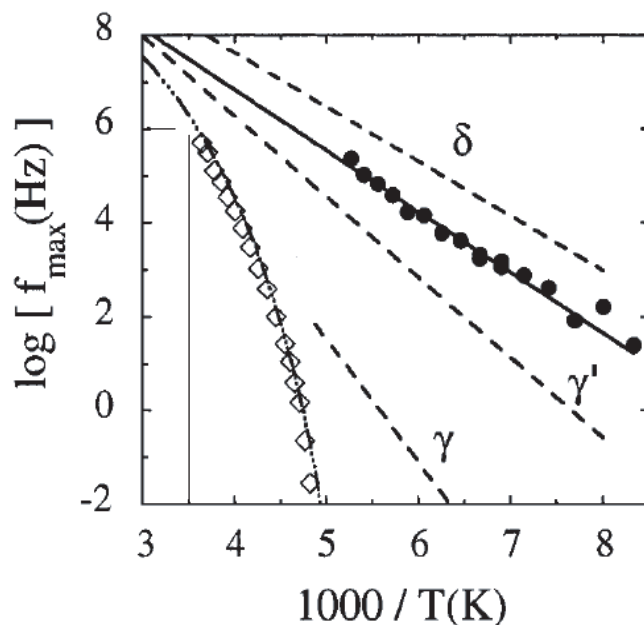


FIGURE 3.8 – Graphe d’Arrhenius des différentes fréquences caractéristiques des modes de relaxation du polyisobutylene[38]. Les flèches indiquent la température ambiante ainsi que le mode de relaxation α correspondant

raison de contraintes résiduelles non relaxées durant le passage de la transition vitreuse par évaporation. A l’origine d’un débat encore non résolu, certains groupent affirmant d’ailleurs que les effets de confinement sur la transition vitreuse sont en majeure partie liés aux contraintes résiduelles [40].

Notre système n’est peut être pas à l’équilibre non plus en raison de sa très haute viscosité, mais le fait que sa température de transition vitreuse $T_g \approx 200\text{ K}$ soit très en dessous de l’ambiante favorise beaucoup plus les processus de relaxation et on s’attend à moins de contraintes résiduelles dues à la préparation des films. Ceux-ci peuvent expliquer l’absence de confinement observé.

Notons qu’un artefact possible dans ce type de mesure provient de la présence éventuelle de ponts capillaires. Ceux-ci devraient augmenter la dissipation et la contrainte normale, et il convient d’estimer l’influence de cet effet.

3.3 Influence de l'humidité relative sur le vieillissement

Les propriétés mécaniques de contacts sphère-plan peuvent changer de manière spectaculaire en présence de petites quantités de liquide. Les ponts de liquide présents au niveau du contact créent des forces d'adhésion responsables de la cohésion des grains dans les châteaux de sable. De plus ces petites quantités de liquides peuvent former un film lubrifiant qui modifie les propriétés frictionnelles du contact. Bocquet et Charlaix [4] ont mis évidence l'influence de l'humidité sur la cinétique de vieillissement d'un milieu granulaire composé de billes de diamètres inférieure à 0,5 mm et établissent une relation entre l'angle de repos $\theta_w(t_w)$ et l'humidité relative à travers la force d'adhésion $F_{adh}(t_w)$. Par contre Fraysse établit que la cinétique de vieillissement demeure inchangée pour des humidités relatives inférieures à 70 %. Brunet et Jia [41] ont mis en évidence les effets dissipatifs dus à des résidus liquides confinés entre les grains d'un milieu granulaire. Enfin, Johannsmann [42] a mis en évidence des effets hystérétiques intéressants lors de cycles d'atmosphères humides - sèches. La raideur du contact est plus importante après séchage.

3.3.1 Description des expériences

Nous avons étudié la cinétique de vieillissement et la réponse ultrasonore non-linéaire de contacts "humides" avec la sonde composée de trois lentilles de verre. La sonde est maintenue par une pièce métallique et équipée d'un crochet fixé sur un moteur. Le système est placé dans une étuve étanche équipée de capteurs de température et d'humidité relative.

Trois surfaces seront étudiées : la surface d'or du résonateur, et la même surface recouverte par des monocouches de thiols de groupement terminal COOH et de groupement CH_3 . La réponse non-linéaire oscillatoire du contact sera étudiée sur les trois systèmes alors que la cinétique de vieillissement sera examinée avec la surface non fonctionnalisée du résonateur. Le protocole de fonctionnalisation a été détaillé dans la partie expérimentale en 2.4.1 page 35.

Avant chaque mesure, la sonde est plongée dans un bêcher d'éthanol absolu

3.3 Influence de l'humidité relative sur le vieillissement

pendant quelques secondes puis rincée avec de l'eau distillée et séchée avec un flux d'air. Une vérification optique de l'état de surface des lentilles est réalisée avec un microscope optique.

La cinétique de vieillissement du contact. Le protocole de mesure est composé de quatre étapes (voir figure 3.9) :

- a) L'étuve contenant la cellule et la sonde disposée juste au-dessus sont conditionnés à humidité relative et température données grâce à des béciers remplis d'eau distillée et / ou de sels anhydres. Avec ce procédé nous avons fait varier l'humidité entre 5 et 60 %. Avant d'effectuer le contact, un conditionnement de 4 h minimum, est nécessaire pour obtenir une réponse stable du spectre de résonance du résonateur.
- b) la sonde est posée délicatement sur la surface du résonateur à l'aide d'un moteur piézoélectrique. Puis des oscillations de grandes amplitudes sont appliquées pour assurer la reproductibilité du contact.
- c) Après avoir effectué le test en non-linéaire, le contact vieillit pendant 18 h pendant lesquelles on mesure chaque minute la raideur latérale et la dissipation linéaire.
- d) Après le vieillissement, un autre test en non-linéaire est effectué.

3.3.2 Résultats expérimentaux

Lors du conditionnement en atmosphère humide, on s'attend à ce que de l'eau se condense sur la surface du quartz, provoquant un ajout de masse et donc une diminution de la fréquence de résonance. C'est effectivement ce que nous observons (voir figure 3.10). A partir des données extraites de la figure (3.10), nous évaluons l'épaisseur du film d'eau éventuellement présent sur la surface du résonateur à quartz après conditionnement de l'atmosphère. Il subsiste au maximum un écart en fréquence Δf_r de $\sim -30 \text{ Hz}$ entre le début et la fin du conditionnement. L'équation 2.7 (page 30) donne une épaisseur effective à 5 nm l'épaisseur film d'eau sur la

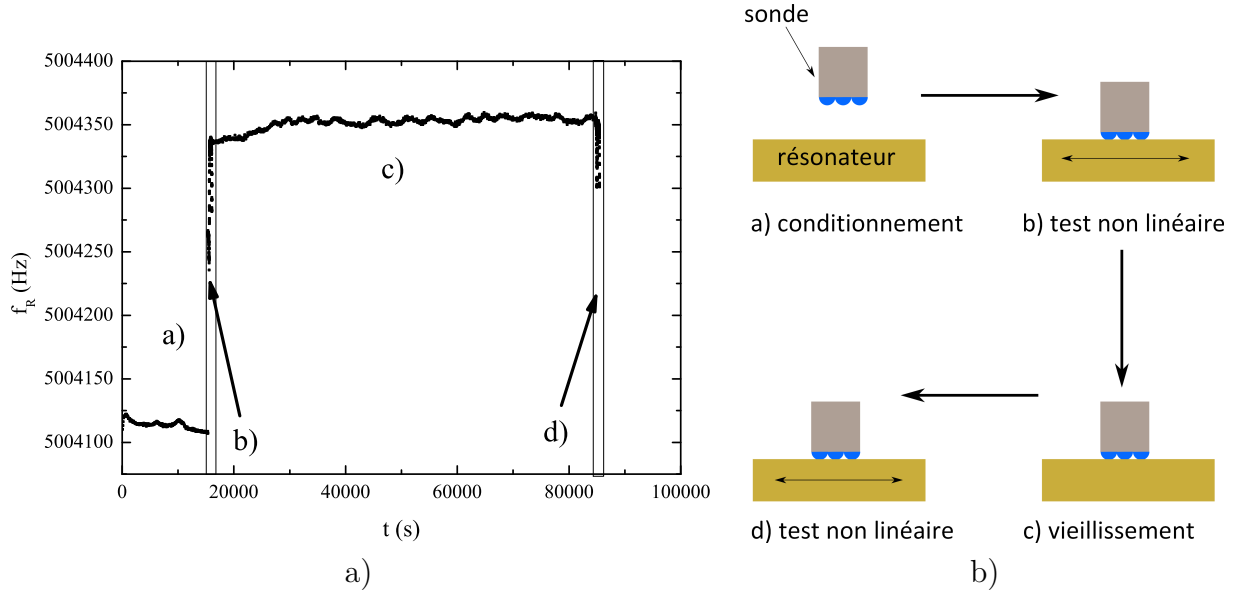


FIGURE 3.9 – a) évolution de la fréquence en fonction du temps pour chaque étape du protocole. b) Schéma du protocole de mesure employé au cours de cette étude ; l'étape a) consiste à conditionner l'étuve et le résonateur à une humidité relative souhaitée, l'étape b) correspond au dépôt de la sonde sur la surface du résonateur puis à effectuer un test non-linéaire ; Après avoir effectué le test, la fréquence de résonance f_R et le facteur de qualité Q sont mesurés durant un temps d'attente ou de vieillissement t_w ce qui correspond à l'étape c) du protocole ; puis après le vieillissement, un test en non-linéaire est effectué pour déterminer si les réponses élastique et dissipative du contact sont affectées, ce qui correspond à l'étape d).

surface du résonateur. Le fait que l'épaisseur effective ne dépende pas de l'humidité suggère que l'eau est répartie de manière non-uniforme sur la surface du quartz.

Au delà d'une longueur δ appelée longueur de décroissance, l'onde de cisaillement est atténuée et ne se propage plus à travers le liquide. Cette longueur caractéristique est évaluée par l'expression

$$\delta = (2\eta/\omega\rho)^{1/2}$$

et estimée $\simeq 250$ nm pour l'eau avec la viscosité $\eta = 1 \cdot 10^{-3} Pa.s$, la masse volumique de l'eau $\rho = 1000 kg.m^{-3}$ et la pulsation propre $\omega = 3 \cdot 10^7 rad.s^{-1}$. Ainsi deux condensats dont les gouttes sont de hauteurs différentes mais de bases égale

3.3 Influence de l'humidité relative sur le vieillissement

donnent deux shifts en fréquence identiques.

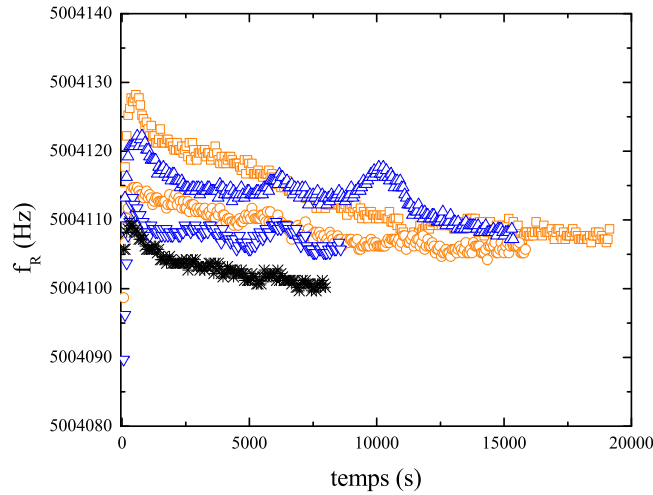


FIGURE 3.10 – Variations de la fréquence de résonance f_r pour des taux d'humidité différents. Les courbes noire, bleue et orange représentent respectivement 9 %, 23 % et 57 % d'humidité relative.

Comme le montre figure 3.11, les valeurs initiales de shift en fréquence ou en dissipation, mesurées juste après l'établissement du contact, ne semblent pas être affectées par l'humidité, car la différence entre les shifts est typiquement de l'ordre de la reproductibilité ($\sim 10\%$). Pour tous les niveaux d'humidité utilisés, on observe un vieillissement significatif d'environ 10 – 20 Hz au bout de 10 000 s. De même, la dissipation augmente de plusieurs dizaines de pourcent. En revanche, la cinétique de vieillissement du contact n'est pas influencée par l'humidité relative dans l'étuve (Figure 3.11).

La réponse non-linéaire lors de sollicitations de grandes amplitudes est donnée figure 3.12 pour les surfaces de basse énergie (thiol hydrophobe) et figure 3.13 pour les surfaces de haute énergie (thiol hydrophile). Pour les deux énergies de surface, une variation du taux d'humidité de ~ 12 à 55% l'humidité n'influe pas sur la non-linéarité.

La réponse non-linéaire est uniquement affectée par la nature de la monocouche de thiol, sans aucune influence de l'humidité. Pour les surfaces de haute énergie

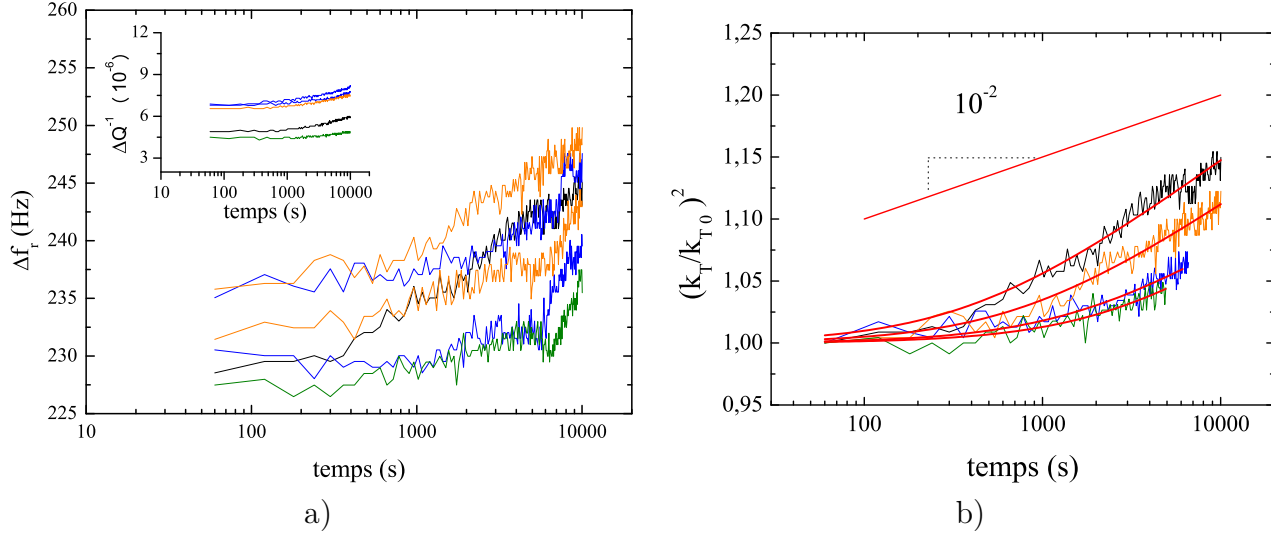


FIGURE 3.11 – La variation de a) Δf_r et ΔQ^{-1} en fonction du temps pour différents taux d’humidité et b) k_T^2/k_{T0}^2 . Les raideurs ont été calculées à partir de l’équation (2.12). Les courbes verte, noire, bleue et orange représentent respectivement 7 %, 9 %, 23 % et 57 % d’humidité relative. Le substrat est un quartz sans dépôt de monocouche de thiol.

la différence entre la fréquence initiale et la plus basse $\Delta f_r - \Delta f_{r0}$ est de ~ -60 Hz tandis que pour les surfaces de basse énergie cette différence est de ~ -40 Hz. De même $\Delta Q^{-1} - \Delta Q_0^{-1}$ est de $\sim 7 - 10 \cdot 10^{-6}$ pour les surfaces recouvertes de thiol hydrophile et de $\sim 4 - 5 \cdot 10^{-6}$ pour les surfaces de thiol hydrophobe. Ces résultats suggèrent que la réponse non-linéaire n’est pas affectée par l’humidité, mais beaucoup plus par la nature de la couche interfaciale greffée.

3.3.3 Interprétation

Nous avons évalué l’ordre de grandeur $\sim 10Hz$ donné par l’augmentation de la charge normale due à la nucléation de ponts capillaires à partir du modèle de Boquet/Charlaix, équation 1.11 page 14 ce qui n’est pas contradictoire avec nos mesures expérimentales sur le vieillissement. En revanche, l’absence de sensibilité au niveau d’humidité suggère que le vieillissement observé est d’une autre nature.

3.3 Influence de l'humidité relative sur le vieillissement

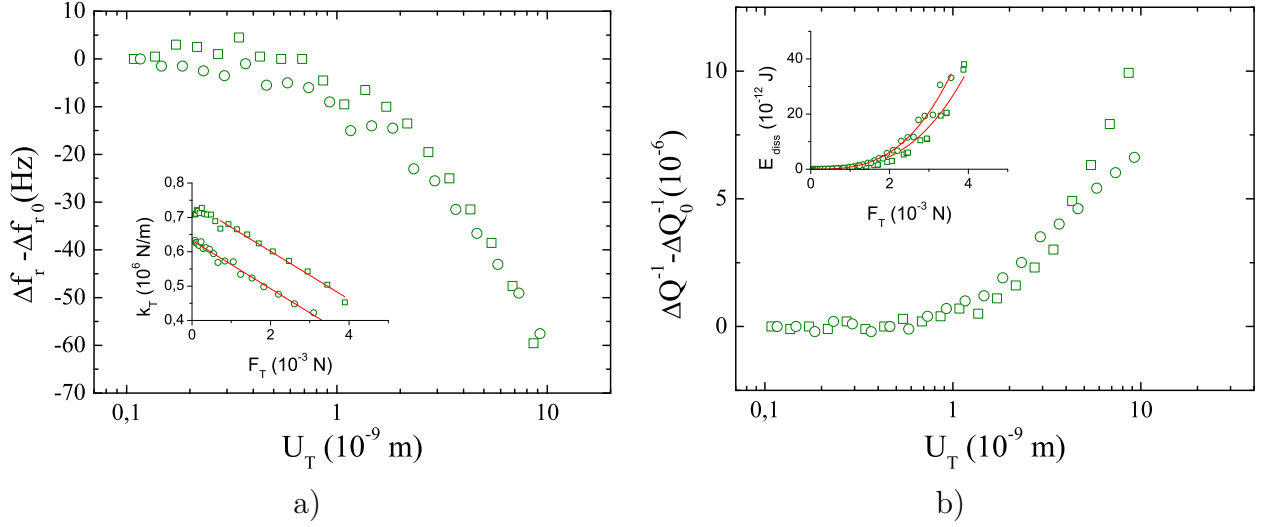


FIGURE 3.12 – a) $\Delta f_T - \Delta f_{T0}$ et b) $\Delta Q - \Delta Q_0$ en fonction de l'amplitude de cisaillement U_T pour différentes taux d'humidité et pour une énergie de surface basse. Les symboles carré et rond représentent respectivement une humidité relative de 55 % et de 12,7 %

Le vieillissement observé figure 3.11 pourrait être provoqué par le fluage des aspérités en contact. Dans la littérature [7], le mécanisme de fluage des aspérités est responsable de l'évolution temporelle du coefficient de friction statique μ_s et les données expérimentales ajustées à l'aide de ce modèle donnent une pente logarithmique de l'ordre de 10^{-2} indépendamment des matériaux en contact. Dans ce mécanisme, l'aire de contact croît aussi logarithmiquement avec le temps et l'équation (1.9) page 12 décrit cette évolution.

Si le vieillissement mesuré est imputable à un fluage thermique activé des aspérités alors la raideur latérale et la dissipation *via* ΔQ^{-1} du contact se réécrivent, en combinant $k = 8Ga^*$ et (1.9) comme :

$$k_T = k_{T0} \left[1 + m \log\left(1 + \frac{t}{\tau}\right) \right]^{\frac{1}{2}} \quad (3.16)$$

avec k_{T0} la raideur initial, m la pente logarithmique et τ un temps de coupure.

L'équation 3.16 modélise l'évolution temporelle de la raideur par l'intermédiaire d'un accroissement de l'aire de contact. L'ajustement des données de la figure

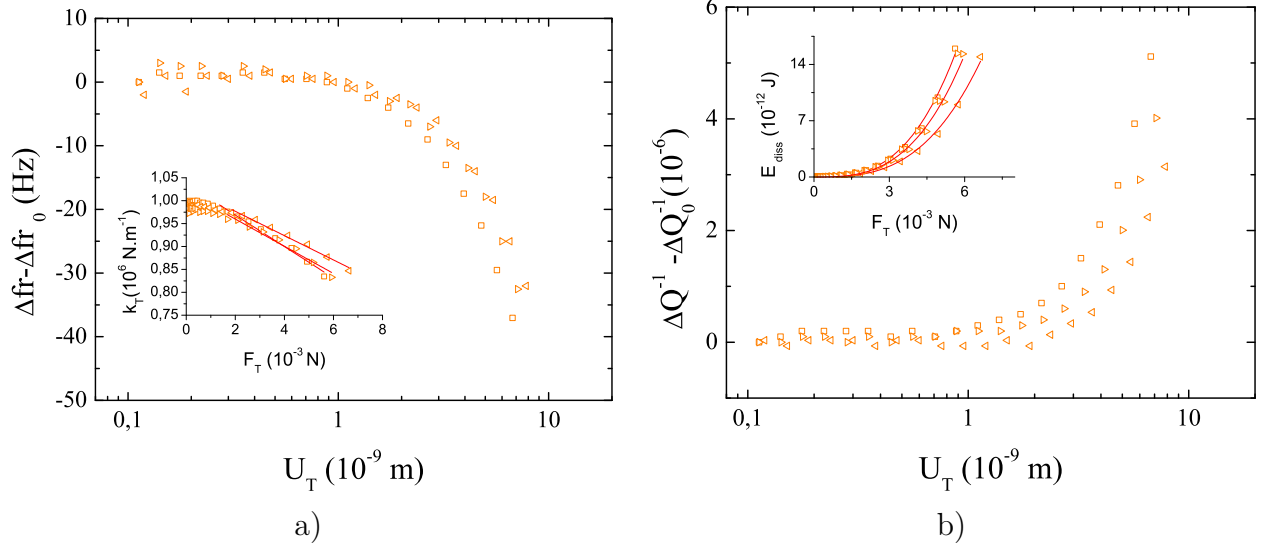


FIGURE 3.13 – La variation de a) $\Delta f_r - \Delta f_{r0}$ et b) $\Delta Q - \Delta Q_0$ en fonction de l'amplitude de cisaillement U_T pour différentes taux d'humidité et pour une surface de haute énergie. Les symboles carré et les symboles triangles représentent respectivement une humidité relative de 55 %, de 4 % et de 5 %

3.11.b) par l'équation 3.16 établit une pente logarithmique moyenne m de $4,3 \times 10^{-2} \pm 0,3 \times 10^{-2}$ et un temps de coupure moyen τ de ~ 1495 s. Le résultat obtenu pour la pente m est en accord avec les données de la littérature [7].

Le fluage thermiquement activé domine tout effet de capillarité, s'il existe. Nous pouvons conclure que le vieillissement est dû à une augmentation de l'aire de contact induit par le fluage thermiquement activé des aspérités en contact : ce vieillissement est appelé vieillissement géométrique.

Dans la gamme des humidités étudiées, l'ajustement par la théorie de Mindlin de la réponse non-linéaire permet de déterminer le coefficient de friction statique « ultrasonore » μ_s pour les deux surfaces de thiol. La réponse élastique est modélisée par l'équation

$$k_T = k_{T0} (1 - F_T / 6 \mu P) \quad (3.17)$$

et établit un coefficient μ_s donné dans le tableau 3.2 selon la nature de la monocouche pour deux taux d'humidité.

3.3 Influence de l'humidité relative sur le vieillissement

Humidité	monocouche COOH	monocouche CH_3
haute	1.5	0.5
basse	1.8	0.4

TABLE 3.2 – Récapitulatif des coefficients de friction μ_s « ultrasonores » pour les hautes humidités ($\sim 55\%$) et les basses humidités ($\sim 4-12\%$) obtenus à partir la raideur k_T .

La dissipation du contact est modélisé par l'équation

$$E_{diss} = (36G^* a \mu N)^{-1} F_T^3 \quad (3.18)$$

et le coefficient de friction μ_s évalué par ce modèle est donné par le tableau 3.3 pour deux humidités relatives différents et pour deux monocouches distinctes.

Humidité	monocouche COOH	monocouche CH_3
haute	1.1	0.2
basse	1.3	0.2

TABLE 3.3 – Récapitulatif des coefficients de friction μ_s « ultrasonore » pour les hautes humidités ($\sim 55\%$) et les basses humidités ($\sim 4-12\%$) obtenus à partir la dissipation E_{diss} .

Le coefficient de friction μ_s de la monocouche COOH est supérieure à celui de la monocouche CH_3 quelle que soit le taux d'humidité de l'enceinte ($\mu_{sCOOH} > \mu_{sCH_3}$). Le coefficient de friction peut être relié soit

1. à une différence de densité de surface (qui nécessite d'utiliser un AFM pour vérifier),
2. à une différence de contrainte seuil σ_s comme l'a montré Carpick; Carpick a mis en évidence à l'aide un AFM une différence de contrainte seuil entre les thiols $-COOH$ et $-CH_3$ ($\sigma_{sCOOH} > \sigma_{sCH_3}$). Or nous pouvons relier la contrainte σ_s au coefficient μ_s par l'intermédiaire de $\mu_s N = \sigma_s \Sigma_r$ (équation 1.2, page 8); donc le coefficient de friction varie comme $\mu \sim Cste \times \sigma_s$ ce qui rend nos résultats comparable à ceux de Carpick.

Par contre, comme le montre le tableau 3.2, l'humidité ne change pas de manière significative le coefficient friction ultrasonore pour une monocouche donnée. Dans la suite du manuscrit, l'influence des ponts capillaires sur la réponse non-linéaire du contact sera négligé.

La nucléation des ponts capillaires au niveau du contact n'est pas responsable du vieillissement expérimental observé. Un mécanisme envisageable serait que le fluage des aspérités en contact est à l'origine du vieillissement mesuré. En effet, le fluage thermiquement activé induit un accroissement de l'aire de contact donné par l'équation (1.9). Cet accroissement provoque une augmentation logarithmique de la raideur et de la dissipation avec le temps.

3.4 Conclusions

L'établissement d'un contact sur un film de polyisobutylène (viscoélastique) obéit à une loi de conservation de matière. La viscosité élongationnelle est responsable de l'évolution temporelle du contact et permet, par une cinétique de squeeze flow lente, de mesurer en continu les modules dynamiques du film. Les mesures des modules attestent l'absence d'effet de confinement au vu de la précision de nos mesures.

Pour les systèmes recouverts de monocouche, dans la gamme étudiée d'humidité relative, le vieillissement du contact observé ne peut pas être attribué à l'apparition de ponts capillaires au niveau du contact. En effet, nous observons que la cinétique de vieillissement demeure identique quel que soit le taux d'humidité appliqué. Le vieillissement expérimental observé est attribuable à un mécanisme de fluage thermiquement activé des aspérités pourrait expliquer ce phénomène de vieillissement.

La nature moléculaire des monocouches affecte les réponses élastique et dissipative du contact dans le régime de Mindlin permettant ainsi de différencier deux monocouches distinctes de part la valeur des coefficients de friction. La monocouche de thiol -COOH a un coefficient de friction supérieur à celle de la monocouche $-CH_3$.

En résumé, le résonateur permet d'estimer les propriétés dynamiques de films d'épaisseur $\lesssim 100$ nm et de basse température de transition vitreuse T_g .

3.4 Conclusions

La précision des mesures sur les monocouches montre la sensibilité du dispositif expérimental à la nature moléculaire de l'interface.

CHAPITRE 3 : *Interfaces contrôlées nanométriques : propriétés mécaniques et vieillissement*

Chapitre 4

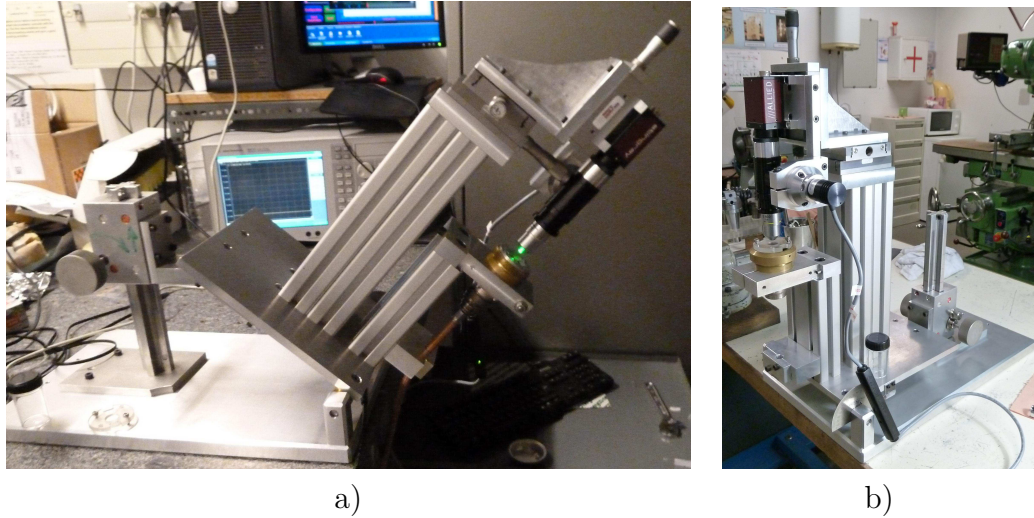
Déclenchement du glissement

Dans des systèmes amorphes et athermiques tel que les milieux granulaires, l'expérience montre que l'angle de repos θ_R est réduit par l'application de vibrations externes [43, 44, 45, 46]. Cependant il demeure encore peu clair si ceci est dû à des effet collectifs [47], à une réduction de la force normale par une pression acoustique de manière à ce que le glissement d'un milieu granulaire puisse se produire pour une contrainte de cisaillement basse [21, 48] ou encore à une diminution du coefficient de frottement statique entre les grains induit par des vibrations.

4.1 Détails expérimentaux

4.1.1 Plan incliné

Afin d'étudier la réponse interfaciale dans le régime précédant le seuil statique, la cellule ultrasonore a été fixée sur un plan incliné. Le dispositif est composé d'une plaque contenant la cellule de mesure et d'un système de pignon-crémaillère (voir figure 4.1). Le système de pignon - crémaillère permet d'élever l'extrémité de la plaque tandis que l'autre extrémité effectue une rotation par rapport à l'horizontal. L'inclinaison maximale accessible avec le plan incliné est $\theta = 40^\circ$, avec une précision de 0.5° . La force tangentielle statique appliquée est $F_T = N \sin(\theta)$ où $N = mg$.

FIGURE 4.1 – a) Plan incliné à $\theta = 40^\circ$; b) Plan incliné $\theta = 0^\circ$

4.1.2 Interfaces

Les quartz utilisés ont des propriétés de surface modifiées à l'aide de monocouche de thiol soit hydrophile soit hydrophobe (voir partie 2.4.1 page 35). Les échantillons sont conservés sous vide entre chaque série de mesure. Après avoir monté l'échantillon dans la cellule, un temps de 30 minutes est nécessaire pour atteindre une fréquence de résonance stable dans les conditions de température et humidité de la salle.

La sonde est constituée de trois billes d'acier fixées sur une pastille d'acier, et est similaire à celle schématisée dans la figure 2.7 page 40. Entre chaque mesure, la sonde est légèrement polie sur un disque feutré avec de la poudre diamant, puis rincée abondamment avec de l'eau distillée et séchée à l'aide d'un flux de gaz inerte (Argon). La sonde ainsi préparée est utilisée pour une mesure seulement si la surface ne comporte pas de particule visible au microscope. Sinon, le protocole de nettoyage est réitéré.

4.1.3 Caractérisation de la résonance.

Avant le contact, on mesure la fréquence de résonance f_R et le facteur de qualité Q . Puis la sonde est déposée délicatement sur la surface du résonateur. Son

4.2 Angle de repos : affaiblissement élastique et régime intermittent

positionnement, tel que le centre de la sonde corresponde avec le centre du quartz, est contrôlé par le biais d'une pièce métallique calibrée. Puis, un cisaillement ultrasonore à haute amplitude (non-linéaire $U_s > 1 \text{ nm}$) est appliqué pendant 10 secondes. Ce cisaillement a pour effet de provoquer le glissement oscillatoire quasiment "total", et donc de conférer à la couche interfaciale une configuration plus reproductible que lors de la formation du contact dès le dépôt de la sonde. Enfin, un temps d'attente d'environ 10 minutes est respecté avant d'effectuer les mesures. Ce protocole permet d'obtenir des mesures assez reproductibles de la raideur et de la dissipation (10% d'erreur).

L'angle d'inclinaison est ensuite augmenté de manière incrémentale, accompagné d'une mesure de f_R et Q pendant environ 10 secondes pour chaque angle. Ce protocole permet d'obtenir environ une dizaine d'angles d'inclinaison par expérience, avec une cadence de mesure assez élevée pour que la fréquence de résonance ne subisse pas de variation due au vieillissement, qui est relativement lent après les 10 minutes d'attente mentionnés plus haut.

4.2 Angle de repos : affaiblissement élastique et régime intermittent

Les monocouches de thiol déposées sur la surface des quartz ont des propriétés frictionnelles différentes. Ceci est mis en évidence de la façon la plus simple de part le coefficient de friction (voir figure 4.2). La loi de Coulomb s'écrit $F_s = F_0 + \mu_s N \cos \theta$ avec F_0 la force tangentielle seuil sous charge normale nulle, et μ_s le coefficient friction statique. Les coefficients de friction pour le système CH_3 et pour le système $COOH$ sont respectivement $\mu_{sCH_3} = 0,12$ et $\mu_{sCOOH} = 0,33$. Ces coefficients de friction sont en accord avec d'autres études [49].

Les forces seuils sous charge normale nulle F_0 pour le système adhésif et le système non-adhésif sont respectivement $F_{0COOH} = 0,6 \pm 0,1 \text{ mN}$ et $F_{0CH_3} = 0,5 \pm 0,1 \text{ mN}$. La nature des monocouches de thiol n'affectent pas la force seuil qui est de l'ordre de 1 mN.

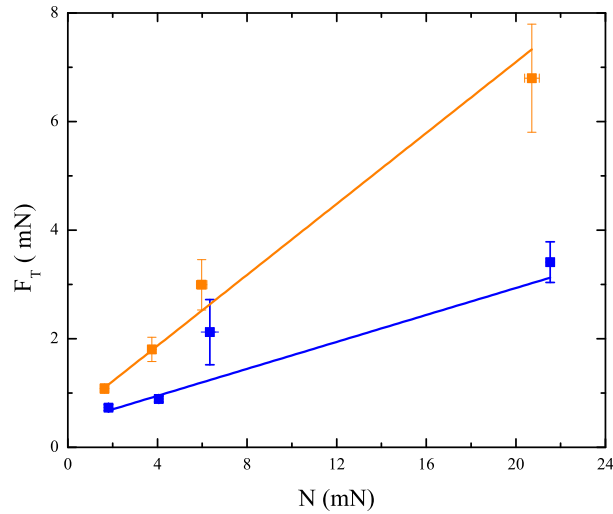


FIGURE 4.2 – Force de friction statique en fonction de la charge normale. Les symboles bleus et oranges correspondent respectivement aux surfaces $CH3$ et $COOH$.

Affaiblissement élastique

La mesure de la raideur linéaire au cours de l'inclinaison est effectuée à l'aide de la sonde correspondant à une charge normale de $N = 6.7$ mN. En raison de l'endommagement des quartz dû au glissement¹, les mesures de la figure 4.3 sont réalisées avec des quartz différents, ce qui a provoqué une légère évolution des angles de glissement pour cette charge normale dans le cas de l'interface $COOH$: $\theta_{COOH} \sim 34.7^\circ$ contre $\theta_{COOH} \sim 26.6^\circ$ au paragraphe précédent.

À $\theta = 0^\circ$, la raideur des contacts établis sur l'interface $COOH$ est légèrement plus haute que pour les contacts sur $CH3$. Ceci est dû à la différence d'énergie interfaciale des deux monocouches, qui provoque une légère variation de l'aire de contact (voir modèle de Johnson-Kendal-Roberts en 1.6.1 page 25), ce qui entraîne une évolution de la raideur $k \sim 8G^*a$ [50].

Lorsque l'angle d'inclinaison augmente, la raideur diminue, pour les deux interfaces, de l'ordre de 5–10%. Cet "affaiblissement élastique" est mis en évidence dans un régime où aucun déplacement macroscopique n'est détecté. L'interprétation de ces résultats nécessite une discussion détaillée de quelques mécanismes potentiels.

1. Les électrodes d'or se rayent assez facilement, provoquant des sillons qui modifient de manière substantielle le seuil de glissement après environ une dizaine de mesure.

4.2 Angle de repos : affaiblissement élastique et régime intermittent

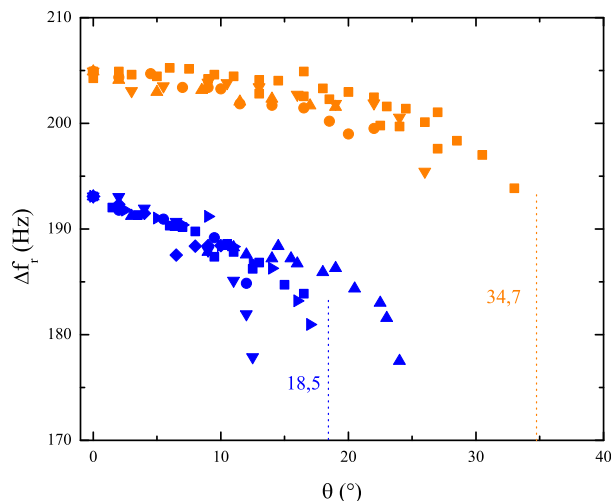


FIGURE 4.3 – La variation de l'écart en fréquence Δf_R pour différents angles d'inclinaison. Les symboles bleu et orange correspondent respectivement aux interfaces *CH3* et *COOH*.

Modèle frictionnel de Mindlin

Afin de faciliter la clarté de la discussion, nous rappelons ici les points principaux concernant le comportement statique et dynamique de contacts soumis à une force tangentielle. L'ordre de grandeur de la raideur linéaire est bien prédit par le modèle de Mindlin. La Figure 4.4 représente la force nécessaire pour provoquer un déplacement tangentiel donné par :

$$U_T = 3\mu N / (16G^*a) \left[1 - (1 - F_T / \mu N)^{2/3} \right]. \quad (4.1)$$

Le tracé "bleu" correspond un déplacement statique sous force statique croissante à partir de zero (voir aussi en 1.4 page 20 un cycle complet). Comme nous l'avons déjà mentionné, la raideur est non linéaire. Les paramètres utilisés pour réaliser ce calcul numérique et tracer le graphe 4.4 sont dans le tableau 4.1.

Les tracés en noir sur la Figure 4.4 correspondent à un déplacement oscillatoire autour de deux positions statiques différentes. On voit que la pente des courbes "oscillatoires" n'est pas affectée par l'amplitude du déplacement statique. Le modèle de Mindlin prévoit qu'une raideur mesurée dans le régime linéaire (ce qui est

μ_s	$\tan(25^\circ)$
N	2.2310^{-3} N
G^*	12 GPa
a	7 μm
$F_T \text{ statique max}$	$9,86 \times 10^{-3}$ N
$F_T \text{ oscillatoire max}$	$\pm 2,8 \times 10^{-4}$ N

TABLE 4.1 – Paramètres utilisés pour tracer le courbe de la figure 4.4

notre cas expérimentalement) est constante jusqu’au seuil de glissement.

Le modèle de Mindlin ne contient pas l’affaiblissement élastique détecté en régime linéaire sous contrainte statique en Figure 4.3. Rappelons de plus qu’expérimentalement, le régime linéaire s’étend sur une plage de déformation finie [50], probablement liée à la présence d’une composante adhésive, et qui n’est pas non plus prise en compte par ce modèle. Afin de s’assurer que chacun des points tra-

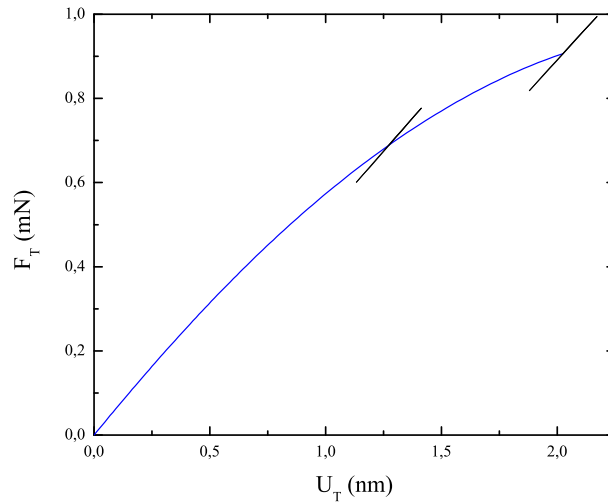


FIGURE 4.4 – Schéma représentant le modèle de Mindlin pour un déplacement tangentiel donné u_T (ligne noire). Les boucles oscillatoires linéaires sont représentées en noir et correspondent à la raideur qui reste constante quelle que soit la force tangentielle statique exercée.

cés en Figure 4.3 se situe dans le régime linéaire, nous avons effectué des tests préliminaires jusqu’à de hautes amplitudes d’oscillation, sous angle croissant. La

4.2 Angle de repos : affaiblissement élastique et régime intermittent

Figure 4.5 représente l'évolution de la raideur en fonction de la force oscillatoire $F_{ac} = ku_T$ ou k est la raideur mesurée à partir du shift en fréquence et u_T est l'amplitude d'oscillation. Les courbes sont normalisées par leur valeur initiale à $u_T \sim 0.1$ nm. Selon le modèle de Mindlin, le rayon de contact ne varie pas avec

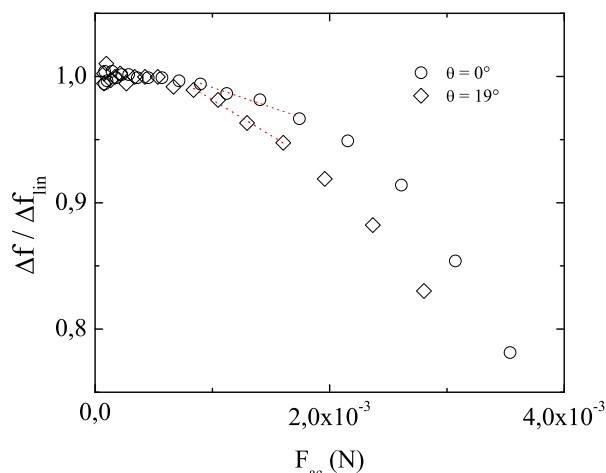


FIGURE 4.5 – Raideur normalisée par sa valeur en régime linéaire, pour deux angles d'inclinaison $\theta = 0^\circ$ et $\theta = 19^\circ$. Les lignes rouges illustrent une différence de pente.

la contrainte tangentielle. De plus, la raideur pour de faibles forces tangentielles s'écrit $k_T \sim 8G^*a \left(1 - \frac{F_{ac}}{6\mu N}\right)$. Si l'on n'envisage pas de variation du coefficient de friction et comme la charge normale ne varie que de $\sim 6\%$ entre les deux angles d'inclinaison, les courbes $k/8G^*a = f(F_{ac})$ devraient être confondues, ce qui n'est pas le cas. Cela indique une fois de plus que le modèle de Mindlin ne peut expliquer nos données expérimentales.

Analyse en termes de fracture

Des études récentes sur des interfaces multicontact montrent que lors de l'approche du seuil de glissement, les solides en contact se désolidarisent partiellement par l'intermédiaire de multiples fractures [51]. Ces expériences sont effectuées à l'aide d'une nappe laser traversant l'interface multicontact. L'intensité transmise est proportionnelle à l'aire de contact réelle, qui est mesurée en fonction du déplacement tangentiel. Des fractures sont observées, avec des vitesses de propagations

allant de 10 à 1000 $m.s^{-1}$, soit jusqu'à la vitesse des ondes de cisaillement dans le matériau utilisé (PMMA).

Un aspect important de ces résultats [51] est la nécessité de prendre en compte la fracture dans la dynamique interfaciale aux alentours du seuil de glissement. Cette vision n'est pas nouvelle, et une résistance à la fracture associée à la dynamique frictionnelle associée est souvent prise en compte pour la modélisation des failles sismiques. Cela implique en particulier que l'aire de contact réelle diminue au seuil statique, à contrario d'un déclenchement frictionnel par le mécanisme de Mindlin généralisé à une interface multicontact [52].

La loi de coulomb $F = F_0 + \mu N$ que l'on a mise en évidence pour notre système confirme la nécessité de prendre en compte un terme non frictionnel, c'est à dire adhésif, non dépendant de la charge normale. Pour un monocontact, Savkoor (voir 1.6.2 page 26) a proposé un scénario basé sur la modélisation du volume proche de la ligne de contact comme une zone de fracture. L'argument sur lequel est basé ce scénario est que le modèle de Mindlin manque de réalité physique à faible déformation, car il prédit une diminution de la raideur pour une force infinitésimale, du au fait que la pression est nulle aux bords du contact (donc la friction aussi). Si on considère l'interface comme une jonction nanométrique avec des propriétés mécaniques identifiables, alors il faut dépasser un seuil de contrainte $\sigma = \sigma_0$ (indépendant de la pression) pour amorcer la rupture interfaciale.

Nous rappelons ici les principaux ingrédients mécaniques et physiques permettant de discuter de l'initiation d'une fracture dans le cadre de l'analyse de Griffith. Pour une contrainte donnée σ_0 , la distribution des contraintes est donnée par [53] :

$$\sigma(r) = \sigma_0 \left(1 - \frac{r^2}{a^2}\right)^{-\frac{1}{2}}. \quad (4.2)$$

La force F_0 agissant sur le contact est

$$F_0 = \int_0^a \sigma_r 2\pi r dr = 2\pi a^2 \sigma_0. \quad (4.3)$$

En posant $\rho = a - r$ on peut ré-écrire (4.2) sous la forme :

$$\sigma(r) = K \rho^{-\frac{1}{2}} \quad (4.4)$$

4.2 Angle de repos : affaiblissement élastique et régime intermittent

ce qui met en évidence le facteur d'intensité des contraintes $K = F_0/2\pi 2^{\frac{1}{2}} a^{\frac{3}{2}}$.

D'autre part, la contrainte de cisaillement induit une déformation ϵ telle que $\sigma_0 = G_s \times \epsilon$, ce qui correspond à une densité d'énergie stockée $U_E = \frac{1}{2} \frac{\sigma_0^2}{G_s}$. Comme la déformation associée est de l'ordre de grandeur du rayon de contact, l'énergie de déformation est

$$u_E \sim \frac{1}{2} \frac{\sigma_0^2}{G_s} a^3 \quad (4.5)$$

L'énergie de fracture (par unité de surface) est G

$$G \sim \frac{K^2}{G_s}. \quad (4.6)$$

Lorsque G est égale à l'énergie de surface $G = \gamma$, on s'attend à ce qu'une fracture s'initie, pour une force critique dont l'ordre de grandeur serait

$$F_0 \sim (G_s \gamma a^3)^{1/2}. \quad (4.7)$$

Comme discuté en 1.6.2 page 26, Savkoor a mis en évidence une force tangentielle critique au delà de laquelle le système est mécaniquement instable :

$$F_0 = \frac{4}{(E/G_s)^{1/2}} \times (2\pi\gamma RN + 3\gamma^2 \pi^2 R^2)^{1/2}. \quad (4.8)$$

Dans notre cas, le terme en γ^2 est négligeable devant le terme en γ . De plus, comme nos surfaces sont faiblement adhésives, on peut approximer l'ordre de grandeur de a par la relation de Hertz $a^3 \sim \frac{NR}{E}$ et l'on obtient

$$F_0 \sim (G_s \gamma a^3)^{1/2} \quad (4.9)$$

ce qui correspond bien à l'équation (4.7). Ce résultat met en lumière d'une part l'influence des propriétés mécaniques du matériau, d'autre part l'influence de la charge normale par l'intermédiaire de a . Cette force d'adhésion tangentielle se distingue en particulier de la force d'adhésion normale $F \sim 3\pi R\gamma$. L'argument de Savkoor est que lorsque $F \geq F_0$, le rayon de contact diminue du rayon correspondant au modèle de JKR a_{JKR} au rayon de Hertz a_H , voir figure 4.6 (étapes (0) à (1)). Si la force augmente encore alors la pression ne permet pas de décollage

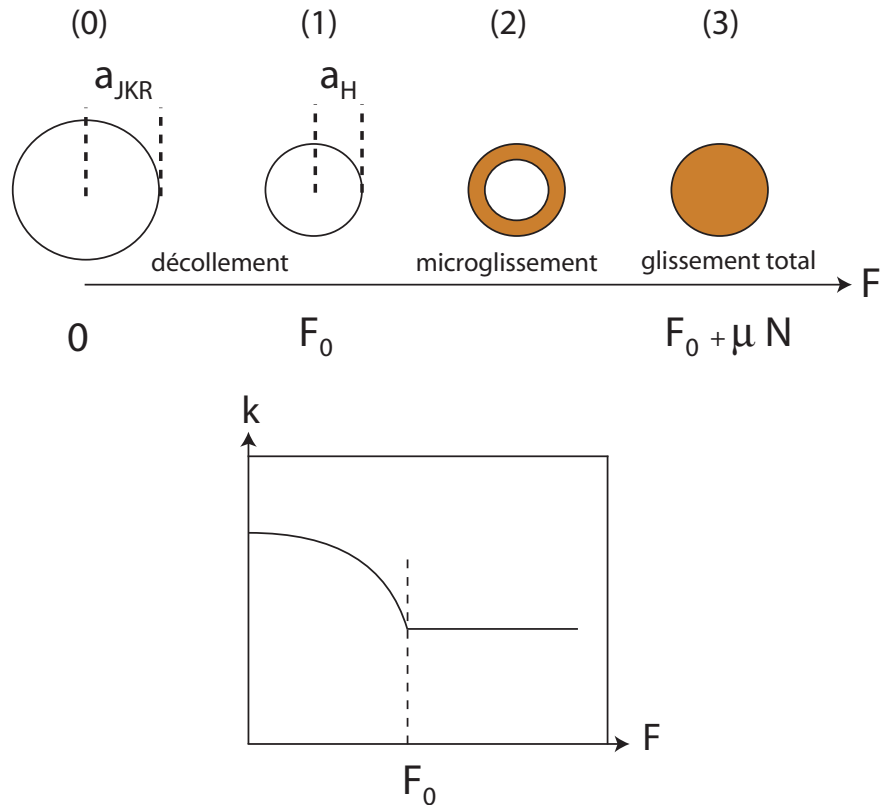


FIGURE 4.6 – En haut : évolution du rayon de contact sous force tangentielle croissante. La partie orangée représente l’anneau glissant décrit par le modèle de Mindlin. En bas : représentation schématique de la variation de la raideur selon les modèles de Savkoor et Mindlin

supplémentaire et une zone de microglissement est initiée (étape (2)), décrite par le modèle de Mindlin. Dans ce régime de Mindlin, le rayon de contact ne varie pas. La raideur correspondante $k \sim a$, est aussi représentée par la figure 4.6. On voit sur la Figure 4.7 que la diminution du rayon de contact calculée par la théorie de Savkoor donne un ordre de grandeur de la diminution de la fréquence de résonance sous inclinaison compatible avec nos mesures (Figure 4.3 page 71). D’autre part, un ordre de grandeur pour $F_0 \sim 10^{-4} - 10^{-3}$ correspond bien à notre plage de mesure, pour laquelle on devrait observer une transition "décollement - frottement".

D’après le modèle, on attend que pour une force tangentielle supérieure de F_0 , le rayon de contact (et la raideur associée mesurée en régime linéaire) soit

4.2 Angle de repos : affaiblissement élastique et régime intermittent

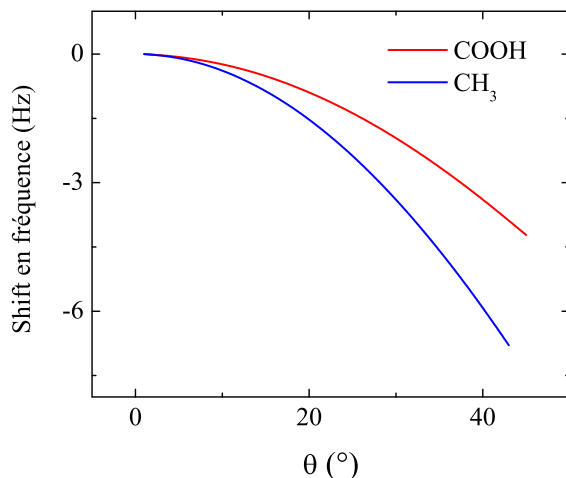


FIGURE 4.7 – Shift de la fréquence de résonance du à la diminution de l’aire de contact causée par la force tangentielle. Les paramètres [54] utilisés pour estimer la diminution de l’aire de contact à partir de 1.27 page 26 sont les suivants : la charge normal $N = 6,7$ mN, une force tangentielle statique $F_T = N \times \cos \theta$, un module de cisaillement $G^* = 12$ GPa, $\gamma_{COOH-Au} = 0,13$ N/m et $\gamma_{CH_3-Au} = 0,02$ N/m.

constant jusqu’au seuil de glissement, mais ce n’est pas ce que nous observons expérimentalement : la raideur diminue de façon monotone jusqu’à l’angle de repos (Figure 4.3). Le modèle de Savkoor n’est donc pas en mesure de rendre compte des détails de l’affaiblissement élastique observé.

Malgré tout, la pression sur les bords du contact est très faible, et une interprétation de l’affaiblissement élastique en termes d’adhésion est plus légitime qu’en termes de friction, pour laquelle le modèle de Mindlin est robuste mais se révèle infructueux.

A ce stade, quelques remarques sur le modèle de Savkoor s’imposent. L’hypothèse physique principale est que sous charge tangentielle, le seuil de plasticité de la jonction s’écrit $\sigma = \sigma_0 + \alpha P$ comme montré par Briscoe (voir (1.3) page 17). La prise en compte du terme en σ_0 permet de décrire un comportement plus réaliste que le modèle de Mindlin, en permettant à l’interface de ne pas être en régime plastique après application d’une force infinitésimale. Savkoor suppose que lorsque σ_0 est atteint, le bord du contact est fracturé en mode II.

Nous choisissons de décrire l’affaiblissement élastique à l’aide d’un modèle ma-

thématique faisant intervenir, dans F_0 , une fonction $S(U_T)$ qui représente la fraction surfacique de sites adhésifs de cisaillement, similaires aux "volumes d'activation de cisaillement" de Briscoe. Ces sites ne sont pas forcément localisés sur les bords du contact.

La raideur est choisie comme étant donnée par

$$k = \frac{\pi a^2 G'}{h} \quad (4.10)$$

où a est le rayon de contact, G' le module effectif de la couche interfaciale et h son épaisseur. En effet, la dynamique frictionnelle est localisée dans une épaisseur nanométrique, correspondant à un solide faible. Avec $a \sim 10 \mu\text{m}$, $h \sim 1\text{nm}$ et $k \sim 10^6$ on obtient un module élastique de l'ordre de $G' \sim 10 \text{MPa}$ qui correspond à des propriétés mécaniques plausibles pour des solides mous, à des fréquences ultrasonores.

On a alors

$$F_0(U_T) = k_0 U_T S(U_T) \quad (4.11)$$

avec $S(U) \sim 1$ pour $U_T < U_c$ avec U_c de l'ordre du nanomètre [50]. Pour $U_T > U_c$, $S(U)$ est une fonction décroissante, bornée par $\left(\frac{a_H}{a_{JKR}}\right)^2 < S(U_T) < 1$. Ceci implique d'écrire la loi de Coulomb sous la forme

$$F = F_0(U_{max}) + F_M(U_{max}) \quad (4.12)$$

ce qui correspond à des raideurs "adhésives" et "frictionnelle" en parallèle. Lorsque

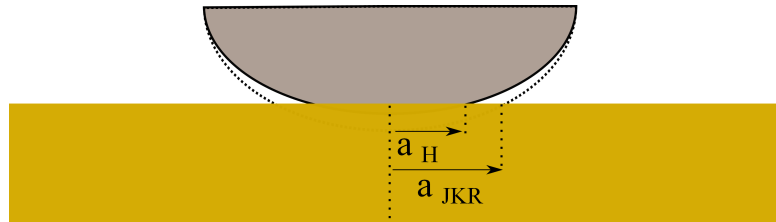


FIGURE 4.8 – Illustration schématique d'un contact non-adhésif (Hertz) et d'un contact adhésif (JKR).

la contrainte tangentielle est appliquée, la raideur adhésive doit alors décroître

4.2 Angle de repos : affaiblissement élastique et régime intermittent

telle que $\frac{\Delta k}{k} \sim 2 \frac{\Delta a}{a} \sim 0.5$, ce qui est supérieur à ce que nous mesurons expérimentalement $\frac{\Delta k}{k} \sim 5 - 10\%$. Le régime permettant de mettre en évidence un tel affaiblissement élastique est toutefois très proche du seuil d'instabilité mécanique caractéristique du glissement, que nous ne pouvons pas caractériser avec le plan incliné de façon très précise. En revanche en oscillatoire, les incréments d'amplitude d'oscillation peuvent être ajustés assez finement, et on observe de manière habituelle $\frac{\Delta k}{k} \sim 0.5$ pour des amplitudes de l'ordre de quelques nanomètres. Pour une amplitude ultrasonore $U_{max} \sim 5 \text{ nm}$, une raideur linéaire $k_0 \sim 8 \times 10^5$ et $\left(\frac{a_H}{a_{JKR}}\right) \approx \left(\frac{3.2 \times 10^{-6}}{5 \times 10^{-6}}\right)$ on trouve $F_0 \sim 2 \text{ mN}$, similaire à celle trouvée grâce aux mesures statiques $F_0 \sim 1 \text{ mN}$.

A l'aide de sondes comportant des lentilles transparentes et un objectif longue focale $\times 50$ (résolution de l'ordre du micron), nous avons réalisé une série de mesures du rayon de contact en fonction de l'angle d'inclinaison, ainsi qu'en fonction de l'amplitude d'oscillation. Nous n'avons jamais été en mesure de mettre en évidence une quelconque évolution du rayon de contact proche du seuil de glissement, contrairement aux études de Briggs et Barquins.

Régime intermittent à l'approche du seuil de glissement

Nous avons observé à plusieurs reprises, pour un angle d'inclinaison juste en dessous de l'angle de repos, un régime au cours duquel la raideur varie de manière non-monotone au cours du temps, voir Figure 4.9. Ce régime est annonciateur du seuil de glissement dans la mesure où une augmentation de l'angle d'inclinaison se solde systématiquement par un glissement macroscopique.

La fréquence de résonance varie d'environ $\sim 15 \text{ Hz}$, soit $\sim 10\%$ de sa valeur, durant un temps caractéristique assez court, de moins d'1 s. Notons que cet ordre de grandeur est inférieur à celui observé optiquement par Rubinstein, Cohen et Fineberg [51]. Ces variations pourraient être en relation avec le régime précurseur observé optiquement dans les études de Fineberg, durant lequel des zones de fracture contribuent à diminuer l'aire de contact réelle dans une interface multicontact. Il est donc possible que dans nos expériences, le régime précédant le glissement macroscopique soit caractérisé par un déplacement local, durant lequel les trois points de contact auraient un comportement "dynamique".

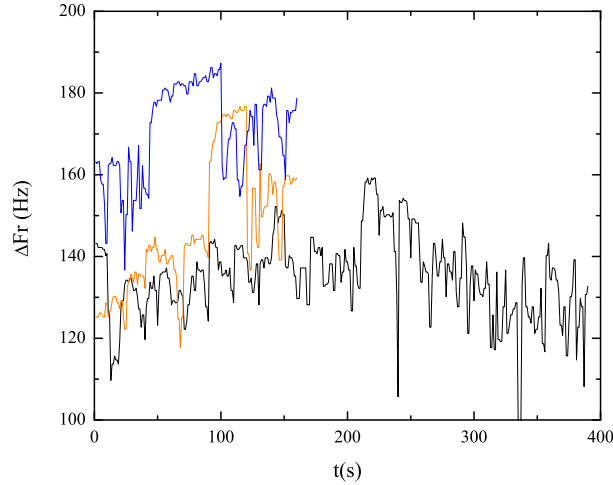


FIGURE 4.9 – Variations erratiques de Δf_R en fonction du temps pour des angles θ proches de l'angle de repos θ_R .

4.3 Déclenchement du glissement à haute amplitude d'oscillation

Les résultats de la partie précédente ont permis de mettre en lumière, par l'utilisation de vibrations de faibles amplitudes, un affaiblissement élastique interfacial précurseur du glissement macroscopique. Par ailleurs, nous avons aussi mis en évidence figure 4.10 (a) et (b) un effet significatif intervenant à des hautes amplitudes d'oscillation.

La diminution de la partie linéaire du signal correspond à l'affaiblissement élastique discuté dans la partie précédente. A haute amplitude d'oscillation, la raideur diminue comme observé dans nos études précédentes, lié à la croissance de l'anneau de micro-glissement se développant en périphérie du contact.

Lorsque $\theta = 19^\circ$ une amplitude $U_{max} \sim 5$ nm, provoque une évolution anormale de la fréquence de résonance, qui diminue progressivement (Figure 4.10 b)). Après quelques secondes dans ce régime, la fréquence de résonance chute de manière abrupte d'une centaine de Hertz, en même temps que nous observons le glissement macroscopique de la sonde. Les vibrations provoquent donc le déclenchement du glissement à un angle inférieur à l'angle de repos. Il est intéressant de comprendre

4.3 Déclenchement du glissement à haute amplitude d'oscillation

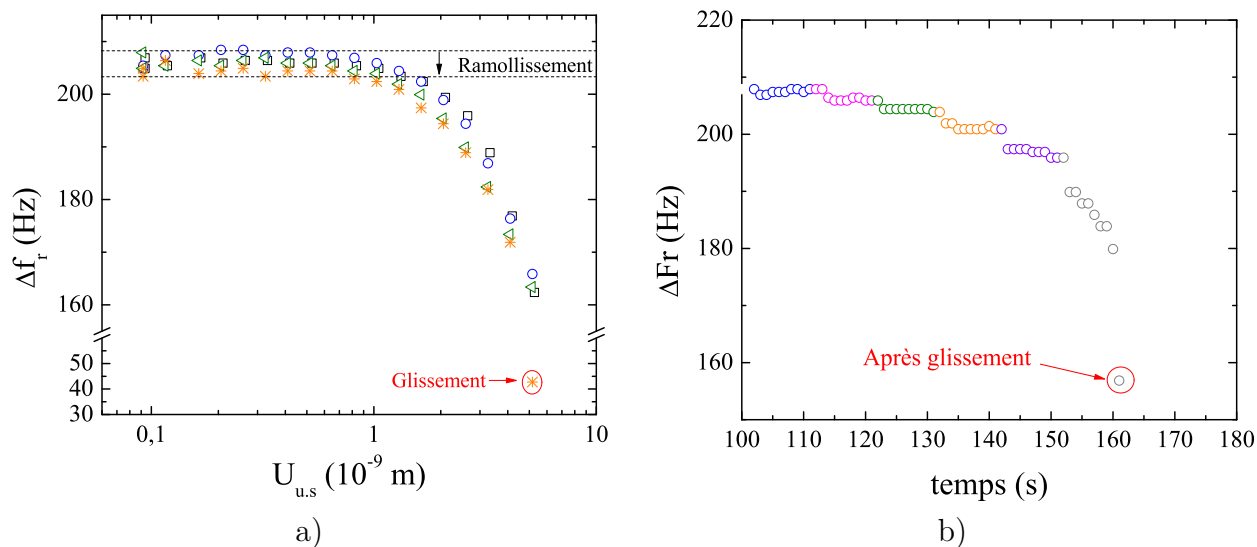


FIGURE 4.10 – a) Variation du shift fréquence Δf_R en fonction de l'amplitude oscillatoire à différents angles θ ; les symboles \square , \circ , \triangle et $*$ correspondent respectivement à $\theta = 0, 3, 13$ et 19 . b) Evolution de la fréquence de résonance pour $\theta = 19^\circ$ au cours du protocole de test à amplitude croissante au cours du temps (voir texte). Le quartz est recouvert d'une couche de thiol de type COOH.

ce phénomène plus en détail, notamment dans le cadre des matériaux granulaires soumis à des vibrations, dont l'effet est avéré.

Protocole : Pour un système donné (CH3 ou COOH), l'angle de repos est tout d'abord mesuré à 5 reprises sans appliquer d'oscillations. Puis, le système est incliné à un angle θ inférieur à l'angle de θ_R , et une rampe à oscillation croissante est effectuée. A une amplitude oscillatoire donnée, le système se met en mouvement, repéré aussi bien par le shift erratique mentionné précédemment (révélateur de la position) que par observation optique à l'aide d'une caméra. Puis la sonde est nettoyée comme précédemment par léger polissage, rinçage à l'eau et séchage sous gaz inerte.

4.3.1 Résultats et discussions

L'évolution de l'angle de repos en fonction de la force oscillatoire appliquée $F_{ac} = kU$ est tracée Figure 4.11, pour les deux types d'interface "CH3" et "COOH".

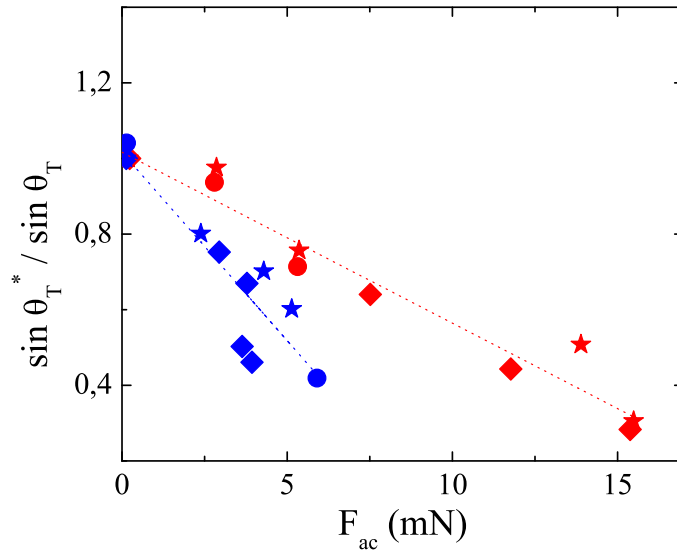


FIGURE 4.11 – Évolution de la force tangentielle statique normalisée à sa valeur sans vibrations, en fonction de la force tangentielle oscillatoire pour des échantillons $-COOH$ (rouge) et $-CH_3$ (bleu).

On voit que la force seuil statique diminue linéairement en fonction de F_{ac} .

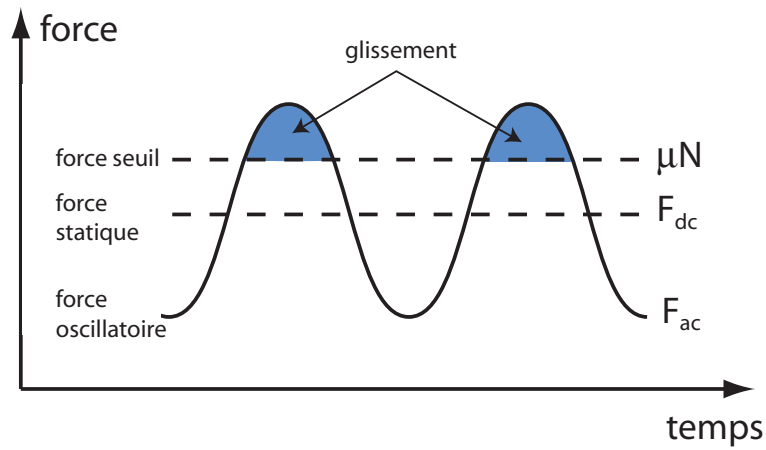


FIGURE 4.12 – Bilan des forces sur un système à seuil soumis à des forces statiques et dynamiques. Lorsque la somme des forces appliquées excède la force seuil, le mouvement a lieu sur une fraction de période, schématisée par la partie bleue.

A un niveau qualitatif, on pourrait tenter de décrire cet effet comme schématisé

4.3 Déclenchement du glissement à haute amplitude d'oscillation

sur la figure 4.12. Sur une fraction de période la résultante des forces est supérieure à la force de friction et le système peut avancer ainsi par "petit pas". L'équation du mouvement est :

$$m \ddot{x} = F_{dc} + F_{ac} \sin \omega t - \mu N \quad (4.13)$$

En introduisant la notation

$$\varepsilon = \frac{\mu N - F_{dc}}{F_{ac}} \quad (4.14)$$

on peut réécrire (4.13) sous la forme

$$\ddot{x} = \frac{F_{ac}}{m} (\sin \omega t - \varepsilon) \quad (4.15)$$

et après deux intégrations successives sur une fenêtre de temps où le système est en glissement, on obtient la distance parcourue

$$x = \frac{2F_{ac}}{m\omega^2} f(\varepsilon) \quad (4.16)$$

où

$$f(\varepsilon) = \cos^{-1}(\varepsilon) \left((1 - \varepsilon^2)^{1/2} - \varepsilon \cos^{-1}(\varepsilon) \right) \quad (4.17)$$

est comprise entre 0 (pour $\varepsilon = 1$) et $\pi/2$ pour $\varepsilon = 0$. On obtient ainsi une vitesse effective ("coarse grain")

$$\dot{X} = V = \frac{x}{T} = \frac{F_{ac}}{\pi m \omega} f(\varepsilon) \quad (4.18)$$

où $T = 2\pi/\omega$ est la période. Un calcul équivalent mais avec la force oscillatoire étant la force normale donne le même résultat avec μF_{ac} au lieu de F_{ac} . En remplaçant $\omega^2 = k/m$ et $F_{ac} = kU$ on obtient finalement une expression intuitive

$$V = \frac{U\omega}{\pi} f(\varepsilon) \quad (4.19)$$

qui indique que la vitesse macroscopique est équivalente à la vitesse oscillatoire, modifiée par la fonction $f(\varepsilon)$ (de l'ordre de 1) qui dépend du ratio des trois forces en jeu.

Ce scénario n'est pas satisfaisant dans notre cas. En effet, nous avons réalisé

différents tests en effectuant une rotation du quartz, ce qui modifie la polarisation. On voit Figure 4.11 que la polarisation n'a pas d'influence significative sur la diminution de la force seuil statique, et que seule la force appliquée importe. Ceci est confirmé pour une interface multicontact, comme le montrent les données de la Figure 4.13.

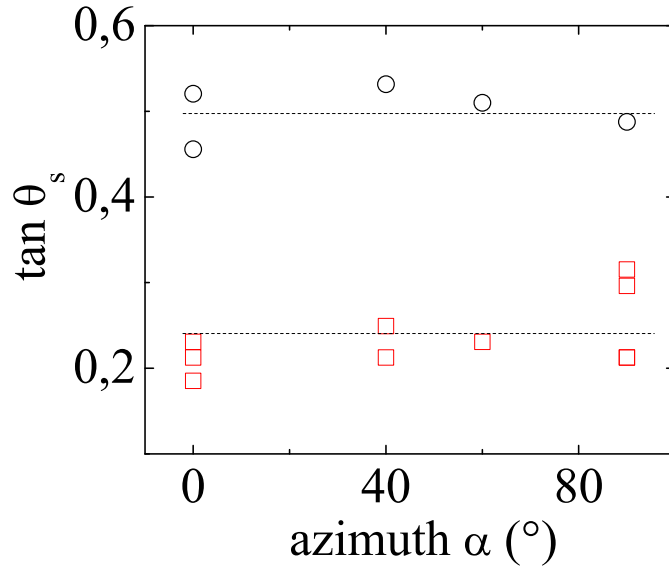


FIGURE 4.13 – Variation de l'angle de repos pour différentes polarisations. Les valeurs ont été obtenues avec un protocole légèrement différent de celui utilisé pour obtenir les points Figure 4.11 : l'amplitude oscillatoire est fixée à ~ 10 nm et le système est incliné progressivement jusqu'au glissement. Le patin est un cylindre d'acier et le quartz est rugueux, avec une rugosité rms proche du micron.

Le déclenchement du glissement à l'aide d'une modulation de la charge normale a été étudié récemment dans le cas d'interfaces multi-contact. La force oscillatoire est de basse fréquence ($f/f_0 \sim 10^{-1}$) et parallèle à la force tangentielle statique appliquée F_s [55]. Lorsque la force oscillatoire croît jusqu'à ce que $F = F_s + F_{osc} \sim \mu N$, alors un glissement auto-accélééré se produit. Il est possible de décrire ce phénomène à l'aide d'une équation du mouvement similaire à celle mentionnée ci-dessus mais en prenant en compte une expression du coefficient de friction donnée par la loi phénoménologique de Rice et Ruina (coefficient dépendant de la vitesse et de l'âge de l'interface). La bifurcation entre le régime piégé et le régime glissant

4.3 Déclenchement du glissement à haute amplitude d'oscillation

est bien décrite dès l'instant où on tient compte du couplage entre la raideur des aspérités et l'écoulement de la jonction [7].

Dans le cas d'une force oscillatoire ultrasonore, la fréquence $\omega \sim 3 \times 10^7$ rad.s⁻¹ est beaucoup plus grande que celle de la fréquence propre du système {sonde – interface}, $\omega_0 \sim (k/m)^{1/2}$ avec $k \sim 10^6$ N/m et $m \sim 10^{-4}$, soit $\omega/\omega_0 \sim 10^2$. Contrairement au régime quasi-stationnaire précédent, la force oscillatoire F_{ac} ne provoque pas de mouvement de glissement macroscopique dans la limite des hautes fréquences, en raison de l'inertie. Ce comportement est celui d'un oscillateur en régime forcé à une fréquence très supérieure à la fréquence propre.

Cependant, les oscillations hautes fréquences n'en ont pas moins une influence certaine sur l'état de la jonction. Une oscillation de forte amplitude réduit de manière significative le rayon de contact non-glissant, du rayon initial de a_H à c par l'intermédiaire de la croissance de l'anneau glissant. En conséquence, la contrainte tangentielle statique agissant sur la jonction augmente en raison des oscillations,

$$\sigma = \frac{F_{dc}}{c} \quad (4.20)$$

ce qui a pour conséquence de diminuer la force seuil

$$F_s = \sigma_s \times \pi c^2 \quad (4.21)$$

au lieu de $F_s = \sigma_s \times \pi a^2$ sans vibrations. Or, la proportion entre l'aire glissante et l'aire non-glissante est connue d'après le modèle de Mindlin

$$\frac{c}{a} = \left(1 - \frac{F_{ac}}{\mu N}\right)^{1/3}. \quad (4.22)$$

Après remplacement on obtient finalement

$$\frac{\sin \theta_R^*}{\sin \theta_R} \approx 1 - \frac{2 F_{osc}}{3 \mu_s N \cos \theta_R}. \quad (4.23)$$

En ajustant cette équation à nos données expérimentales Figure 4.11 on trouve $\mu_s \approx 2$ pour l'échantillon (COOH) et $\mu_s \approx 1$ pour l'échantillon (CH₃). Les coefficients ainsi obtenus sont plus grands que ceux obtenus à partir des mesures

statiques, mais cohérents avec les résultats précédent [50].

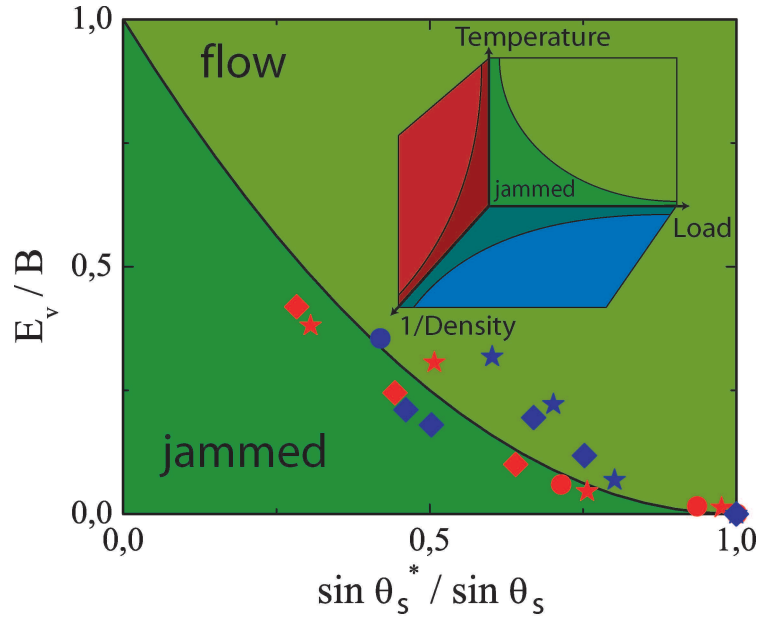


FIGURE 4.14 – Energie vibratoire nécessaire pour déclencher le glissement en fonction de la force seuil normalisée par sa valeur sans oscillation. Les surfaces de CH3 sont en bleu et les surfaces COOH en rouge. Inset : diagramme de jamming [56].

En raison de la nature scalaire de l'effet des oscillations, insensible à la polarisation, nous sommes amenés à considérer l'énergie vibratoire définie comme $E_v \approx (A/2)KU^2$ où K est la raideur du résonateur et A est le ratio de la surface de contact sur la surface de l'électrode. Comme $F_{ac} = kU$ on peut réinjecter l'expression de U dans l'équation (4.23) pour obtenir :

$$E_v \approx AK \frac{9\mu^2 N^2}{8k^2} \left(1 - \frac{\sin \theta_R^*}{\sin \theta_R}\right)^2. \quad (4.24)$$

L'expression (4.24) permet de tracer une courbe délimitant les états encore bloqués (bille immobile) et ceux correspondant à l'écoulement du système frictionnel. On voit que la forme du graphe est similaire à celle attendue dans un diagramme de « jamming » si l'on normalise l'énergie vibratoire par la constante B définie par $B = 9AK\mu^2 N^2/8k^2$ (Figure 4.14b)), qui indique l'ordre de grandeur de l'énergie vibratoire nécessaire pour la "fluidisation" de l'interface $\sim 10^{10}k_B T$. Le lien entre

4.3 Déclenchement du glissement à haute amplitude d'oscillation

cet ordre de grandeur et les propriétés structurales de l'interface n'est pas évident à ce stade. Nous reviendrons sur ce point dans la partie suivante, qui inclut une étude sur les films minces de polymère, pour lesquels les différents éléments dissipatifs en jeu lors peuvent être plus clairement identifiés.

Discussion

Equations constitutives

Le modèle ci-dessus montre que le modèle de Mindlin peut décrire les données de manière satisfaisante. L'hypothèse physique sous-jacente est que la partie de la jonction située dans l'anneau glissant est "fluidisée", et que les propriétés de la jonction dans cet état la rendent particulièrement inactive vis-à-vis de la réponse rhéologique macroscopique du contact.

Les interfaces frictionnelles sont en général bien décrites par le terme de Rice et Ruina, auquel Briscoe puis Baumberger ont donné une signification physique :

$$\sigma \sim \sigma_0 + k_B T \ln \frac{V}{V_*} \quad (4.25)$$

où V est la vitesse de glissement. En écrivant une vitesse de cisaillement $\dot{\gamma} \sim V/h$ où $h \sim 1$ nm est l'épaisseur de la jonction, on obtient une viscosité qui décroît très fortement avec $\dot{\gamma}$ à haut $\dot{\gamma}$, car $\eta \sim \ln \dot{\gamma} / \dot{\gamma}$.

Or la vitesse de cisaillement correspondant au glissement macroscopique est de l'ordre de $\dot{\gamma}_{dc} \sim V/h$ et celle du glissement oscillatoire est $\dot{\gamma}_{ac} \sim \omega U/h$, ce qui donne

$$\frac{\dot{\gamma}_{ac}}{\dot{\gamma}_{dc}} \sim \frac{\omega U}{V} \sim 10^2 \quad (4.26)$$

avec $V \sim 100 \mu.s^{-1}$, $U \sim 1$ nm et $\omega \sim 3 \times 10^7 \text{ rad.s}^{-1}$. On peut donc en déduire qu'approximativement, la viscosité de la jonction au sein de l'anneau glissant sous l'action de la force oscillatoire est 100 fois inférieure à celle imposée par le glissement stationnaire. Ce constat est également valable pour une autre classe d'interface frictionnelle ayant des propriétés de "shear thinning" décrite par une equation constitutive de type $\sigma \sim V^\alpha$. On s'attend donc à ce que l'effet décrit dans cette partie soit assez général : dès l'instant où les viscosités sont en parallèle, la partie

de la jonction située dans l'anneau glissant ne joue aucun rôle à des vitesses de glissement macroscopique (ici on a typiquement $V \sim 100 \mu\text{s}^{-1}$).

Au niveau local

Comme discuté en 1.3 page 17, la transition de glissement correspond une transition "solide - liquide". On peut comparer le temps de relaxation moléculaire de la jonction $\tau > 1$ ms à celui d'une oscillation $\tau_{ac} \sim 0.2 \mu\text{s}$. Il est clair que la jonction sollicitée à une telle fréquence ne peut relaxer et se trouve donc dans un état "fluide" de manière "permanente".²

L'énergie vibratoire en contact sphère-plan provoque le dépiégeage permanent de la jonction dans l'anneau glissant. Cette partie de la jonction peut donc s'écouler dans la direction de la contrainte statique sans nécessiter de travail particulier, puisqu'il est déjà fourni par les oscillations. Cela revient à dire que chaque "bloc nanométrique"³ contenu dans l'anneau glissant est soumis à une contrainte supérieure à son seuil d'instabilité mécanique, et est donc dans un état "fluide" (voir chapitre 1 paragraphe 1.3 page 18).

De ce point de vue, et dans le contexte de la plasticité des solides amorphes, les oscillations appliquées à l'aide du résonateur sur la jonction jouent le rôle d'une perturbation mécanique non corrélée au mouvement statique, à l'origine d'une augmentation de la température effective T_{eff} de la jonction. Ceci justifie a posteriori le tracé de la Figure 4.14 dans laquelle sont confondus les axes "température" et "énergie vibratoire".

La géométrie sphère-plan a ceci de spécifique qu'elle permet de dériver une expression analytique pour la fraction surfacique de blocs nanométriques fluidisés.

Conséquences pour les milieux granulaires

La discussion précédente suggère quelques spéculations dans le cas des milieux granulaires soumis à des vibrations. En effet, des vibrations induites par l'extérieur, ou générées par la dynamique locale elle-même, sont connues pour avoir des effets non-triviaux sur l'écoulement.

2. Ceci distingue nos expériences, effectuées à des fréquences ultrasonores, d'autres travaux récents de basse fréquence $\tau_{ac} \sim 10$ ms.

3. ou encore "volume d'activation", "STZ" ...

4.3 Déclenchement du glissement à haute amplitude d'oscillation

Jaeger et al. [46] ont soumis des systèmes granulaires à des hautes amplitudes de vibration et observé que l'énergie vibratoire a un effet similaire à une température effective lors de la relaxation de l'angle de repos.

Melosh propose un scénario différent, en émettant l'hypothèse que la pression acoustique P_a contrebalance la pression mécanique P tel que :

$$\sigma_s \sim \mu(P - P_a). \quad (4.27)$$

Cette phénoménologie est destinée notamment à comprendre l'effet de "fluidisation acoustique", qui caractérise le coefficient de friction (granulaire) extrêmement bas (~ 0.1) observé lors de certains glissements de terrains.

Nous proposons un scénario additionnel, basé sur nos observations locales sur un grain. En effet, une loi phénoménologique [57] décrivant le comportement d'un matériau granulaire sous gravité est :

$$F = \frac{\alpha}{1 + \alpha_1 \dot{\gamma}^2} + \beta \dot{\gamma}^2. \quad (4.28)$$

Le premier terme contient essentiellement l'énergie potentielle dissipée durant les sauts ayant lieu durant l'écoulement, ainsi que la dissipation frictionnelle au cours du glissement de grains sur leur voisin. α représente le coefficient de friction entre les grains et α_1 est une constante prenant en compte la géométrie des grains. Le second terme contient l'énergie cinétique dissipée durant les collisions par l'intermédiaire de la constante β .

Notamment à faible vitesse de cisaillement, le coefficient de friction inter-grains joue un rôle important dans la dynamique au cours d'une avalanche.

Des vibrations appliquées à un système granulaire peuvent provoquer la rupture de contacts inter-grains et/ou le réarrangement des positions des grains, source d'émission acoustique sur une très large bande passante, allant jusqu'à plusieurs *MHz*. Ceci est bien montré lors de la rupture d'une interface multicontact à proximité de laquelle sont placés des capteurs de déplacement très précis [58].

Comme nous l'avons indiqué dans notre discussion, ces vibrations de haute fréquence peuvent modifier le seuil de glissement statique des particules avoisinant

l'événement de rupture⁴ et ainsi participer à la diminution du coefficient de friction macroscopique du système. Notons que l'énergie nécessaire pour le réarrangement des grains par glissement est de deux ordre de grandeur plus petit que la barrière d'énergie de saut, $E_j \sim Nh_0 \sim 10^{12} k_B T$ où $h_0 \sim 1\mu m$ est la hauteur de l'aspérité. En terme de fluidisation acoustique le mécanisme discuté offre une alternative à l'équilibre de la surcharge P *via* la P_a , laquelle nécessite une énergie acoustique inhabituellement élevée [21].

Notons que pour une amplitude donnée, les oscillations de la force normale N_{osc} de plus basse fréquence dont l'effet est réduit de $N_{osc} = F_{osc}/\mu s \sim 5F_{osc}$ pourrait être moins efficace que les oscillations de cisaillement pour fluidiser l'aire de contact collée.

4.4 Vieillessement structural

A cours des expériences de déclenchement ci-dessus, la sonde glisse de telle manière qu'elle parcourt toute la surface du quartz et arrive en butée sur la bague de serrage. Ce type d'événement correspond en tous points à de que l'on observe sans appliquer de vibrations lorsqu'on mesure le coefficient de friction à l'aide du plan incliné.

Nous avons remarqué qu'il est possible de provoquer des "milli-glissements" en appliquant, à faible inclinaison, une haute amplitude oscillatoire pendant $\sim 1 s$. Le système glisse rapidement puis s'arrête après avoir parcouru $\sim 100 \mu m$. Il est alors possible d'utiliser ce protocole pour rajeunir l'interface, et caractériser son vieillissement ensuite.

La sonde utilisée est composée des trois lentilles de BK7 (voir partie expérimentale). Les quartz sont recouverts de thiols comme en partie expérimentale.

Après avoir déposé la sonde sur le quartz, l'angle d'inclinaison est fixé à $\theta = 6^\circ$. On suit le vieillissement géométrique pendant 3 heures minimum en mesurant shift en fréquence et le facteur de qualité en linéaire. Une fois le contact stabilisé, on applique une oscillation non-linéaire de 0 dBm pendant 2 secondes qui provoque un "saut", suivie immédiatement par une mesure linéaire pendant $\sim 1000 s$.

4. Sur une distance comparable à la longueur d'onde locale $\sim mm$.

4.4 Vieillessement structural

Nous avons effectué 20 déclenchements à l'aide du protocole ci-dessus. Les distances glissées (Figure 4.15) montrent, comme on pourrait s'y attendre, qu'aucune distance caractéristique n'est privilégiée.

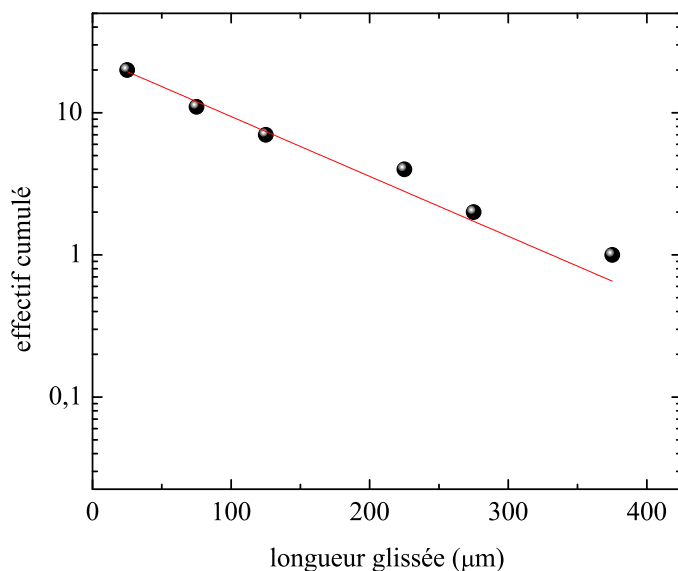


FIGURE 4.15 – Effectif cumulé de la distance glissée pour les événements de "milli-glissement" provoqués par une brève impulsion à 0 dBm.

On voit Figure 4.16 que juste après le glissement, la fréquence de résonance augmente avec le temps alors que la sonde est immobile. Étant donné que la sonde a glissé sur une distance importante, le shift en fréquence est fortement modifié par la position et nous perdons toute information quantitative issue de la valeur absolue du shift en fréquence. En revanche, quelle que soit la position de la sonde, l'évolution temporelle de la valeur relative du shift en fréquence "post-glissement" est bien une signature de la réponse des contacts.

Avant glissement nous laissons vieillir géométriquement les contacts durant environ 3 h. Pendant cette période, la raideur latérale (via Δf_r) croît avec le temps tandis que la dissipation (via ΔQ^{-1}) demeure constante (voir figure 4.17). La différence $\Delta f_r - \Delta f_{r0}$ atteint 30 – 50 Hz après un temps d'attente de 10 000 s. Nous observons que la raideur k_c n'évolue pas durant les 1000 premières secondes : ce temps de latence a été obtenu pour tous les vieillissements effectués avant d'avoir provoqué le glissement.

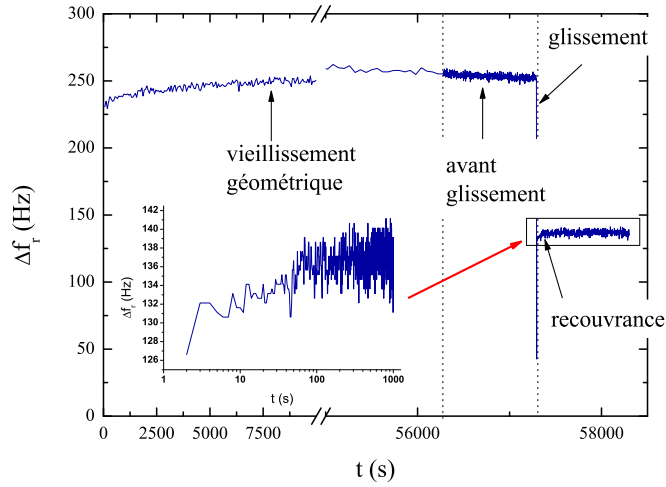


FIGURE 4.16 – Illustration du protocole employé : dans un premier temps le contact vieillit durant un temps t_w (≥ 3 h). Le test consiste ensuite en une première phase de mesures linéaires pendant 1000 secondes, suivie du déclenchement et une seconde phase de mesures linéaires durant $\Delta t = 1000$ secondes.

L'origine du vieillissement observé avant glissement a été discutée dans la partie 1.1.3.1 page 12. L'augmentation de la raideur latérale est due à l'accroissement de l'aire de contact par le mécanisme de fluage des aspérités en contact. Dans l'équation (1.9) page 12 lorsque le temps de vieillissement t est très petit devant le temps de coupure τ l'aire de contact ne varie pas. Par contre lorsque le temps de vieillissement t devient plus grand que le temps de coupure τ alors la déformation plastique des aspérités se produit.

Après glissement nous observons que $\Delta f_r - \Delta f_{r0}$ croît avec le temps pour atteindre 10–15 Hz en fin de test, tandis que la dissipation ne varie pas de manière significative (voir fig 4.18). Au bout d'environ 200 s, la raideur k_c n'évolue plus en fonction du temps : cette saturation est obtenue pour tous les recouvrements obtenus après glissement.

Comme indiqué figure 4.16, le temps pendant lequel nous avons caractérisé le comportement post-glissement est de l'ordre de 1000s, très inférieur aux 3 h préalables de vieillissement géométrique. Le vieillissement géométrique étant logarithmique, ceci permet de supposer que l'effet est négligeable après glissement. Cette augmentation de la raideur k_c serait liée à un changement des propriétés

4.4 Vieillessement structural

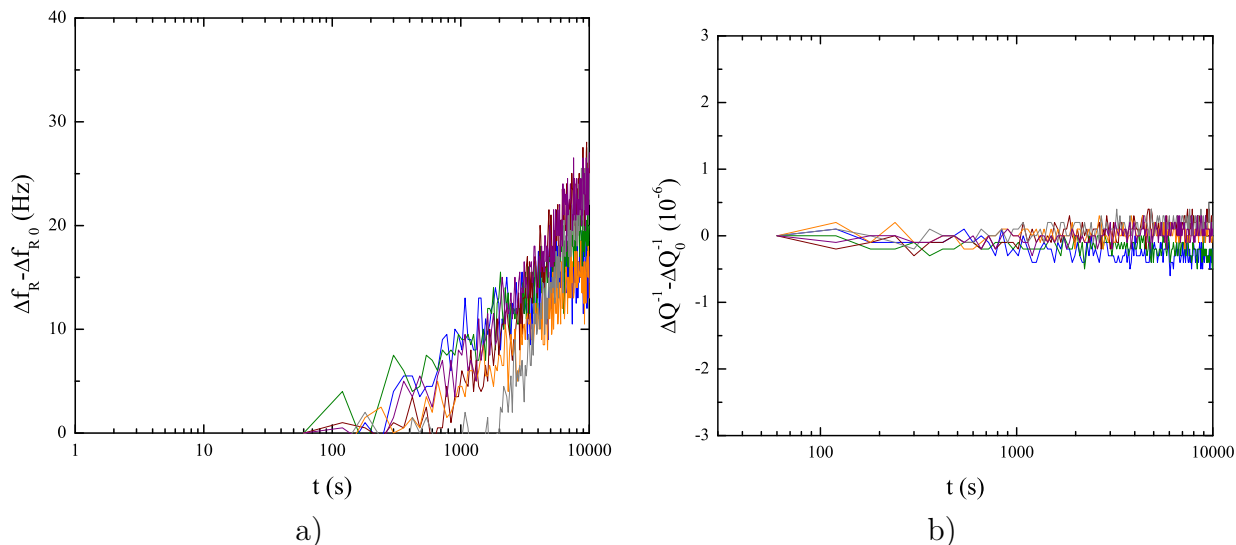


FIGURE 4.17 – Vieillessement avant milli-glissement des contacts sous contrainte tangentielle statique : a) Shift en fréquence b) Dissipation.

élastiques de la jonction provoquée par le glissement, c'est à dire un vieillissement structural.

Des différences fondamentales apparaissent entre le vieillissement géométrique (observé avant glissement) et le vieillissement structural (observé après glissement). Le vieillissement géométrique présente un temps de latence de 1000 s au dessous duquel aucune variation de la raideur du contact n'est mesurable tandis que le vieillissement structural affiche un temps de saturation de 200 s au delà duquel la raideur ne varie plus. Après glissement la raideur latérale croit de 10% au bout de 200 s alors qu'au cours du vieillissement géométrique il est nécessaire d'attendre 10 000 s pour obtenir un accroissement similaire.

Le vieillissement géométrique du contact devrait se traduire par une augmentation de la raideur latérale et de la dissipation avec le temps. Les mesures en ΔQ^{-1} ne sont pas assez précises et sensibles pour déceler une variation significative de la dissipation. Par contre les mesures en k_T ajustées par l'équation 3.16 établit une pente m de 0,06. Ce résultat est en accord avec ceux obtenus en 3.3. Cependant les expériences présentées en 3.3 ont été réalisées à l'intérieur d'une enceinte où les conditions de température et d'humidité sont contrôlées. Par contre les expériences

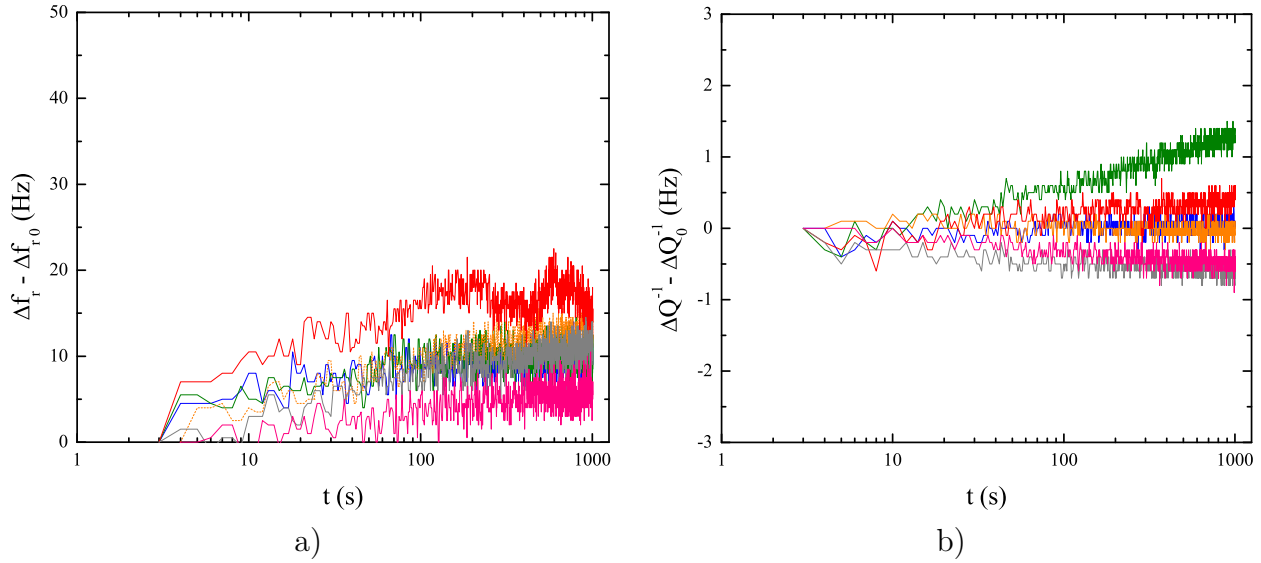


FIGURE 4.18 – Recouvrance de la raideur et de la dissipation après un milliglisement

dans cette section ont été opérées à l'air libre sans contrôle de la température et de l'humidité.

Après glissement le vieillissement structural se manifeste par une augmentation de la raideur latérale et la dissipation du contact augmente avec le temps. La difficulté de mesurer précisément le ΔQ^{-1} rend complexe la détection d'une variation de la dissipation. Cependant l'ajustement des mesures en k_T par en $k_T = k_{T0} [1 + \beta \log(t/t_0)]$ donne une pente β de 0,03. Le résultat obtenu pour le vieillissement structural est en contradiction avec les données de la littérature [8]. Le vieillissement structural a une pente β supérieure d'un ordre de grandeur par rapport à Bureau et al. et est du même ordre de grandeur que le vieillissement géométrique. Cependant nous avons laissé suffisamment vieillir géométriquement les contacts pour que l'augmentation de la raideur observée après glissement soit attribuable uniquement aux propriétés physiques de l'interface. Par contre, la cinétique de ce vieillissement peut dépendre de la nature de l'interface (vitreux, viscoélastique, etc).

L'évolution logarithmique du coefficient de friction par le mécanisme du fluage

4.4 Vieillessement structural

des aspérités donne une pente logarithmique $\frac{d\mu_s}{d\ln t} \sim 10^{-2}$ quelques soient les matériaux en contact [7]. Bureau et al. [8] ont relié le vieillissement structural à l'état de la jonction : lors du glissement la jonction est cisailée et un rajeunissement des propriétés élastiques se produit sous l'effet du cisaillement. Postérieurement au glissement, la jonction est le siège d'un renforcement des propriétés élastiques. Les auteurs ont mesuré une pente logarithmique $\frac{d\mu_s}{d\ln t} \sim 10^{-3}$ pour des systèmes PMMA - verre + silanes.

Les propriétés élastiques de la couche interfaciale sont données par la relation $k_{jonct} = \frac{\pi a^2(t)}{h} G'(t)$ avec $a(t)$ le rayon de contact, h la hauteur de la jonction et $G'(t)$ le module élastique en cisaillement. L'aire de contact est constante ($a^2(t_w) = a^2(t_w + \Delta t, \Delta t = 1000s)$) alors l'augmentation de la raideur peut être attribuée à un accroissement du module élastique G' avec le temps, qui se produit après glissement. Ce type de comportement a été observé dans les fluides à seuil et dans les solides vitreux « faibles ».

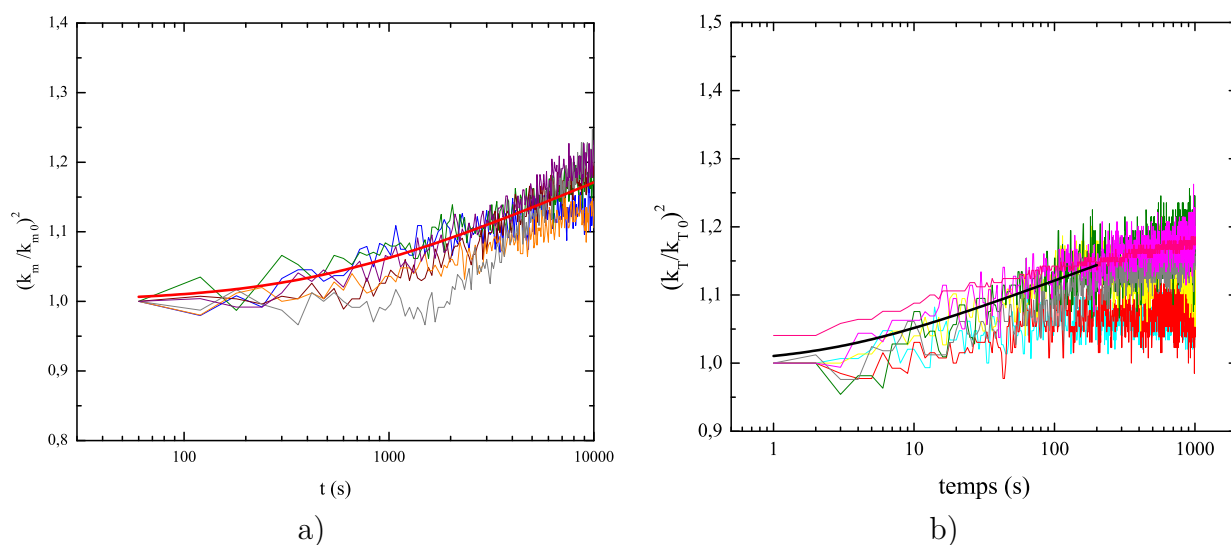


FIGURE 4.19 – Les courbes a) de vieillissement géométrique ajustées en rouge par l'équation 3.16 et b) de vieillissement structural ajustées en noir par l'équation $k_T = k_{T0} [1 + \beta \log(t/t_0)]$

4.5 Conclusions

La raideur latérale d'une interface peu adhésive diminue avant le seuil de glissement, que ce soit par l'application d'une force tangentielle statique ou oscillatoire, en raison d'une diminution de l'aire adhésive ainsi qu'en raison de la croissance d'un anneau glissant.

Le glissement déclenché en dessous du seuil statique par des vibrations de cisaillement ultra-sonores et non-linéaires est du à la fluidisation acoustique "permanente" de l'aire de contact collée, réduisant ainsi le coefficient de friction de statique μ_s . L'intensité plutôt que la polarisation de l'onde ultra-sonore importe dans une telle transition de « unjamming » d'un état statique vers un état glissant suggérant que les ultrasons jouent le rôle de température effective.

Il semble que le vieillissement structural a été mis en évidence après avoir déclenché le glissement par une brève impulsion non-linéaire. L'aire de contact a suffisamment vieilli pour demeurer constante lors de la recouvrance de la raideur k_c . L'accroissement de la raideur latérale qui se développe à la suite du glissement a pour origine le renforcement de la couche interfaciale via l'augmentation du module élastique en cisaillement $G'(t)$ avec le temps.

Chapitre 5

Glissement stationnaire sous oscillations tangentielles

Le chapitre précédent propose un scénario simple pour expliquer la diminution du coefficient de frottement statique sous vibrations. Lorsque la contrainte statique est inférieure au seuil de glissement, les vibrations peuvent fluidifier une partie du contact de manière permettre le mouvement.

Au niveau microscopique, la transition de glissement correspond à l'initiation d'une dynamique hétérogène semblable à celle des solides amorphes vitreux au dessus du seuil de plasticité, comme proposé par Robbins [59], Granick [11] et Caroli [7]. Cependant, les détails de cette dynamique sont encore assez mal compris, en raison de la difficulté du problème au niveau théorique (notamment en ce qui concerne le bruit mécanique) ainsi que devant la complexité expérimentale en relation avec la structure et les propriétés mécaniques de films nanométriques confinés et amorphes.

Les vibrations sont aussi connues pour affecter le glissement stationnaire, comme montré pour des interfaces de PMMA (polymère vitreux) [52] ou pour des monocouches de petites molécules [24]. Nous étudions ici le cas des interfaces polymère - solide, pour lesquelles la dynamique frictionnelle trouve son origine dans des mécanismes différents des solides amorphes vitreux mentionnés ci-dessus.

La première partie du chapitre comporte une étude détaillée des processus dissipatifs en jeu lors du cisaillement oscillatoire d'un film mince de polymère sur

une grande plage d'amplitude d'oscillation. Dans la seconde partie, nous étudions l'effet de ces mêmes vibrations sur la vitesse de glissement stationnaire à l'aide du plan incliné.

5.1 Interfaces polymère - solide

5.1.1 Structure

Une chaîne macromoléculaire déposée sur une surface solide s'adsorbe par l'intermédiaire de multiples interactions entre les segments et la surface. Il en résulte une topologie assez complexe, avec la formation de boucles, trains, et chaînes pendantes comme illustré en Figure 5.1. Etant donné le nombre important de segments

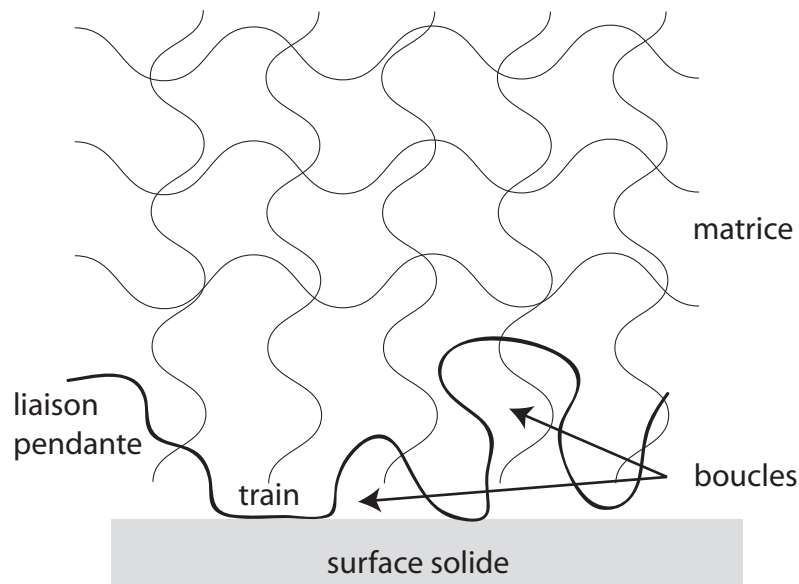


FIGURE 5.1 – Macromolécule (trait épais) adsorbée sur une surface solide (partie grisée) et interagissant avec le reste de la matrice (trait fin).

adsorbés, la chaîne en contact avec la surface a une probabilité très faible d'être détachées de la surface lorsqu'une contrainte est appliquée. On peut donc considérer les chaînes en contact avec la surface solide comme "immobiles".

De ce fait, un film de polymère sous cisaillement se déforme par l'intermédiaire du mouvement relatif de la matrice par rapport aux chaînes adsorbées en surface

5.1 Interfaces polymère - solide

[60]. C'est donc l'interaction chaînes adsorbées - matrice qui domine la dissipation.

On voit que la chaîne adsorbée interagit avec le reste de la matrice de manière non triviale. Certains bouts de chaîne de la matrice sont capables de s'enchevêtrer avec une partie de la chaîne adsorbée sur la surface solide. Si les chaînes comportent N monomères de taille b alors une molécule s'inscrit dans une sphère de rayon $R = aN^{1/2}$ et l'ordre de grandeur du volume occupé est donc $R^3 \sim a^3 N^{3/2}$. Une molécule faisant intrusion dans le volume R^3 recrute environ N monomères et occupe un volume "solide" $V \sim Na^3$. De ce fait, le nombre de molécules capables de s'insérer dans le volume occupé par une autre est de l'ordre de

$$X \sim R^3/V \sim N^{1/2}. \quad (5.1)$$

On considère que les chaînes de la matrice en interaction avec les chaînes adsorbées sont piégées (et non immobiles). Dans un film de polymère, on a donc

$$X = \frac{\text{nombre de chaînes piégées/unité de surface}}{\text{nombre de chaînes immobiles/unité de surface}} \quad (5.2)$$

Comme le nombre de chaînes immobiles/unité de surface est $\nu_i \sim 1/b^2 N$ on obtient finalement un ordre de grandeur du nombre de chaînes piégées [60]

$$\nu_p \sim X\nu_i \sim \frac{1}{b^2 N^{1/2}}. \quad (5.3)$$

La densité surfacique de chaînes piégées intervient de manière quantitative dans l'expression de la contrainte seuil.

5.1.2 Profil d'écoulement et loi constitutive

On considère Figure 5.2 un film de polymère d'épaisseur h , soumis à une contrainte de cisaillement σ [60]. Sur la surface inférieure, la contrainte est

$$\sigma = k_s V = \eta_s \left. \frac{dV}{dz} \right|_{z=0} \quad (5.4)$$

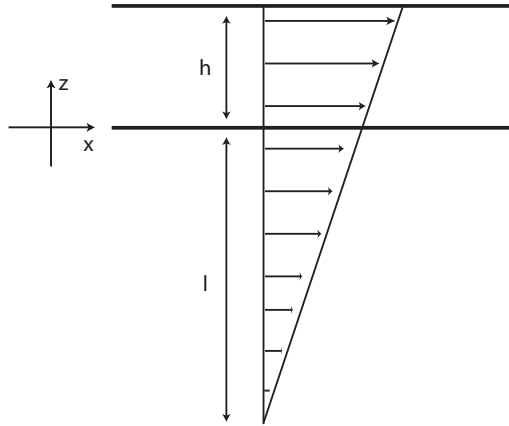


FIGURE 5.2 – Profil d'écoulement dans un film mince de hauteur h . La distance pour laquelle le profil d'écoulement s'extrapole à 0 est la longueur de glissement l .

où k_s et η_s sont les coefficient de friction et la viscosité en surface. La longueur de glissement l s'écrit alors

$$l = \frac{\eta_s}{k_s}. \quad (5.5)$$

Puisque k_s s'écrit aussi $k_s = \eta_0/b$ où η_0 est la viscosité d'un fluide composé de segments, si on prend pour la viscosité $\eta_s = \eta = \eta_0 \frac{N^3}{N_e^2}$ où η est la viscosité du polymère et N_e le nombre de segments entre enchevêtrements alors on obtient

$$l = b \frac{N^3}{N_e^2}. \quad (5.6)$$

Pour les polymères on voit qu'avec $N \sim 100$, $N_e \sim 10$ et $b \sim 1$ nm on a $l \sim 10$ μ m. Pour les films minces de polymères on est toujours dans des conditions où $l \gg h$.

De ce fait, l'écoulement s'effectue dans une bande de cisaillement très fine et d'épaisseur D telle que

$$k_s = \frac{\eta_R}{D} \quad (5.7)$$

avec $\eta_R = N_R \eta_0$ la viscosité du mode de Rouse comportant N_R segments tels que $D = b N_R^{1/2}$.

5.2 Contrainte seuil et dissipation à haute amplitude de vibration

Nos études précédentes ont montré que la raideur et la dissipation d'un contact sphère-plan sollicité par une vibration tangentielle à haute fréquence [50] est bien décrite par le modèle de Mindlin pour une amplitude de vibration $u_T > 1$ nm. Lorsque u_t augmente, typiquement aux alentours de la force seuil, le comportement n'est pas connu.

5.2.1 Réponse ultrasonore

Nous avons analysé la réponse d'un contact constitué d'un film mince de polyisobutylène (PIB, système identique à celui de la partie 3.2.1 page 47) spin coaté sur le quartz, pour des épaisseurs de 10 et 20 nm. Le protocole utilisé est sché-

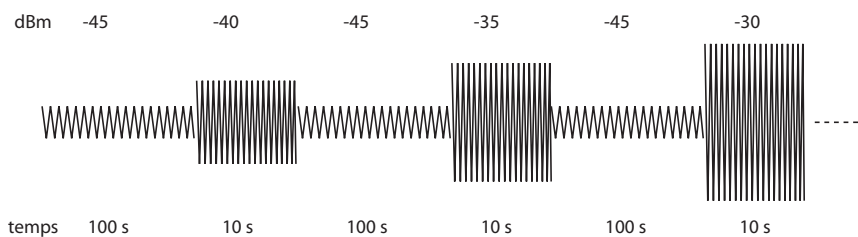


FIGURE 5.3 – Protocole de mesure. De basses amplitudes d'oscillations (-45 dBm, 0.1 nm) alternent avec de plus hautes amplitudes d'oscillation, dont l'ampleur augmente au cours du temps. La plus haute amplitude correspond à 10 dBm, soit environ $30 - 40$ nm

maté en Figure 5.3. Des cycles à haute amplitude pendant 10 s sont alternés avec des cycles linéaires à -45 dBm pendant 100 s. Ceci permet de détecter une modification des propriétés linéaires de l'interface suite à l'application d'une haute amplitude de cisaillement (dégradation, fracture ...).

Un exemple typique de réponse est donné en Figure 5.4. Les "pics" correspondent aux hautes amplitudes d'oscillation tandis que les basses amplitudes correspondent aux périodes plus longues. On observe trois régimes. Les deux premiers correspondent (1) au régime linéaire et (2) au régime non-linéaire décrit par le modèle de Mindlin. Dans le régime (3), le shift en fréquence continue sa décroissante

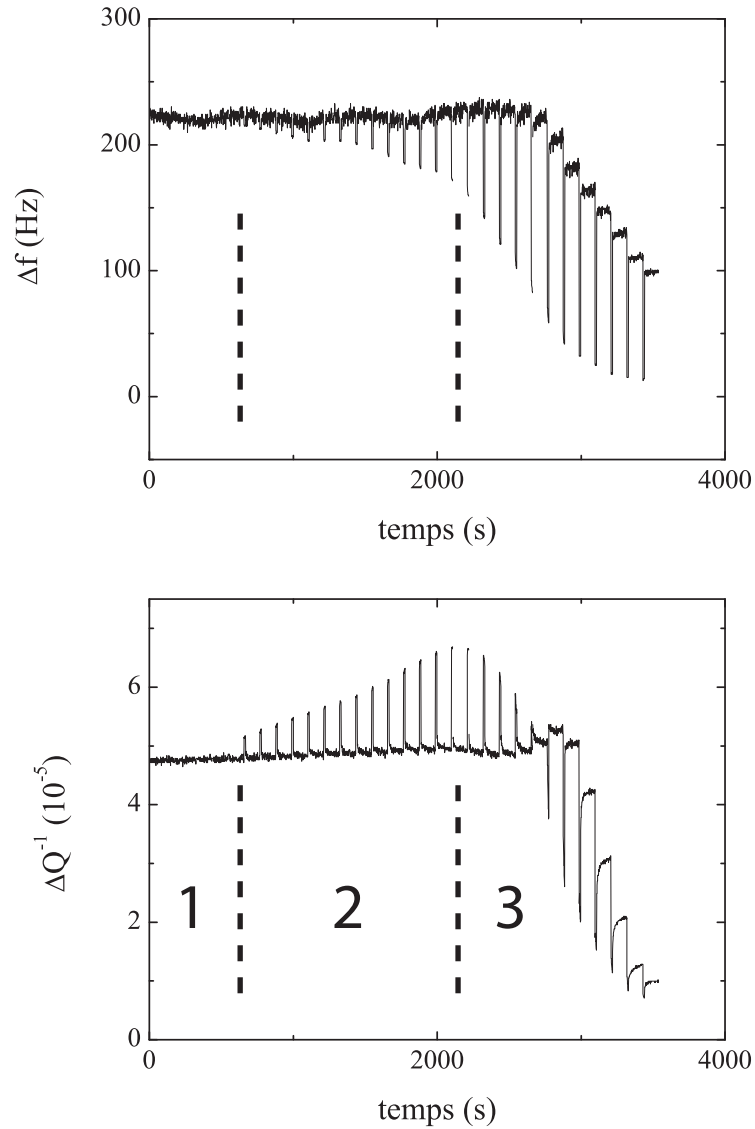


FIGURE 5.4 – Shift en fréquence (en haut) et en dissipation (en bas) en fonction du temps au cours d’une rampe en amplitude de -45 à 10 dBm (voir protocole figure 5.3).

mais avec un changement de pente, alors que l’inverse du facteur de qualité diminue. Après avoir relevé les valeurs de Δf et ΔQ^{-1} pour chaque dBm, on peut tracer l’allure des courbes en fonction de l’amplitude comme en Figure 5.5, où les régimes 1 à 3 sont annotés. Notons dès à présent l’ajout d’un régime 4, qui

5.2 Contrainte seuil et dissipation à haute amplitude de vibration

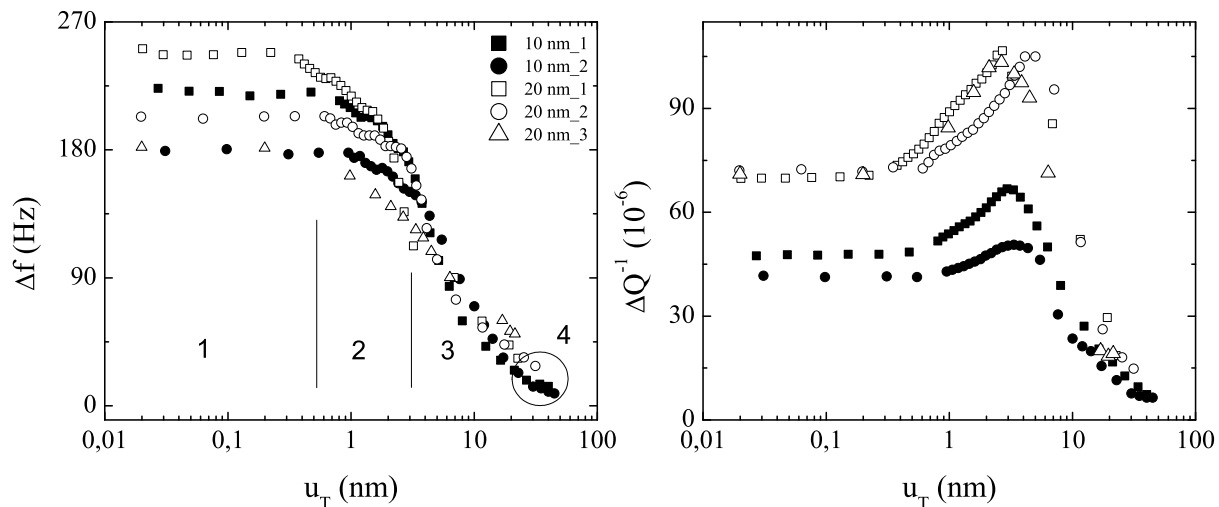


FIGURE 5.5 – Shift en fréquence et en dissipation en fonction de l’amplitude de vibration.

n’est pas identifiable facilement à partir de l’allure des courbes mais correspond à une transition vers la fracture. Nous reviendrons sur ce point dans le paragraphe suivant.

L’utilisation du modèle de Mindlin pour des films de 10 à 20 nm n’étant pas évidente *a priori*, on peut évaluer la pertinence de l’interprétation du régime 2 en évaluant le coefficient de friction à partir des raideurs et des dissipations (voir Figure 5.6). On voit que les deux épaisseurs sont difficilement distinguables. La raideur et la dissipation ont été modélisées respectivement par les équations :

$$\frac{k}{k_M} = \left(1 - \frac{F_T}{6 \mu N}\right) \quad (5.8)$$

et

$$\frac{\Delta Q \pi K 36 G^* a N}{k_T^3} = \frac{u_T}{\mu}. \quad (5.9)$$

Le coefficient de friction provenant de la moyenne de tous les fits linéaires effectués sur les mesures de raideur (Figure 5.6 gauche) est de $\mu_k \approx 0.38 \pm 0.14$, alors que celui provenant de la dissipation (Figure 5.6 droite) est de $\mu_{\Delta Q^{-1}} \approx 0.12 \pm 0.03$.

Comme mentionné précédemment, la différence entre les deux estimations dé-

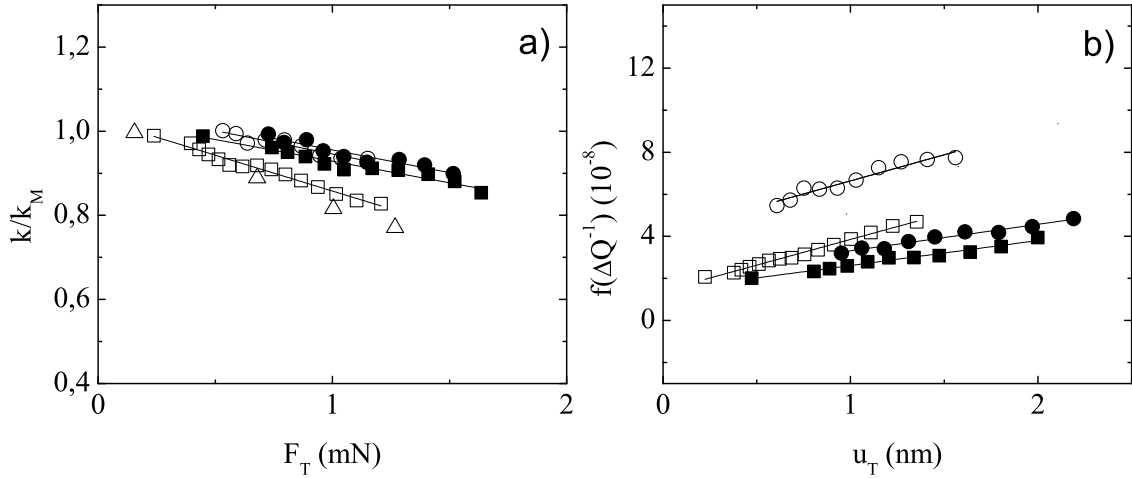


FIGURE 5.6 – Shift en fréquence et en dissipation en fonction de l’amplitude de vibration. La fonction $f(\delta)$ correspond au terme de gauche de l’équation 5.9.

pend de la valeur absolue du module G^* , qui entre en jeu de manière quantitative dans la valeur de la pente pour la dissipation. De plus, l’utilisation d’une loi constitutive de frottement sur des contacts de faible taille pose aussi problème en raison du faible nombre de nanoblocs sondés [7] (voir page 88).

Néanmoins, la consistance entre les ordres de grandeurs des coefficients de friction suggère bien que le régime 2 est un régime de micro-glissement, tel que décrit en détail dans les chapitres précédents.

5.2.2 Après Mindlin ?

Dans le régime 3, le facteur de qualité diminue, ce qui implique que l’énergie dissipée par cycle évolue plus lentement que quadratiquement. Ne connaissant pas les détails de la courbe amplitude - force au delà de la force seuil, on suppose un cycle ayant la forme la plus simple possible, comme indiqué sur la Figure 5.7. Au delà de l’amplitude correspondant à la force seuil, la force est constante et égale à la force seuil. Lors de chaque changement de sens, la trajectoire suivie reste celle de Mindlin de sorte que la dissipation maximum correspondant à ce régime [53]

$$\Delta W_M = \frac{3}{20} \frac{\mu^2 N^2}{aG^*} \quad (5.10)$$

5.2 Contrainte seuil et dissipation à haute amplitude de vibration

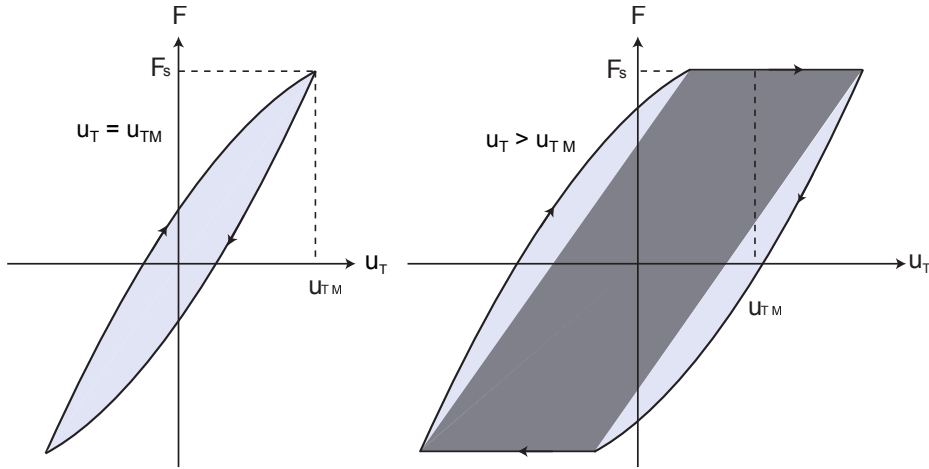


FIGURE 5.7 – A gauche : boucle d'hystérésis pour une amplitude u_{TM} correspondant à une force égale à la force seuil. L'énergie dissipée est l'aire en gris-clair. A droite : pour $u_T > u_{TM}$. L'énergie dissipée supplémentaire est en gris foncé.

(partie claire sur la Figure 5.7) est toujours comptée.

La dissipation due au glissement "total" à la vitesse ultrasonore est de l'ordre de

$$\Delta W_G = 4F_s(u_T - u_{TM}). \quad (5.11)$$

Comme l'énergie dissipée totale est

$$\Delta W_d = \Delta W_M + \Delta W_G \quad (5.12)$$

on évalue l'inverse du facteur de qualité :

$$\Delta Q^{-1} = \Delta Q_M^{-1} + \frac{1}{2\pi} \frac{\Delta W_G}{\frac{1}{2} K u_T^2} \quad (5.13)$$

et après réarrangement

$$\Delta Q^{-1} \approx \frac{1}{2\pi} \left(\frac{3k_M^2}{10KaG^*} + \frac{8F_s(u_T - u_{TM})}{K u_T^2} \right). \quad (5.14)$$

On voit que $\Delta Q^{-1} \sim 1/\delta$ pour $u_T \gg u_{TM}$, ce qui correspond assez bien aux mesures expérimentales après inspection des courbes (voir Figure 5.5).

A partir de cette analyse et de l'équation (5.14), l'énergie perdue par cycle due au glissement total est donnée par

$$g(u_T) = 2\pi K \left(\Delta Q^{-1} - \frac{3}{10G^*} k_m^2 \right) u_T^2. \quad (5.15)$$

Cette valeur, tracée en fonction de l'amplitude d'oscillation, devrait donner une droite de pente $8F_s$. Les valeurs obtenues sont tracées en Figure 5.8 a).

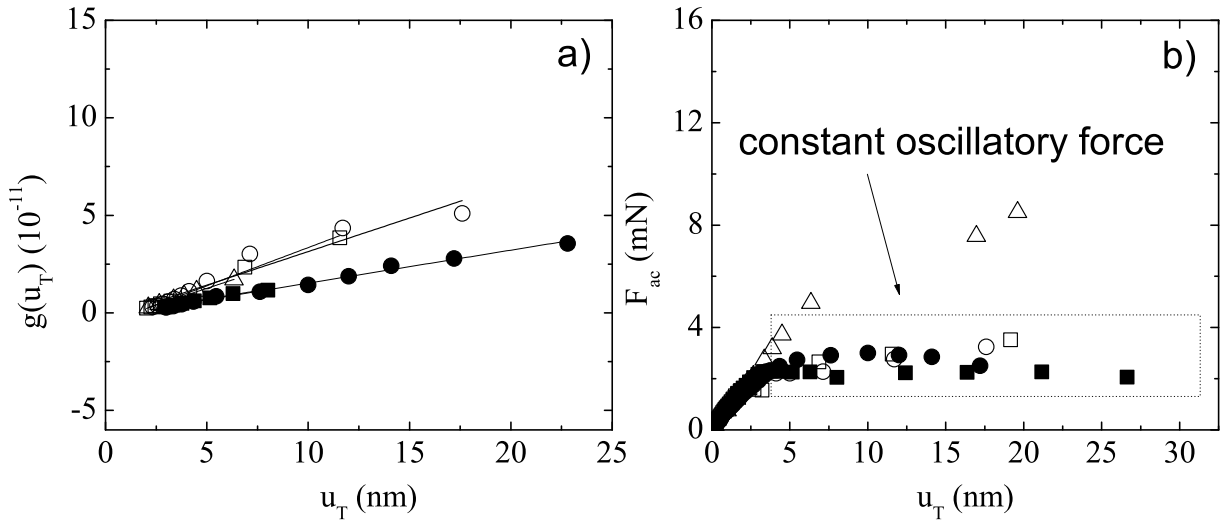


FIGURE 5.8 – a) Energie dissipée en fonction de l'amplitude d'oscillation. b) Force oscillatoire en fonction de l'amplitude. Les données expérimentales sont dans le régime 3.

Les fits linéaires des points ainsi obtenus donnent ainsi $F_s \approx 3,7 \pm 1,6$ mN.

Pour être acceptable, cette valeur de F_s doit correspondre à un régime où le produit $k u_T \sim F_s$ est constant, ce qui est imposé par le modèle Figure 5.7. On voit que c'est bien le cas Figure 5.8 b), où les valeurs obtenues $F_s \sim 2 - 3$ mN correspondent assez bien à la valeur de F_s calculée à partir de la dissipation.

Cette confirmation, mise en lumière grâce à une mesure indépendante de la raideur, conforte le scénario proposé. Dans le régime de glissement total, la contrainte s'écrit

$$\sigma_s \sim kV \quad (5.16)$$

et comme $\sigma_s \sim \frac{F_s}{\pi a^2} \sim 10^6$ Pa, on obtient $k \sim \frac{\sigma_s}{u_T \omega} \sim 10^7$ Pa.s.m⁻¹. On peut donc

5.2 Contrainte seuil et dissipation à haute amplitude de vibration

calculer le coefficient de friction monomérique de l'ordre de $\zeta \sim ka^2 \sim 10^7 \times 10^{-18} \sim 10^{-11} \text{ N.s.m}^{-1}$. C'est beaucoup plus petit que le coefficient de friction monomérique du PIB $\zeta \sim 4.5 \times 10^{-8} \text{ N.s.m}^{-1}$.

Il est fortement possible que les oscillations de haute amplitude modifient fortement la dynamique du film.

5.2.3 Fracture

Lorsque l'amplitude d'oscillation est au delà d'un seuil, nous observons de plus que le rayon de contact diminue. Une succession d'images montre ce phénomène en Figure 5.9 et 5.10. Même si les oscillations sont polarisées et donc unidirection-

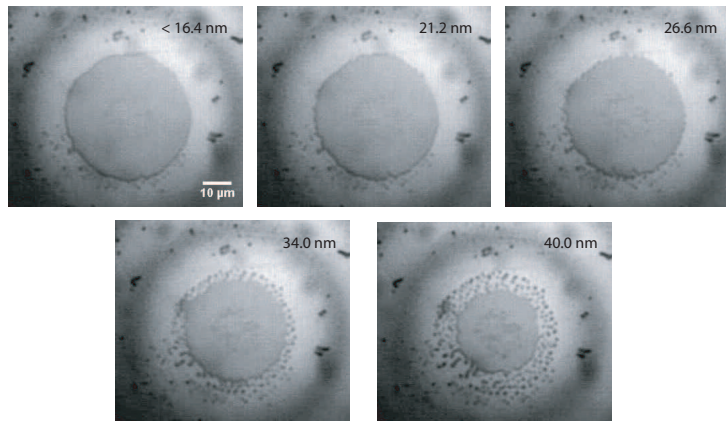


FIGURE 5.9 – Images du contact en fonction de l'amplitude d'oscillation pour un film de 10 nm de PIB.

nelles, les images montrent que la géométrie de fracture est circulaire. De plus, la morphologie en forme de gouttelettes suggère que le film "démouille".

On regroupe dans la Figure 5.11 la mesure de l'aire de contact en fonction de l'amplitude, en même temps que les shift en fréquence et en dissipation dans le régime linéaire (après avoir appliqué les hautes amplitudes prises comme abscisse), normalisés par leur valeur initiale.

On voit que les mesures optiques et vibratoires sont relativement bien superposées, ce qui montre une fois de plus la corrélation entre les shift en fréquence et en dissipation et l'aire de contact. Il existe toutefois un petit décalage, que nous attri-

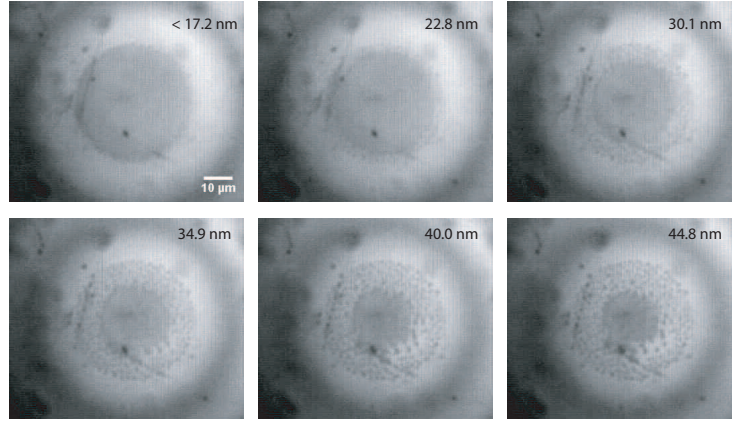


FIGURE 5.10 – Images du contact en fonction de l’amplitude d’oscillation pour un film de 10 nm de PIB. Expérience similaire à la Figure 5.9

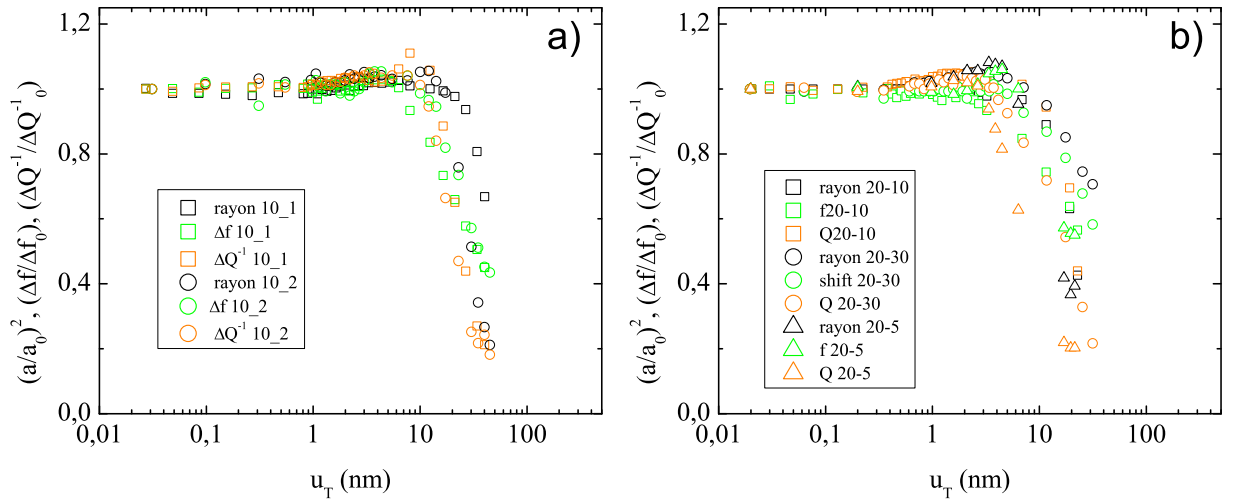


FIGURE 5.11 – Aire de contact, Δf et ΔQ^{-1} normalisés par leur valeur à faible amplitude, en fonction de l’amplitude d’oscillation pour a) un film de 10 nm et b) 20 nm . Le a) correspond aux expériences de la Figure 5.9.

buons à une légère altération des modules élastiques et visqueux à haute amplitude de cisaillement. Nous ne sommes pas en mesure de donner une interprétation plus précise à ce point.

A priori, ces résultats sont étonnants car on ne s’attend pas forcément à observer un régime de fracture dans un domaine de glissement total. Par exemple,

5.2 Contrainte seuil et dissipation à haute amplitude de vibration

la théorie de Savkoor montre que lorsque l'amplitude augmente on doit passer d'abord par un régime de fracture puis par un régime de glissement et non l'inverse, tel qu'observé ici.

Cependant, il convient de préciser que cet ordre fracture \rightsquigarrow friction est peut être loin d'être général, car il repose en particulier sur un mécanisme d'adhésion bien spécifique, à faible portée. En effet, le modèle de Savkoor repose essentiellement sur la diminution du rayon de contact de la valeur "JKR" à "Hertz" sous cisaillement. L'aire de contact de JKR est donnée par le travail d'adhésion qui lui même dépend des tensions de surface solide-solide et solide-air. C'est donc un travail gouverné par les forces de van de Waals, de portée ~ 10 nm [61].

De plus, il faut aussi prendre en compte que la "distance parcourue" pendant le régime 3 est de l'ordre de 10 nm, et il est tout à fait plausible que des mécanismes d'adhésion se développent à des amplitudes plus hautes.

Devant la complexité de la morphologie montrée en Figures 5.9 et 5.10, nous évaluons, dans le régime 4 (Figure 5.5 page 103), l'énergie nécessaire à la création d'une surface par :

$$U_e = \frac{1}{2}ku_T^2 \sim G\epsilon^2 \quad (5.17)$$

ou G est l'énergie de rupture par unité de surface et $\epsilon = \pi(a^2 - c^2)$ où a est le rayon de contact initial et c est le rayon de contact dans le régime 4. Après un ajustement linéaire des courbes en Figure 5.12 on trouve $G \approx 29 \pm 2$ mJ.m⁻².

Pour estimer un ordre de grandeur de l'énergie de fracture, nous supposons que le polymère est dans un état proche de l'état vitreux à température ambiante et aux fréquences ultrasonores utilisées.

Dans ce cas, la rupture peut se produire au niveau des enchevêtrements des chaînes dans le film. Nous admettons que la fracture se situe au niveau d'un liaison C - C. L'énergie de fracture par unité de surface G est reliée à la longueur entre enchevêtrements ξ et à l'énergie de liaison $E_{liaison}$ par l'expression suivante :

$$G \sim \frac{E_{liaison}}{\xi^2} \quad (5.18)$$

soit, avec $\xi \sim 2$ nm et $E_{liaison} \sim 1$ eV, $G \sim 40$ mJ.m², compatible avec nos résultats expérimentaux.

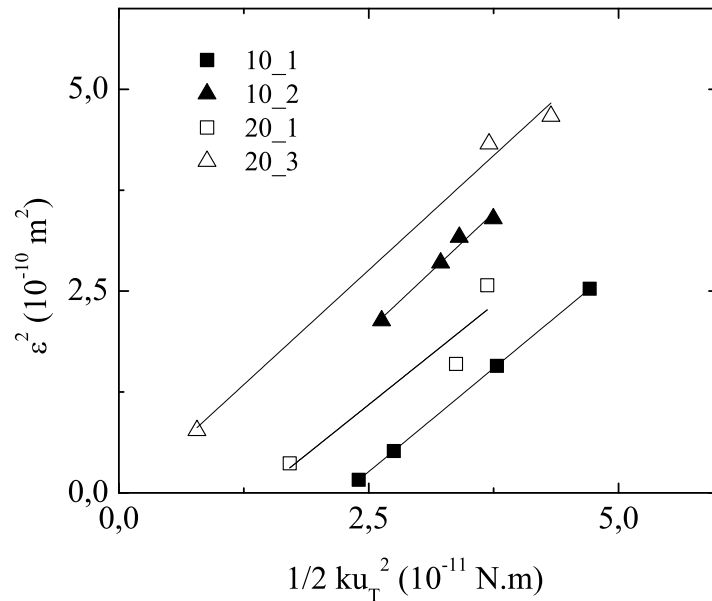


FIGURE 5.12 – Surface créée en fonction de l'énergie mécanique oscillatoire.

Nous sommes donc en mesure d'interpréter la diminution du rayon de contact comme provenant essentiellement de la rupture de chaîne de polymère au niveau des enchevêtrements. En effet, à une fréquence de 5 MHz, le PIB est dans un état proche de l'état vitreux et se comporte comme un matériau fragile.

La fracture permet de relaxer les contraintes dues à l'attachement du film sur les surfaces solides et permet un réarrangement de matière : ce réarrangement s'opère par le biais d'un démouillage visqueux du film. La modélisation de ce phénomène étant complexe en raison de la méconnaissance du profil du bourrelet lors du retrait du film viscoélastique, il n'est pas envisageable d'estimer la dissipation due au bourrelet et ainsi de quantifier de manière adéquate la vitesse de démouillage dans cette étude.

5.3 Glissement stationnaire sous vibration

Dès lors que le mécanisme d'action des vibrations ultrasonores sur l'interface polymère est caractérisé, quel serait l'effet de ces vibrations sur la vitesse de glissement stationnaire ?

5.3 Glissement stationnaire sous vibration

Cette question est importante dans le cadre de la fluidisation acoustique, depuis les dispositifs mécaniques jusqu'au médical. En effet, les vibrations sont connues pour affecter la réponse frictionnelle de systèmes aussi divers que les failles tectoniques ou encore les endoscopes.¹

Nous avons réalisé une série d'expériences où la sonde est mise en glissement grâce au plan incliné. Les vibrations ont une influence notable sur la vitesse de glissement stationnaire, que nous interprétons en confrontant le mécanisme de fracture suggéré ci-dessus aux principaux modes de dissipation à l'origine de la friction des interfaces polymères.

Détails expérimentaux

Tout d'abord un film de PIB est spin coaté tel que précédemment à partir de solutions dans le toluène, pour obtenir des épaisseur de 75 et 300 nm. Ces épaisseurs sont plus importantes que dans la partie précédente car cela permet d'obtenir un glissement lent, aisément traçable grâce à notre caméra.

La sonde est déposée sur le film et lorsque le signal est stabilisé après une courte période de "squeeze flow" (voir paragraphe 3.2.3, page 49), le système est alors incliné et la sonde commence à glisser à un angle $\theta \geq \theta_c$ où θ_c est l'angle de repos. Les images enregistrées pendant le glissement procurent en même temps l'aire de contact, donc la contrainte, ainsi que la vitesse de glissement.

La dépendance de la vitesse en fonction de la contrainte $\sigma = mg \sin \theta / \pi a^2$ est obtenue en inclinant l'angle pas à pas avec $2.5^\circ < \theta < 11.5^\circ$, et en évaluant la vitesse pour chaque angle. Pour un jeu donné de paramètres, le mouvement de la sonde est analysé pendant au moins 60 s, ce qui assure la stationnarité du mouvement. Cette stationnarité est contrôlée *a posteriori* à partir des diagrammes spatiotemporels tels que sur la Figure 5.13.

Pour étudier l'effet des vibrations, la sonde est mise en mouvement à une vitesse de référence sans vibrations. L'amplitude d'oscillation est alors augmentée pas à pas de 0.1 à 10 nm en gardant θ constant. Entre deux niveaux de vibrations, nous avons effectué de temps en temps des mesures de la vitesse "sans vibrations" pour

1. L'application de vibrations permet d'améliorer le confort du patient grâce à une réduction de la douleur due à la friction.

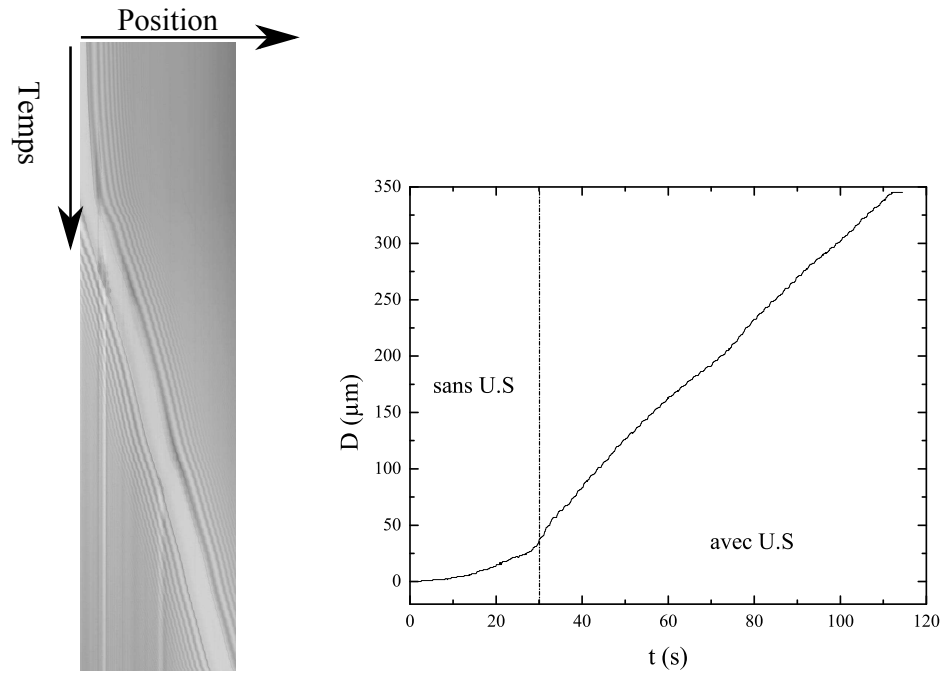


FIGURE 5.13 – a) Diagramme spatiotemporel b) Déplacement au cours du temps, sans et avec vibrations ultrasonore (U.S).

s'assurer que les résultats ne sont pas obscurcis par des variations locales de la surface (de l'épaisseur du film par exemple).

Résultats

Réponse oscillatoire

Nous avons réalisé des tests sans inclinaison ($\theta = 0$) et à haute amplitude de vibration sur les films "épais" utilisés dans cette partie. L'évolution des shifts en fréquence et en dissipation est tracée en Annexe A. Pour les deux films, les courbes ne sont pas simples à interpréter.

Pour le film de 70 nm, le pic à haute amplitude a une forme non-triviale caractérisée par un "pic bending", qui ne permet pas de calculer le facteur de qualité correctement. Nous ne pouvons donc pas comparer ces mesures avec celles du paragraphe précédent, ou la forme du pic reste lorentzienne quelle que soit l'amplitude d'oscillation.

5.3 Glissement stationnaire sous vibration

Pour le film de 300 nm, le facteur de qualité est extrêmement bas et est donc déterminé avec très peu de précision (de même que le shift en fréquence). Même à la puissance maximale délivrée par l'analyseur de réseau, l'amplitude d'oscillation reste assez basse, évaluée à quelques nanomètres.

Pour ces deux films, le rayon de contact reste stable quelle que soit l'amplitude d'oscillations, e.g. nous n'avons jamais observé le régime de fracture (4) discuté dans le cas des films plus minces dans la partie précédente.

Glissement

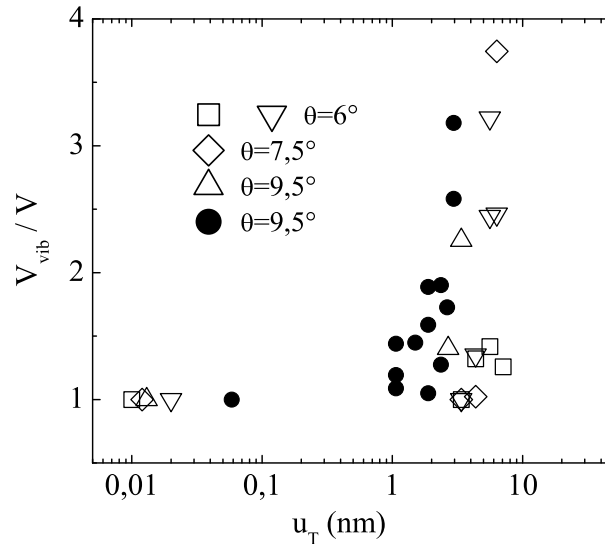


FIGURE 5.14 – Vitesse de glissement sous vibrations normalisée par la vitesse sans vibrations, en fonction de l'amplitude d'oscillations. L'épaisseur du film est de 75 nm (symboles blancs) and 300 nm (symboles noirs).

L'effet des vibrations est montré en Figure 5.14 pour les films de 75 et 300 nm d'épaisseur. On voit que des oscillations d'amplitudes inférieure à 0.1 nm n'ont aucun effet. Pour des oscillations supérieures à quelques nanomètres, la vitesse de glissement change de manière abrupte, jusqu'à augmenter d'un facteur 4 pour $u_T = 5$ nm.

La relation entre la vitesse de glissement et la contrainte, avec et sans vibration, est montrée Figure 5.15. On voit que la relation entre la vitesse de glissement et

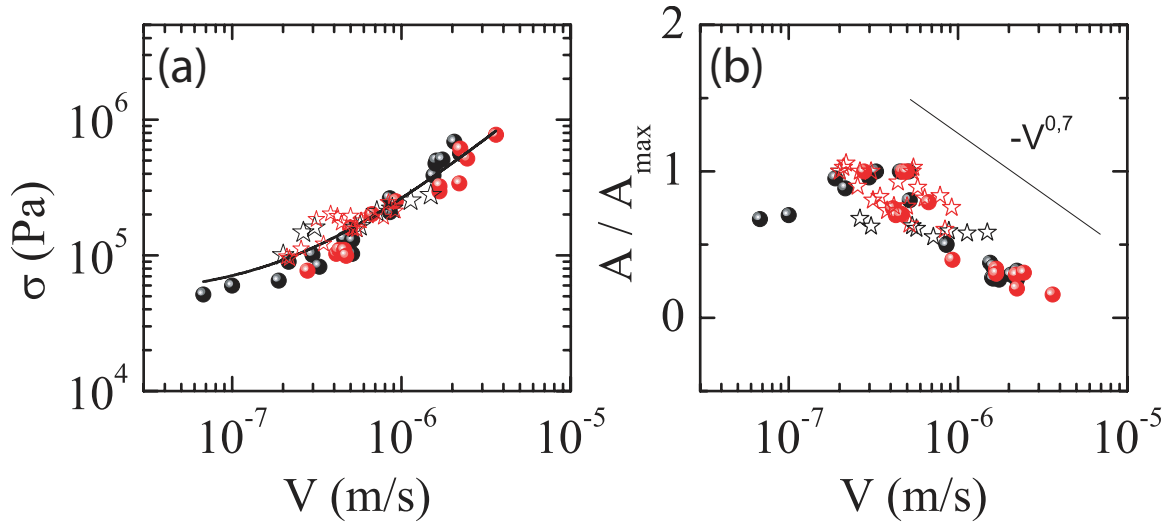


FIGURE 5.15 – (a) Contrainte en cisaillement. La ligne continue est un fit avec une equation de type $\sigma = \sigma_0 + kV$ (voir texte). (b) Aire de contact en fonction de la vitesse de glissement. Les sphères et étoiles correspondent aux films de 75 nm et 300 nm respectivement. Les symboles noirs sont sans vibration et les symboles rouges avec vibration.

la contrainte est ajustée par une loi $\sigma = \sigma_0 + kV$ avec $\sigma_0 \approx 30$ kPa et $k \approx 10^{11}$ Pa.s.m⁻¹. A noter que l'application des vibrations ne modifie pas l'allure du coefficient k dans la limite de précision de nos mesures.

Durant le glissement sans vibrations, l'aire de contact diminue avec la vitesse comme en Figure 5.15 (b). Lorsque les vibrations sont actionnées, la vitesse de glissement augmente de manière quasi-instantanée, accompagnée par une diminution de l'aire de contact. Cela résulte en une augmentation de la contrainte effective alors que l'angle d'inclinaison reste constant. La relation entre l'aire de contact et la contrainte reste inchangée et n'est donc pas attribuable aux vibrations.

Discussion

Friction solide

Le coefficient de friction caractéristique d'une partie de la dissipation lors du glissement d'un élastomère est donné par l'équation 5.7 page 100, $k = \frac{\eta_R}{D}$. La viscosité $\eta_R = N_e \eta_0$ où N_e est le nombre de monomères entre enchevêtrement et

5.3 Glissement stationnaire sous vibration

η_0 est la viscosité d'un fluide composé de monomères.

Comme on a $\eta_0 \sim \zeta_0/b$ ($\zeta_0 = 4.5 \times 10^{-8}$ N.s.m⁻¹ est le coefficient de friction moléculaire), on obtient

$$\mathbf{k} \sim \zeta_0 N_e^{1/2}/b^2 \sim 10^{11} \text{ Pa.s.m}^{-1} \quad (5.19)$$

avec $N_e \sim 10$ et $b \sim 1$ nm, ce qui correspond bien à ce que l'on mesure expérimentalement. Une source de dissipation avérée dans notre système est donc le "frottement visqueux" des monomères les uns sur les autres, au sein d'une bande de cisaillement d'épaisseur nanométrique.

Rayon de contact en glissement

L'écoulement à travers cette bande de cisaillement peut être décrite dans l'approximation de lubrification par

$$\eta_e \frac{\partial^2 V}{\partial y^2} = \frac{\partial P}{\partial x} \quad (5.20)$$

ce qui peut se ré-écrire en loi d'échelle comme $\eta_e V/D^2 \sim P/a$ où D est l'épaisseur de la bande de cisaillement et a le rayon de contact. Combinée avec la géométrie du contact sous écoulement $a^2 \sim 2(h - D)R$ où h est l'épaisseur du film et R le rayon de la sphère, on obtient

$$\frac{A}{A_{max}} \sim 1 - \left(\frac{\eta_e a}{Ph^2} \right)^{1/2} V^{1/2} \quad (5.21)$$

qui correspond donc à une diminution de l'aire de contact en fonction de la vitesse de cisaillement, ou de glissement. Expérimentalement on obtient plutôt un exposant proche de 0.7 (voir Figure 5.15 (b)). L'erreur pourrait provenir de l'approximation sur la géométrie du contact : il faudrait un modèle tridimensionnel, et prendre en compte un profil détaillé pour la géométrie contact.

Terme adhésif [60]

Comme mentionné en 5.1.1, le cisaillement d'une interface polymère s'effectue par le glissement des chaînes adsorbées sur les chaînes situées plus loin de la surface

("en masse").

Les chaînes adsorbées et les chaînes en masse interagissent par l'intermédiaire de petits ponts interfaciaux, formés par l'enchevêtrements de bouts de chaînes en masse avec les chaînes adsorbées.

Cet enchevêtrement s'effectue par diffusion à travers le plan de fracture, à une vitesse caractéristique $V^* \sim D/\tau_R$ avec $\tau_R \sim \tau_0$, $\tau_0 \sim \zeta_0 b^2/k_B T$ étant le temps de diffusion des monomères, et $D \sim bN_e^{1/2}$ comme précédemment.

La formation de ponts est toutefois limitée par la destruction due au cisaillement à une vitesse V . De Gennes [60] a proposé une équation à la Rice et Ruina pour la densité surfacique de ponts ν :

$$\nu = \frac{\nu_0}{1 + V/V^*} \quad (5.22)$$

avec $\nu_0 \sim 1/(b^2 N^{1/2})$ comme discuté en 5.1.1.

Lorsque $V \gg V^*$, aucun pont ne peut se former et $\nu = 0$. On s'attend alors à observer uniquement le terme de friction solide correspondant au coefficient k . Pour notre système, $\tau_R \sim 10^{-3} - 10^{-2}$ s, ce qui donne $V^* \sim 1 - 10 \mu\text{m.s}^{-1}$. C'est à peu de choses près le type de vitesse à laquelle le terme kV commence à dominer sur la Figure 5.15 (a).

Lorsque $V \ll V^*$, on a $\nu = \nu_0$, et cette densité surfacique de ponts est à l'origine d'une force adhésive en cisaillement. En première approximation on suppose que la force nécessaire pour briser un pont est de l'ordre de $f_b \sim k_B T/bN_e^{1/2}$ et indépendante de la vitesse. La contrainte correspondant à l'interface est donc

$$\sigma_0 \sim \nu_0 f_b. \quad (5.23)$$

Pour le polyisobutylène utilisé dans cette étude, on obtient $\sigma_0 \sim 10$ kPa avec $N \sim 100$, ce qui correspond aux résultats expérimentaux (voir précédemment).

Effet des vibrations

L'effet des vibrations dépend de la fréquence et de l'amplitude [24, 54]. Dans la prolongation du chapitre 4, nous admettrons ici que la fréquence caractéristique des oscillations produites par le quartz ~ 5 MHz implique qu'aucun mouvement ma-

5.3 Glissement stationnaire sous vibration

croscopique ne peut être produit par les vibrations. Il faut donc là encore chercher une interprétation basée sur des mécanismes localisés à l'interface solide-polymère.

Nous avons focalisé notre fenêtre expérimentale sur un régime pour lequel la contrainte statique est assez proche du seuil, et où le terme en σ_0 domine. L'analyse du glissement suggère donc que la dynamique proche du seuil est gouvernée par un seul temps caractéristique, τ_R , qui détermine le temps nécessaire à la formation d'un pont par diffusion de bouts de chaînes.

En admettant que l'amplitude des oscillations puisse modifier la création des ponts, un effet significatif ne peut être attendu que si $\omega\tau_R \gg 1$, ce qui est effectivement le cas ($\omega\tau_R \sim 10^4 - 10^5$).

Les oscillations non-linéaires modifient la structure de l'interface par un mécanisme de rupture des enchevêtrements de chaînes. En reprenant l'équation 5.17

$$\frac{1}{2}ku_T^2 \sim G\pi a^2$$

nous évaluons l'ordre de grandeur nécessaire pour fracturer l'intégralité du contact. Avec $k \sim 2 \times 10^6$, $a \sim 25 \mu\text{m}$ et avec l'énergie de rupture $G \sim 30 \text{ mJ/m}^2$ comme déterminé en 5.2.3, on trouve $u_T \sim 8 \text{ nm}$, ce qui est compatible avec les observations réalisées donnant $u_T < 10$.

De plus les sollicitations ultrasonores pourraient annihiler le processus de diffusion des bouts de chaîne responsables de la création des ponts interfaciaux. En comparant le temps de formation des ponts (τ_R) et celui d'une oscillation ultrasonores ($2\pi/\omega$), nous constatons que les bouts de chaîne polymérique n'ont pas le temps de diffuser pour former les ponts car, au cours de leurs diffusions, ils auront subi $10^4 - 10^5$ cisaillements. Ces cisaillements, d'amplitude supérieure à 1 nm, bloquent le mouvement des chaînes et neutralisent leur diffusion.

Enfin l'effet des vibrations n'est peut être pas limité à la contrainte σ_0 . Un critère donnant l'envergure des effets mécaniques non-linéaires est $\dot{\gamma}_{ac} \tau_R = 1$, où $\dot{\gamma} \sim u_T\omega/D$ est la vitesse de cisaillement oscillatoire. Comme dans notre cas $u_T \sim D$, cette condition revient à $\omega\tau_R = 1$. De même de précédemment on a donc toujours $\dot{\gamma}_{ac} \tau_R \gg 1$ en régime haute fréquence, et on attend donc des effets non-linéaires vis-à-vis de la réponse rhéologique de la bande de cisaillement. En

2. Pour ces systèmes la raideur mesurée varie très peu tout au long du test.

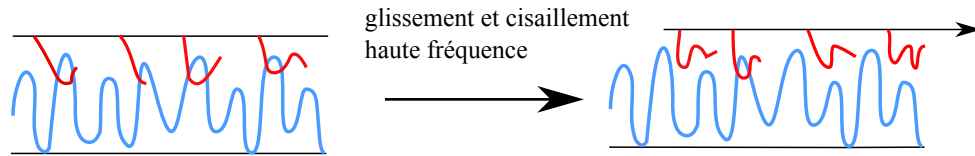


FIGURE 5.16 – Durant le glissement en régime stationnaire la nombre de ponts détruit est le même que le nombre de ponts formés. Le nombre total de pont est constant. Lorsque les vibrations sont appliquées, les ponts n’ont plus la possibilité de se former aussi vite et le nombre total diminue.

d’autres termes, la vitesse de cisaillement est telle qu’il est fort possible que le coefficient de friction k soit affecté.

5.4 Conclusions

La réponse élastique et dissipative d’un contact sur un film ultra-mince (~ 10 - 20 nm) de PIB révèle quatre régimes de comportement distincts et successifs : un régime linéaire, un régime de type Mindlin puis un régime de glissement total et un régime de fracture. L’estimation du coefficient de friction statique μ_s à l’aide du modèle de Mindlin fournit un coefficient μ_s indépendant de l’épaisseur dont l’ordre de grandeur est consistant avec une interface solide-solide. Au delà d’une amplitude de sollicitation de 10 nm, l’aire de contact diminue par un mécanisme de rupture des liaisons chimiques du polymère à l’interface.

Pour les films les plus épais (~ 100 nm) lorsqu’une vibration ultrasonore est appliquée sur un objet en glissement stationnaire alors la vitesse de celui-ci augmente. Cependant le coefficient de friction k n’est pas affecté par l’application ou non de sollicitations de grande amplitude. Nous remarquons que l’aire de contact diminue lorsque la vitesse de glissement augmente en présence ou non de vibrations. Les sollicitations sont d’amplitude suffisante pour fracturer les chaînes de polymère au niveau des enchevêtrements. Le temps de diffusion des bouts de chaînes étant plus grand de la durée d’une oscillation cela implique que les vibrations ultrasonores annihilent le processus de diffusions de ces bouts de chaînes, ce qui accélère le mouvement en limitant la dissipation due au désenchevêtrement des ponts interfaciaux.

5.4 Conclusions

Le dispositif expérimental utilisé ici ne permet pas de sonder un régime de haute vitesse avec précision. En effet, lorsque la vitesse de glissement excède $5 - 6 \mu\text{m.s}^{-1}$, la sonde accélère brutalement et sort rapidement du champ de mesure. Pour explorer un régime à plus haute vitesse il faudrait modifier le système de mesures et travailler à vitesse imposée tout en mesurant la force. Ceci est en cours au laboratoire.

CHAPITRE 5 : *Glissement stationnaire sous oscillations tangentielles*

Conclusion générale

Dans le chapitre 3 l'étude des interfaces contrôlées a permis de mettre en évidence le domaine d'application de notre méthode ultrasonore, limitée aux films viscoélastiques à 5 MHz ou aux interfaces nanométrique. Dans le cas des films viscoélastiques, l'aire de contact augmente avec le temps en raison de l'expulsion continue du polymère. L'expulsion de la matière polymérique mettant en jeu la viscosité élongationnelle est décrite par un modèle de « squeeze flow ». La mesure en continu de la croissance de l'aire de contact donne accès à la viscosité et aux modules dynamiques. Les valeurs obtenues sont en accords avec les propriétés en masse du PIB fournies par la littérature et montre l'absence de confinement au vu de la précision de nos mesures.

Pour les interfaces nanométriques nous avons montré que l'humidité relative, dans la gamme étudiée (5 - 60 %) n'a pas d'influence sur la cinétique de vieillissement. La nucléation des ponts capillaires nanométriques au niveau du contact n'est pas responsable du vieillissement expérimental, celui-ci est probablement dû au fluage thermiquement activé des aspérités en contact. Quant au régime non-linéaire, la réponse du contact n'est pas altérée par la présence éventuelle de ponts nanométriques. La mesure de raideur et de dissipation non-linéaire permet toutefois de différencier deux interfaces distinctes chimiquement, qui se distinguent aussi par leur réponse mécanique.

Le chapitre 4 concerne l'étude de la réponse ultrasonore suite à l'application d'une charge statique tangentielle par l'intermédiaire d'un plan incliné. Au cours de l'inclinaison du plan, la raideur latérale du contact diminue. La diminution de la raideur est attribuée à une diminution de l'aire de contact sous cisaillement.

À l'aide d'oscillations ultrasonores de grande amplitude, nous avons réussi à

déclencher le glissement de la sonde en dessous du seuil statique de friction indépendamment de la polarisation de la sollicitation. La discussion montre que les oscillations ultrasonores ne provoquent pas de déplacement inertiel de la sonde car la fréquence angulaire du quartz est 100 fois supérieure à celle la pulsation propre du système. Par contre les oscillations de haute fréquence et de grande amplitude réduisent l'aire de contact non-glissante, de rayon initial a_H à c par l'intermédiaire de la croissance de l'anneau glissant de Mindin. La diminution de l'aire de contact « collée » est accompagnée d'une réduction du coefficient de frottement solide statique μ_s . Le système passe d'un état statique (piégé) à un état glissant (dépiégé) par fluidisation, les ultrasons ont le même rôle que la température effective dans les milieux granulaires.

La mise en évidence du vieillissement structural a été obtenue après avoir provoqué le glissement de la sonde avec une sollicitation ultrasonore de grande amplitude. Au préalable, le contact doit vieillir géométriquement pendant une durée suffisante pour que la raideur latérale puisse être considérée comme constante avant glissement. Après glissement, la raideur latérale croît avec le temps. Le vieillissement observé sature au bout de ~ 200 s pour parvenir à une raideur plus élevée de $\sim 10\%$. Cette augmentation de raideur ne peut être imputée à une augmentation de l'aire de contact par un mécanisme de fluage des aspérités [3] car, avant que le glissement ne se produise, nous avons attendu un temps suffisant pour considérer l'aire de contact (et par extension la raideur latérale) constante. L'explication de ce résultat expérimental implique un mécanisme de renforcement des propriétés de l'interface. Ce renforcement aurait pour origine l'augmentation du module élastique de la jonction.

L'étude des films minces viscoélastiques au cours de sollicitations ultrasonores non-linéaire a révélé l'existence de plusieurs processus dissipatifs dans le film selon l'amplitude de la sollicitation. Quatre régimes de comportement ultrasonores ont été identifiés pour les films de PIB : un régime linéaire, un régime de Mindlin puis un régime de glissement total et un régime de fracture. Dans le régime de micro-glissement, les résultats expérimentaux décrits par le modèle de Mindlin fournissent une estimation du coefficient de friction solide μ_s indépendant de l'épaisseur du film dont l'ordre de grandeur est consistant avec une interface solide. Pour une

contrainte supérieure au seuil, la forme des courbes de raideur et de dissipation en fonction de l'amplitude permettent de supposer, *via* un cycle simple, que le système est en glissement oscillatoire total. L'estimation des propriétés physiques du film dans ce régime fournit un coefficient de friction monomérique, une viscosité effective et un module dynamique dissipative anormalement bas.

Le régime de fracture apparaît lorsque l'amplitude des oscillations ultrasonores franchit un seuil (10 nm). Durant ce régime, l'application des oscillations provoque une diminution de l'aire de contact. Il est marquant d'observer une fracture de l'interface du polymère après le glissement car, dans le modèle de Savkoor et Briggs, une fracture se propage à l'intérieur du contact suivi par le glissement et non l'inverse. Cette fracture correspond à une fracture des enchevêtrements. La diminution de l'aire de contact est provoquée par la rupture des chaînes de polymère au niveau des enchevêtrements.

Pour les films épais, lorsqu'une vibration ultrasonore (d'amplitude $\gtrsim 1$ nm) est appliquée sur un objet en glissement stationnaire alors la vitesse de glissement de celui-ci augmente. La relation contrainte - vitesse obtenue au cours des expériences n'est pas modifiée par les oscillations ultrasonores. En effet, les résultats obtenus avec et sans sollicitation se superposent sur une même courbe et donnent un coefficient de friction k en accord avec la littérature. Il est à noter que l'aire de contact diminue lorsque la vitesse de glissement augmente, indépendamment de la présence ou non des oscillations. Lorsque la vitesse de glissement est inférieure à la vitesse de formation des enchevêtrements des bouts de chaînes à l'interface, la sonde perturbe une bande de cisaillement composée de petits ponts interfaciaux. Les vibrations sont suffisantes pour provoquer une fracture des chaînes de polymère au niveau des enchevêtrements. Le temps caractéristique des oscillations ultrasonores est beaucoup plus petit que le temps caractéristique de la formation des ponts interfaciaux. Cela implique que les sollicitations ultrasonores annihilent la diffusion des bouts de chaînes adsorbés sur la sonde car le temps de diffusion de ces bouts de chaînes est très grand par rapport au temps de cisaillement du contact.

Il serait intéressant d'avoir un dispositif expérimental permettant d'imposer une vitesse de glissement à l'aide d'un moteur piézoélectrique pas-à-pas et de mesurer la force de friction dynamique à l'aide d'un capteur de force. Ainsi nous pourrions

avoir accès à une grande plage de vitesse avec une mesure précise de la contrainte et cela permettrait de savoir si les vibrations ultrasonores ont une influence sur la force de friction au cours d'un glissement. Cela permettrait d'étudier différents régimes dynamiques avec des interfaces moléculaires, notamment les régimes de « stick-slip ».

Annexe A

Données complémentaires

A.1 Film de 70 nm

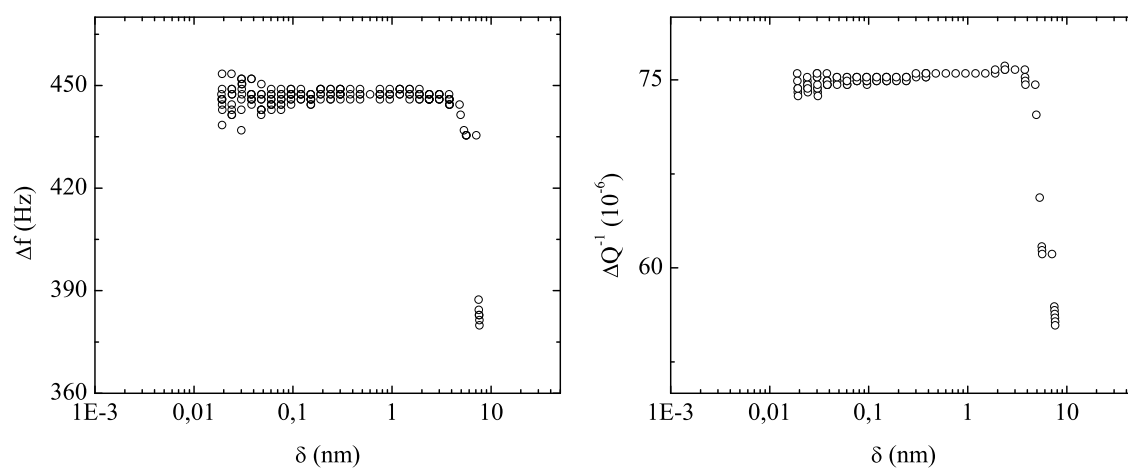


FIGURE A.1 – Raideur et dissipation sous sollicitation oscillatoire ; film de PIB de 70 nm.

A.2 Film de 300 nm

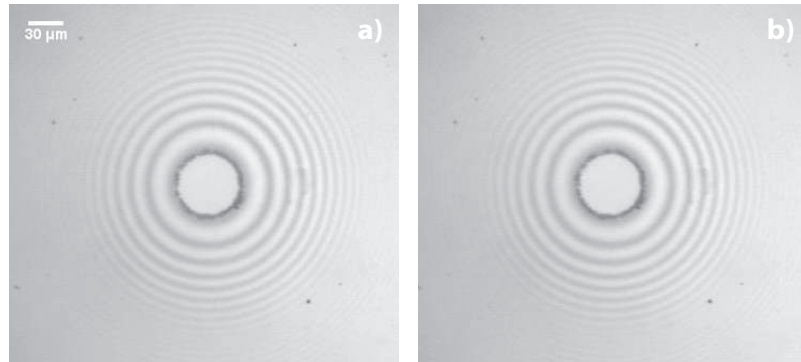


FIGURE A.2 – Images du contact pour le film de PIB de 70 nm. a) -45 dBm b) 5 dBm

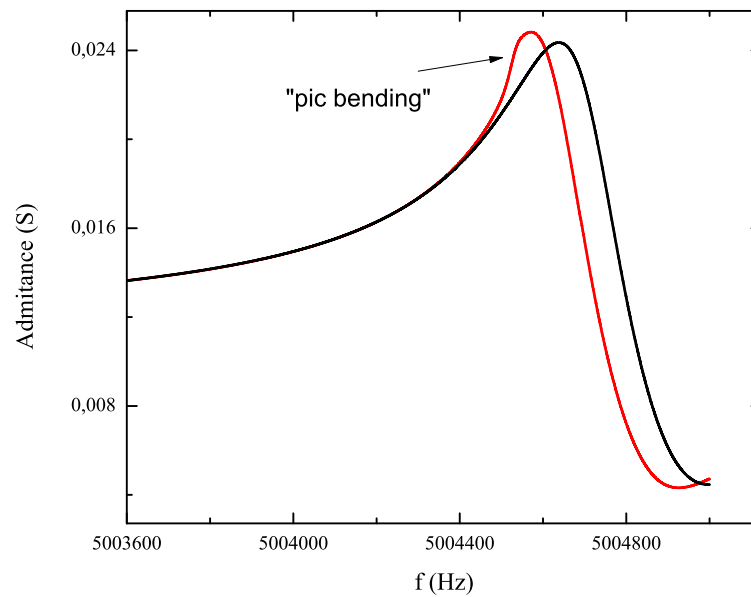


FIGURE A.3 – Pic de résonance du film de 70 nm, à -45dBm (noir) et 5 dBm (rouge). La forme du pic à haute amplitude n'est plus une lorentzienne et semble courbée vers la gauche.

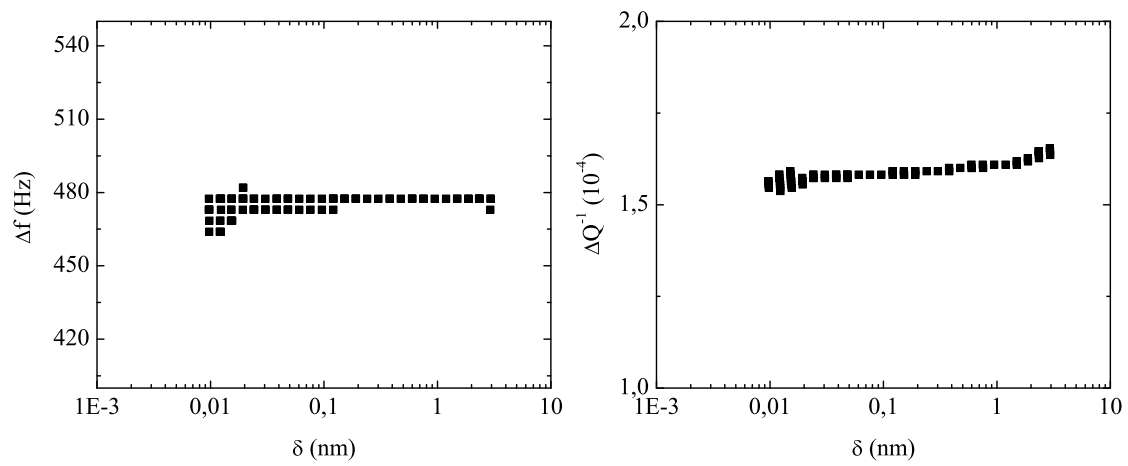


FIGURE A.4 – A gauche la raideur et à droite la dissipation sous sollicitation oscillatoire; film de PIB de 300 nm.

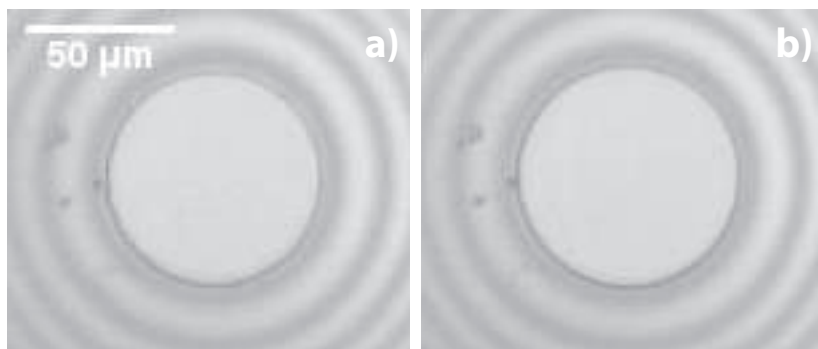


FIGURE A.5 – Images du contact pour le film de PIB de 300 nm. a) -45 dBm b) 5 dBm

Bibliographie

- [1] H. HERTZ. “Über die Berührung fester elastischer Körper”. In : *Journal für die reine und angewandte Mathematik* 92 (1881), p. 156–171.
- [2] J.A GREENWOOD et J.B WILLIAMS. “Contact Of Nominally Flat Surfaces”. In : *Proceedings Of The Royal Society Of London Series A-mathematical And Physical Sciences* 295.1442 (1966), p. 300–&.
- [3] Y BRECHET et Y ESTRIN. “The Effect Of Strain-rate Sensitivity On Dynamic Friction Of Metals”. In : *Scripta Metallurgica Et Materialia* 30.11 (1994), p. 1449–1454.
- [4] L BOCQUET et al. “Moisture-induced ageing in granular media and the kinetics of capillary condensation”. In : *NATURE* 396.6713 (1998), p. 735–737.
- [5] M. MASTRANGELI et al. “Lateral capillary forces of cylindrical fluid menisci : a comprehensive quasi-static study”. In : *Journal Of Micromechanics And Microengineering* 20.7 (2010). ISSN : 0960-1317.
- [6] J.N ISRAELACHVILI. “Adhesion Forces Between Surfaces In Liquids And Condensable Vapors”. In : *Surface Science Reports* 14.3 (1992), p. 109–159. ISSN : 0167-5729.
- [7] T BAUMBERGER et Ch CAROLI. “Solid friction from stick-slip down to pinning and aging”. In : *Advances in Physics* 55.3-4 (2006), p. 279–348.
- [8] L BUREAU, T BAUMBERGER et C CAROLI. “Rheological aging and rejuvenation in solid friction contacts”. In : *European Physical Journal E* 8.3 (2002), p. 331–337.

- [9] M.L. GEE et al. “Liquid to solidlike transitions of molecularly thin films under shear”. In : *The Journal of Chemical Physics* 93.3 (1990), p. 1895–1906.
- [10] Jr RICE et Al RUINA. “Stability of steady frictional slipping”. In : *Journal Of Applied Mechanics-transactions Of The Asme* 50.2 (1983), p. 343–349.
- [11] G REITER et al. “Stick To Slip Transition And Adhesion Of Lubricated Surfaces In Moving Contact”. In : *Journal Of Chemical Physics* 101.3 (1994), p. 2606–2615.
- [12] S GRANICK. “Motions And Relaxations Of Confined Liquids”. In : *Science* 253.5026 (1991), p. 1374–1379. ISSN : 0036-8075.
- [13] B.N.J PERSSON. “Theory and simulation of sliding friction”. In : *Physical Review Letters* 71.8 (1993), p. 1212–1215.
- [14] Pa THOMPSON et Mo ROBBINS. “Origin of stick-slip motion in boundary lubrication”. In : *Science* 250.4982 (1990), p. 792–794.
- [15] Bj BRISCOE et Dcb EVANS. “the Shear Properties Of Langmuir-blodgett Layers”. In : *Proceedings Of The Royal Society Of London Series A-mathematical Physical And Engineering Sciences* 380.1779 (1982), p. 389–&.
- [16] H EYRING. “Viscosity, Plasticity, and Diffusion as Examples of Absolute Reaction Rates”. In : *The Journal of Chemical Physics* 4.4 (1936), p. 283–291.
- [17] T. BAUMBERGER, P. BERTHOUD et C. CAROLI. “Physical analysis of the state- and rate-dependent friction law. II. Dynamic friction”. In : *Phys. Rev. B* 60 (6 1999), p. 3928–3939.
- [18] Osmer I.F. et al. MINDLIN R.D. Mason W.P. “Effects of an oscillating tangential force on the contact surfaces of elastic spheres”. In : *Proceedings of the First U.S. National Congress of Applied Mechanics* (1951), p. 203–208.
- [19] V. ZALOG, M. URBAKH et J. KLAFTER. “Modifying Friction by Manipulating Normal Response to Lateral Motion”. In : *Phys. Rev. Lett.* 82 (24 1999), p. 4823–4826.

- [20] F DINELLI et al. “Ultrasound induced lubricity in microscopic contact”. In : *Applied Physics Letters* 71.9 (1997), p. 1177–1179.
- [21] H.J MELOSH. “Dynamical weakening of faults by acoustic fluidization”. In : *Nature* 379.6566 (1996), p. 601–606.
- [22] H PERFETTINI et al. “Frictional response induced by time-dependent fluctuations of the normal loading”. In : *Journal of Geophysical Research : Solid Earth* 106.B7 (2001), p. 13455–13472. ISSN : 2156-2202.
- [23] T BAUMBERGER et al. “An inertial tribometer for measuring microslip dissipation at a solid-solid multicontact interface”. In : *Review of Scientific Instruments* 69.6 (1998), p. 2416–2420.
- [24] M HEUBERGER, C DRUMMOND et J ISRAELACHVILI. “Coupling of normal and transverse motions during frictional sliding”. In : *JOURNAL OF PHYSICAL CHEMISTRY B* 102.26 (1998), p. 5038–5041. ISSN : 1089-5647.
- [25] J.P GAO, W.D LUEDTKE et U LANDMAN. “Friction control in thin-film lubrication”. In : *Journal Of Physical Chemistry B* 102.26 (1998), p. 5033–5037. ISSN : 1089-5647.
- [26] K.L JOHNSON, K KENDALL et A.D ROBERTS. “Surface energy and contact of elastic solids”. In : *Proceedings of the Royal Society of London series A-Mathematical and Physical Sciences* 324.1558 (1971), p. 301–&.
- [27] Ar SAVKOOR et Gad BRIGGS. “Effect of tangential force on contact of elastic solids in adhesion”. In : *Proceedings Of The Royal Society Of London Series A-mathematical Physical And Engineering Sciences* 356.1684 (1977), p. 103–114.
- [28] D. S. BALLANTINE. *Acoustic Wave Sensors Theory, Design, and Physico-Chemical Applications*. Sous la dir. d’ACADEMIC PRESS. 1997.
- [29] B. A. MARTIN et H. E. HAGER. “Velocity profile on quartz crystals oscillating in liquids”. In : *Journal of Applied Physics* 65.7 (1989), p. 2630–2635.
- [30] J. LEOPOLDES et X. JIA. “Probing viscoelastic properties of a thin polymer film sheared between a beads layer and an ultrasonic resonator”. In : *EPL* 88.3 (2009).

- [31] G.L DYBWAD. “A sensitive new method for the determination of adhesive bonding between a particle and a substrate”. In : *Journal of Applied Physics* 58.7 (1985), p. 2789–2790.
- [32] David G. CASTNER et Buddy D. RATNER. “Biomedical surface science : Foundations to frontiers”. In : *Surface Science* 500.1-3 (2002), p. 28 –60.
- [33] A.G. EMSLIE, F.T. BONNER et L.G. PECK. “Flow of a Viscous Liquid on a Rotating Disk”. In : *Journal of Applied Physics* 29.5 (1958), p. 858–862.
- [34] J.I KEDDIE, Ral JONES et Ra CORY. “size-dependent Depression Of The Glass-transition Temperature In Polymer-films”. In : *Europhysics Letters* 27.1 (1994), p. 59–64. ISSN : 0295-5075.
- [35] S CHATRAEI, Cw MACOSKO et Hh WINTER. “Lubricated Squeezing Flow - A New Biaxial Extensional Rheometer”. In : *Journal Of Rheology* 25.4 (1981), p. 433–443.
- [36] M RUBINSTEIN et R.H COLBY. *Polymer Physics*. Oxford University Press, 2003.
- [37] J.D FERRY. *Viscoelastic Properties Of Polymers*. Sous la dir. de 3rd REVISED EDITION. John Wiley & Sons Inc, 1980.
- [38] D RICHTER et al. “Dynamic structure factors due to relaxation processes in glass-forming polymers”. In : *Physica B-condensed Matter* 241 (1997). International Conference on Neutron Scattering, TORONTO, CANADA, AUG 17-21, 1997, p. 1005–1012. ISSN : 0921-4526.
- [39] K DALNOKI-VERESS, J.A FORREST et J.R DUTCHER. “Mechanical confinement effects on the phase separation morphology of polymer blend thin films”. In : *Physical Review E* 57.5, B (1998), p. 5811–5817.
- [40] A. SERGHEI, M. TRESS et F. KREMER. “Confinement effects on the relaxation time distribution of the dynamic glass transition in ultrathin polymer films”. In : *Macromolecules* 39.26 (2006), p. 9385–9387.
- [41] Th. BRUNET, X. JIA et P. MILLS. “Mechanisms for acoustic absorption in dry and weakly wet granular media”. In : *Physical Review Letters* 101.13 (2008).

- [42] J. N. D'AMOUR et al. "Capillary Aging of the Contacts between Glass Spheres and a Quartz Resonator Surface". In : *Phys. Rev. Lett.* 96 (5 2006), p. 058301.
- [43] J.A. DIJKSMAN et al. "Jamming, Yielding, and Rheology of Weakly Vibrated Granular Media". In : *Physical Review Letters* 107.10 (2011).
- [44] P A. JOHNSON et al. "Effects of acoustic waves on stick-slip in granular media and implications for earthquakes". In : *Nature* 451.7174 (2008), 57–U5.
- [45] P.A JOHNSON et X JIA. "Nonlinear dynamics, granular media and dynamic earthquake triggering". In : *Nature* 437.7060 (2005), p. 871–874.
- [46] H. M. JAEGER, Chu-heng LIU et Sidney R. NAGEL. "Relaxation at the Angle of Repose". In : *Phys. Rev. Lett.* 62 (1 1989), p. 40–43.
- [47] R.R HARTLEY et R.P BEHRINGER. "Logarithmic rate dependence of force networks in sheared granular materials". In : *Nature* 421.6926 (2003), p. 928–931.
- [48] Dr SORNETTE et A SORNETTE. "Acoustic Fluidization for Earthquakes?" In : *Bulletin of the Seismological Society of America* 90.3 (2000), p. 781–785.
- [49] Brandon D. BOOTH et al. "Tribology of Monolayer Films : Comparison between n-Alkanethiols on Gold and n-Alkyl Trichlorosilanes on Silicon". In : *Langmuir* 25.17 (2009), p. 9995–10001.
- [50] J. LEOPOLDES et X. JIA. "Transverse shear oscillator investigation of boundary lubrication in weakly adhered films". In : *Physical Review Letters* 105.26 (2010).
- [51] Oded BEN-DAVID, Shmuel M. RUBINSTEIN et Jay FINEBERG. "Slip-stick and the evolution of frictional strength". In : *Nature* 63.7277 (2010), p. 76–79.
- [52] L BUREAU, C CAROLI et T BAUMBERGER. "Elasticity and onset of frictional dissipation at a non-sliding multi-contact interface". In : *Proceedings Of The Royal Society A-mathematical Physical And Engineering Sciences* 459.2039 (2003), p. 2787–2805.

- [53] K.L JOHNSON. *Contact Mechanics*. Cambridge University Press, 1985.
- [54] J. LEOPOLDES, G. CONRAD et X. JIA. “Onset of Sliding in Amorphous Films Triggered by High-Frequency Oscillatory Shear”. In : *Physical Review Letters* 110.24 (2013). ISSN : 0031-9007.
- [55] L BUREAU, T BAUMBERGER et C CAROLI. “Jamming creep of a frictional interface”. In : *Physical Review E* 64.3, Part 1 (2001).
- [56] A.J LIU et S.R NAGEL. “Nonlinear dynamics - Jamming is not just cool any more”. In : *Nature* 396.6706 (1998), p. 21–22.
- [57] H. M. JAEGER et al. “Friction in Granular Flows”. In : *EPL (Europhysics Letters)* 11.7 (1990), p. 619.
- [58] Gregory C. MCLASKEY et Steven D. GLASER. “Micromechanics of asperity rupture during laboratory stick slip experiments”. In : *Geophysical Research Letters* 38 (2011). ISSN : 0094-8276.
- [59] M.O. ROBBINS. “Jamming, Friction and Unsteady Rheology”. In : *eprint arXiv :cond-mat/9912337* (1999). eprint : [cond-mat/9912337](https://arxiv.org/abs/cond-mat/9912337).
- [60] F. BROCHARD-WYART, C. GAY et P.-G. de GENNES. “Slippage of Polymer Melts on Grafted Surfaces”. In : *Macromolecules* 29.1 (1996), p. 377–382.
- [61] J.N ISRAELACHVILI. *Intermolecular and Surface Forces*. Academic Press, 1991.

Résumé

L'objectif de cette thèse est de contribuer à la compréhension de l'interaction entre des sollicitations de haute fréquence tangentielles et le déclenchement du glissement macroscopique, ainsi que la dynamique frictionnelle subséquente. Le travail est basé sur une approche expérimentale permettant d'étudier, à des fréquences ultrasonores, les propriétés élastiques et dissipatives de contacts sphère-plan en régime linéaire et non-linéaire. La méthode consiste à mesurer les caractéristiques de la résonance d'un piézoélectrique (fréquence de résonance et facteur de qualité) modifiées par l'établissement d'un contact mécanique.

Le seuil de glissement est ajusté par le contrôle de la nature moléculaire de l'interface frictionnelle, constituée de films nanométriques greffés ou déposés par spin-coating. Nous commençons par étudier les propriétés physiques et mécaniques en régime linéaire de ces interfaces contrôlées. Ensuite, nous évaluons l'influence de l'amplitude des oscillations sur le l'angle de repos d'une sonde placée sur un plan incliné. Lorsque l'amplitude augmente, le seuil de glissement est abaissé quelle que soit la polarisation des oscillations. L'effet des vibrations est de diminuer la surface effective sur laquelle est appliquée la contrainte seuil statique, ce qui diminue la force seuil. Nous discutons de ces résultats à l'aide interprétation basée sur l'énergie vibratoire, qui jouerait un rôle proche d'une température effective dans un diagramme de « jamming ».

Ensuite, nous étudions le comportement de contacts sphère-plan à de très hautes amplitudes oscillatoires. Nous observons un régime micro-glissement partiel au cours duquel le comportement du contact oscille entre micro-glissement partiel et total. Aux plus hautes amplitudes, les oscillations provoquent une fracture interfaciale et le rayon de contact diminue. Enfin, l'application d'oscillations tangentielles augmente la vitesse de glissement d'un patin soumis à une force constante. Dans le cas d'un film interfacial macromoléculaire, nous discutons des diverses interprétations possibles aux échelles microscopiques.

Mots-clés : *vibrations ultrasonores, friction, contact, film mince, polymère, glissement.*

Summary

The aim of this work is to bring new insights to the understanding of the interaction between high frequency tangential vibrations and the macroscopic triggering of sliding, as well as the subsequent frictional dynamics. This experimental work is based on a method that allows studying, at ultrasonic frequencies, the elastic and dissipative characteristics of sphere-plane contacts, in linear and non-linear regimes. The method relies on the measurement of the resonance frequency and the quality factor of a quartz, which are modified by the mechanical contact with a probe.

The sliding threshold is adjusted by the control of the molecular nature of the frictional interface, which can be either grafted or spin-coated onto the quartz. We first characterize the physical and mechanical properties of the various interfaces in the linear regime. Then, we study the effects of the oscillation amplitude on the angle of repose of the probe in contact with the quartz which is grafted with monolayers of high and low adhesion energy. When the oscillation amplitude increases, the angle of repose decreases whatever the polarisation of the vibrations. The vibrations shall decrease the effective surface area on which the static stress applies, which decreases the static force at the threshold. We discuss the results within the framework of the Mindlin model, which suggests that the oscillatory energy could play the role of an effective temperature in a jamming diagram.

In the last part of the work, we study the response of the mechanical contact at very high amplitudes. We observe a micro-slip regime beyond the Mindlin limit, where the behaviour of the contact oscillates between partial and full microslip, leading eventually to interfacial fracture. When the probe is sliding on the incline at constant velocity, the high frequency vibrations increase the sliding velocity. In the case of a macromolecular interfacial film, we propose a possible explanation for this effect, based on a mechanism at the local scale.

Keywords : *ultrasonics vibrations, friction, contact, thin film, polymer, sliding.*